

**NISKOTŁOWY, CYFROWY
SPEKTROMETR
PROMIENIOWANIA GAMMA
Z OSŁONĄ AKTYWNA
W ZASTOSOWANIACH DO BADAŃ
ŚLADOWEJ RADIOAKTYWNOŚCI**

Krzysztof Gorzkiewicz

Rozprawa doktorska

Promotor

prof. dr hab. Jerzy W. Mietelski

Promotor pomocniczy

dr hab. inż. Renata Kierepko



INSTYTUT FIZYKI JĄDROWEJ POLSKIEJ AKADEMII NAUK
Zakład Fizykochemii Jądrowej

Kraków, 2020

PODZIĘKOWANIA

Przede wszystkim pragnę podziękować prof. dr hab. Jerzemu Wojciechowi Mietelskiemu i dr hab. inż. Renacie Kierepko za umożliwienie mi wykonania niniejszej pracy doktorskiej, za poświęcony czas oraz cenne dyskusje i uwagi, jak również duże pokłady cierpliwości.

Dziękuję byłym i obecnym pracownikom i doktorantom Zakładu Fizykochemii Jądrowej za życzliwość oraz wszelką udzieloną pomoc.

Dziękuję dr hab. inż. Pawłowi Oświecimce za pomoc w analizie szeregów czasowych, prof. dr hab. Zbigniewowi Ustrnulowi za udostępnienie danych meteorologicznych, dr Jussi Paatero za przekazanie do badań filtrów powietrza eksponowanych na terenie Bazy Marambio, mgr inż. Dariuszowi Kołacie za pomoc w kwestiach dotyczących detektora germanowego oraz Dyrekcji CLOR, za wyrażenie zgody na wykorzystanie w pracy wyników pomiarów prowadzonych w IFJ PAN na zlecenie CLOR, a dotyczących radioaktywności powietrza.

Składam również serdeczne podziękowania mojej Rodzinie, Znajomym i wszystkim życzliwym Osobom, które spotkałem na mojej drodze, za udzieloną pomoc i nieustające wsparcie.

STRESZCZENIE

Spektrometria promieniowania γ należy do jednej z najbardziej rozpowszechnionych technik spektrometrii promieniowania jonizującego i znajduje zastosowanie w różnych dziedzinach nauki, przemysłu oraz medycyny. Uniwersalność tej techniki przejawia się w możliwości badania obiektów charakteryzujących się zarówno niskimi jak i wysokimi aktywnościami izotopów promieniotwórczych emitujących kwanty γ z szerokiego spektrum energetycznego.

W przypadku badań materiałów o niskich aktywnościach radionuklidów (np. na potrzeby badań środowiskowych), kluczowe staje się osiągnięcie odpowiednio niskich limitów detekcji, umożliwiającących oznaczenie szukanych izotopów promieniotwórczych obecnych w mierzonych próbkach. Cel ten osiągniany jest m.in. poprzez zastosowanie odpowiednich detektorów, elektroniki spektrometrycznej, jak również specjalnie skonstruowanych osłon - pasywnych oraz aktywnych.

Głównymi celami niniejszej rozprawy było skonstruowanie niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma, oraz stworzenie oprogramowania służącego do analizy generowanych danych pomiarowych. Następnie, wykorzystując przygotowane stanowisko badawcze, wykonano serię pomiarów wyselekcjonowanych próbek charakteryzujących się niskimi aktywnościami radioizotopów.

Ponadto, w wyniku zastosowania cyfrowego systemu akwizycji danych, możliwym stało się rozszerzenie potencjału badawczego spektrometru promieniowania gamma, poprzez zastosowanie wielorakiej eksploracji gromadzonych danych pomiarowych, co pozwoliło na zapoczątkowanie monitoringu intensywności strumienia mionów promieniowania kosmicznego, rejestrowanego przez detektory osłony aktywnej spektrometru.

Abstract

Gamma-ray spectrometry is one of the most widespread ionizing radiation spectrometry technique and it finds application in various fields of science, industry and medicine. The versatility of this technique manifests itself in the possibility of testing objects characterized by both low and high radionuclides' activities and emitting γ quanta from the wide range of energy spectrum.

In the case of measurements of low-radioactive materials (e.g. in the field of environmental research), it is crucial to achieve sufficiently low detection limits in order to identify radioactive isotopes present in measured samples. This goal is achieved, among others, through the utilisation of appropriate detectors, signal processing electronics as well as specially constructed shields - both passive and active.

The main goals of this dissertation were construction of a low-background, digital gamma - ray spectrometer and development of purposely written software for analyzing generated measurement data. Then, utilizing set up scientific device, a series of measurements of selected samples characterized by low radioisotopes' activities were performed.

In addition, as a result of utilization of a digital data acquisition system, it has become possible to expand the research potential of the gamma - ray spectrometer, by using manifold ways of exploration of collected measurement data, what allowed to initiate monitoring of cosmic-ray muons flux registered by active shield's detectors.

Spis treści

WSTĘP	1
Cele i teza pracy	1
CZEŚĆ TEORETYCZNA	5
1 Rozpady promieniotwórcze, promieniowanie γ	7
1.1 Rozpady β	7
1.2 Rozpad α	9
1.3 Promieniowanie γ	9
1.3.1 Oddziaływanie promieniowania γ z materią	10
2 Promieniowanie kosmiczne	13
2.1 Pierwotne i wtórne promieniowanie kosmiczne	13
2.2 Miony promieniowania kosmicznego	16
2.3 Detekcja promieniowania kosmicznego	19
3 Półprzewodnikowa spektrometria promieniowania γ	21
3.1 Detektory półprzewodnikowe	21
3.1.1 Generacja sygnału w detektorze HPGe	23
3.1.2 Rozdzielczość energetyczna	24
3.2 Elektronika spektrometryczna	25
3.2.1 Analogowe przetwarzanie sygnału	25
3.2.2 Cyfrowe przetwarzanie sygnału	30
3.3 Tło i osłony spektrometru	34
3.4 Wyznaczenie aktywności, kalibracja spektrometru	36
3.5 Laboratoria ultra-niskotłowe	39
CZEŚĆ PRAKTYCZNA	41
4 Niskotłowy, cyfrowy spektrometr promieniowania γ w IFJ PAN	43
4.1 Detektor BEGe	43
4.2 Osłona pasywna	44
4.3 Detektory scyntylacyjne	45
4.4 Digitizer CAEN DT5725	46

5	Optimalizacja parametrów pracy cyfrowego spektrometru promieniowania γ	49
5.1	Trapezoid Rise Time	50
5.2	Ns Peak	51
5.3	Ns Baseline	53
5.4	Peak Holdoff	54
5.5	Threshold	56
5.6	Trap. pole zero	58
5.7	Energy fine gain	58
5.8	Wyznaczenie opóźnień między detektorami	59
5.9	Weryfikacja czasu przetwarzania impulsów	60
5.10	Wyznaczenie koincydencji przypadkowych	61
5.11	Oszacowanie czasu martwego spektrometru	62
6	Widma detektorów niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania γ	67
6.1	Widma detektorów scyntylacyjnych	67
6.2	Widmo detektora BEGe	68
	CZĘŚĆ BADAWCZA	81
7	Monitoring radiologiczny powietrza	83
7.1	Detekcja izotopów rutenu w atmosferze w 2017 r.	84
7.1.1	Informacje wstępne	85
7.1.2	Badania wykonane w IFJ PAN	88
7.2	Szeregi czasowe stężenia ^{22}Na	91
7.2.1	Informacje wstępne	91
7.2.2	Badania i analiza wyników	93
7.3	Zmiany stężenia ^{137}Cs spowodowane pożarami wokół EJ w Czarnobylu	95
7.3.1	Informacje wstępne	95
7.3.2	Badania i analiza wyników	96
8	Izotopy γ-promieniotwórcze w przyziemnej warstwie powietrza wyspy Seymour (Antarktyda)	103
8.1	Informacje wstępne	103
8.2	Charakterystyka materiału badawczego	106
8.3	Procedura przygotowania próbek do pomiarów γ - spektrometrycznych	106
8.4	Pomiary γ - spektrometryczne	110
8.4.1	Kalibracja wydajnościowa i jej walidacja	110
8.4.2	Wyniki pomiarów próbek	115
9	Izotopy γ-promieniotwórcze obecne we fragmentach meteorytów	125

9.1	Informacje wstępne	125
9.1.1	Radioaktywność meteorytów	126
9.1.2	Materiał badawczy	127
9.2	Przeprowadzone badania	129
9.2.1	Kalibracja wydajnościowa	129
9.2.2	Wyniki pomiarów	130
10	Badanie zmian rejestrowanego strumienia mionów	135
10.1	Dane krótkookresowe	135
10.1.1	Dane pojedynczych scyntylatorów	135
10.1.2	Przypadki koincydencji impulsów ze scyntylatorów	143
10.2	Dane długookresowe	144
10.2.1	Wstępne przygotowanie danych	144
10.2.2	Korelacja intensywności strumienia mionów z ciśnieniem atmosferycznym	146
	PODSUMOWANIE	160
	11 Podsumowanie pracy	163
	BIBLIOGRAFIA	167
	SPIS RYSUNKÓW	183
	SPIS TABEL	189
	DODATKI	191
	A Opis programu VETO	193
	A.1 BASIC VETO	194
	A.2 ADVANCED VETO	198
	A.3 Settings	217
	B Dane techniczne scyntylatorów EJ-200	221
	C Parametry akwizycji programu CAEN CoMPASS	223
	D Analiza widm energetycznych badanych próbek	225
	E Dane szczegółowe filtrów powietrza zebranych na terenie Bazy Marambio	227

WSTĘP

W procesie ewolucji, u człowieka wykształciły się zmysły takie jak wzrok, słuch, smak, czy zmysły temperatury i dotyku, umożliwiające odbieranie zewnętrznych i wewnętrznych bodźców. Poza czysto poznawczą funkcją zmysłów, pozwalają nam one unikać niebezpieczeństw zagrażającym zdrowiu, a nawet życiu. Niestety, pomimo tego, iż promieniowanie jonizujące nieustannie towarzyszy człowiekowi, gatunek ludzki nie wykształcił żadnych zmysłów zdolnych do wykrycia tego promieniowania. O ile do końca XIX w. człowiek (nieświadomie) miał kontakt jedynie z naturalnymi źródłami promieniowania jonizującego, to wraz z odkryciem promieniotwórczości przez H. Becquerela w 1896 r., intensywnemu rozwojowi badań w dziedzinach chemii i fizyki jądrowej oraz nastaniem „Ery Atomowej” [22], ważnym istotną kwestią stała się umiejętność wykrycia zarówno naturalnych jak i sztucznych źródeł promieniowania jonizującego.

W związku z brakiem naturalnych receptorów zdolnych do wykrycia tego rodzaju promieniowania, musimy wspomagać się skonstruowanymi w tym celu urządzeniami - od pasywnych detektorów filmowych i termoluminescencyjnych, poprzez detektory gazowe, aż po liczniki scyntylacyjne oraz detektory półprzewodnikowe.

W niniejszej pracy skupiono się na technice spektrometrii promieniowania gamma, stanowiącej jedną z najbardziej wszechstronnych oraz najczęściej wykorzystywanych metod spektrometrycznych promieniowania jądrowego i znajdującej zastosowanie zarówno w jakościowych, jak i ilościowych analizach izotopów gamma-promieniotwórczych przeprowadzanych w oparciu o uzyskiwane w wyniku pomiarów widma energetyczne. Spektrometria promieniowania gamma wykorzystywana jest w pomiarach materiałów wysokoaktywnych jak również tych, zawierających jedynie śladowe ilości radioizotopów co sprawia, że stosowana jest w wielu dziedzinach nauki, medycyny, inżynierii i przemysłu itp. Fakt ten sprawia, że metody badawcze, elektronika spektrometryczna jak i same detektory oraz procedury pomiarowe, poddawane są ciągłemu rozwojowi i udoskonaleniom co otwiera możliwości poprawy jakości i czułości spektrometrii promieniowania gamma, a tym samym umożliwia projektowanie i przeprowadzanie nowych typów eksperymentów.

Cele i teza pracy

Główne cele rozprawy doktorskiej były następujące:

- skonstruowanie niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania γ w oparciu o wysoko rozdzielczy detektor germanowy, cyfrowy analizator danych, pięć detektorów scyntylacyjnych stanowiących osłonę aktywną oraz istniejącą, skonstruowaną

w 1998 roku osłonę bierną zawierająca m.in. 5 cm ołowiu z wytopu sprzed 2500 lat i 10 cm ołowiu współczesnego,

- przeprowadzenie konfiguracji i optymalizacji parametrów pracy spektrometru,
- stworzenie oprogramowania służącego do obsługi i analizy danych generowanych przez spektrometr,
- wykonanie pomiarów wybranych próbek charakteryzujących się niskimi aktywnościami izotopów promieniotwórczych,
- zainicjowanie monitoringu zmian strumienia mionów docierających do powierzchni Ziemi i opracowanie wyników.

Z kolei teza pracy została sformułowana następująco: **wykorzystując cyfrowy system akwizycji danych pomiarowych niskotłowego spektrometru promieniowania gamma, możliwe staje się rozszerzenie potencjału badawczego urządzenia poprzez wieloraką eksplorację danych pomiarowych.**

Rozprawa doktorska została zrealizowana w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej Instytutu Fizyki Jądrowej im. Henryka Niewodniczańskiego Polskiej Akademii Nauk w Krakowie pod kierunkiem prof. dr hab. Jerzego Wojciecha Mietelskiego oraz dr hab. inż. Renaty Kierepko.

Praca podzielona jest na cztery główne części - **Wstęp teoretyczny** (Rozdziały 1 do 3) zawierający najważniejsze, podstawowe wiadomości, przydatne w zrozumieniu dalszych części rozprawy (rozszerzenia przedstawionych pojęć, jak również dodatkowe zagadnienia, można znaleźć w cytowanych materiałach źródłowych), **Cześć praktyczną** (Rozdziały 4 do 6) przedstawiającą konstrukcję oraz opis wykonanych prac mających na celu uruchomienie stanowiska cyfrowej, niskotłowej spektrometrii promieniowania gamma, **Cześć badawczą** (Rozdziały 7 do 10) zawierającą opisy procedur badawczych i przeprowadzonych pomiarów izotopów gamma-promieniotwórczych w wybranych próbkach oraz otrzymane wyniki wraz z ich dyskusjami. Ostatnią, czwartą część stanowi **Podsumowanie** rozprawy (Rozdział 11).

Wyniki uzyskane w trakcie pracy nad rozprawą zostały opublikowane w następujących artykułach:

- K. Gorzkiewicz i in. “Low - background, digital gamma - ray spectrometer with BEGe detector and active shield: commissioning , optimisation and software development”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 0123456789 (2019). ISSN: 1588-2780. DOI: [10.1007/s10967-019-06853-7](https://doi.org/10.1007/s10967-019-06853-7). URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06853-7>
- O. Masson i in. “Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017”. W: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 116.34 (2019), s. 16750–16759. ISSN: 0027-8424. DOI: [10.1073/pnas.1907571116](https://doi.org/10.1073/pnas.1907571116). eprint: <https://www.pnas.org/content/116/34/16750.full.pdf>. URL: <https://www.pnas.org/content/116/34/16750>

-
- P. Bossew i in. “An episode of Ru-106 in air over Europe, September–October 2017 – Geographical distribution of inhalation dose over Europe”. W: *Journal of Environmental Radioactivity* 205-206 (2019), s. 79–92. ISSN: 0265-931X. DOI: [10.1016/J.JENVRAD.2019.05.004](https://doi.org/10.1016/J.JENVRAD.2019.05.004). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X18306039?via%7B%5C%7D3Dihub>

CZEŚĆ TEORETYCZNA

Rozdział 1

Rozpady promieniotwórcze, promieniowanie γ

Rozpad promieniotwórczy jest procesem statystycznym w wyniku którego, niestabilne jądro atomowe traci energię emitując promieniowanie w postaci cząstek (np. cząstki β i ν , α) oraz promieniowanie elektromagnetyczne. Typ rozpadu i widmo energetyczne emitowanego promieniowania jest charakterystyczne dla danego izotopu i może posłużyć do jego identyfikacji i kwantyfikacji.

Obecnie znanych jest ponad 4000 izotopów [188] z czego jedynie niecałe 300 jest stabilnych [97]. Rysunek 1.1 przedstawia tablicę nuklidów. Jądra stabilne, leżące na tak zwanej ścieżce stabilności, oznaczono kolorem czarnym natomiast radioizotopy zaznaczone są pozostałymi kolorami, charakterystycznymi dla danego typu rozpadu. Poniżej przedstawiono podstawowe kanały rozpadu izotopów promieniotwórczych, jak również scharakteryzowano promieniowanie γ , którego detekcja jest tematem niniejszej rozprawy. Ponadto przedstawiono podstawowe zjawiska odpowiedzialne za oddziaływanie promieniowania elektromagnetycznego z materią.

1.1 Rozpady β

Rozpad β jest rozpadem promieniotwórczym w wyniku którego jądro emitując cząstkę β , ulega przemianie do jądra izobaru. Rozpad ten polega na zmianie zapachów kwarków tworzących nukleony (kwarki dolne i górne), poprzez emisję bozonu W prowadząc do powstania par elektron-antineutrino elektronowe (β^-) lub pozyton-neutrino elektronowe (β^+). W wyniku tego procesu zawsze też wydzielana jest energia, której podział na poszczególne produkty rozpadu ma charakter stochastyczny, czego manifestacją jest ciągle widmo promieniowania β [49, 107, 126].

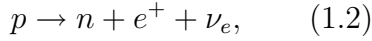
W przypadku **rozpadu** β^- , oddziaływania słabe prowadzą do przemiany neutronu n w proton p , elektron e^- i antyneutrino elektronowe $\bar{\nu}_e$:

$$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e, \quad (1.1)$$

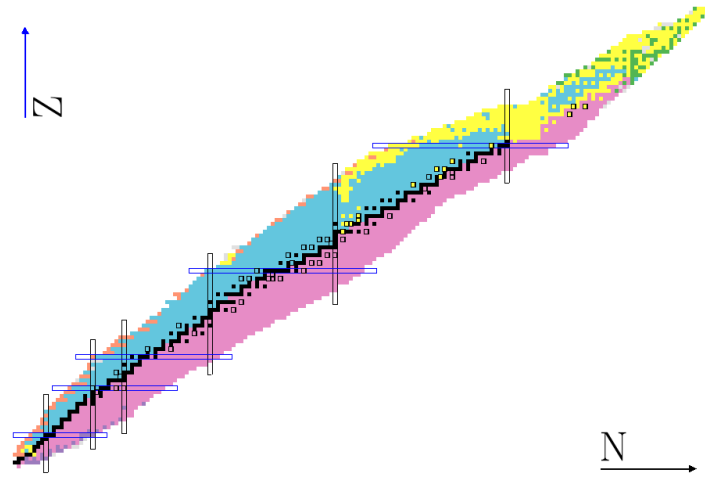
co na poziomie struktury nukleonów spowodowane jest zmianą kwarku dolnego (d) w jednym z neutronów, w kwark górny (u) z emisją bozonu W^- , który następnie ulega rozpadowi na e^- i $\bar{\nu}_e$. Rozpady te są charakterystyczne dla jąder neutrono-nadmiarowych

(poniżej ścieżki stabilności na Rys. 1.1) i w ich wyniku powstają jądra izobaryczne z liczbą atomową o jeden większą niż jądro pierwotne.

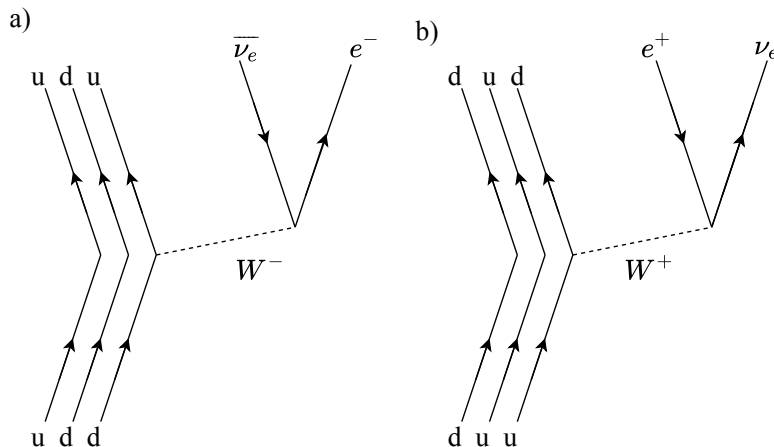
Rozpad β^+ polega na przemianie protonu w neutron, pozyton e^+ i neutrino elektronowe ν_e :



co oznacza, że w jednym z protonów jądra następuje przemiana kwarku u w kwark d z emisją bozonu W^+ , który następnie ulega rozpadowi do e^+ i ν_e . Rozpady zachodzą najczęściej dla jąder bogatych w protony (neutro-deficytowych, powyżej ścieżki stabilności na Rys. 1.1) i w ich wyniku powstają jądra izobaryczne z liczbą atomową o jeden mniejszą niż jądro pierwotne. Rysunek 1.2 przedstawia diagramy Feynmana rozpadów β^- (a) oraz β^+ (b).



Rysunek 1.1 Tablica izotopów; Z - liczba protonów, N - liczba neutronów; kolorem czarnym zaznaczono izotopy stabilne, natomiast pozostałymi kolorami - radioizotopy, w zależności od kanału rozpadu. Ponadto zaznaczono izotopy z jądrami magicznymi lub podwójnie magicznymi (znajdujące się odpowiednio w niebieskich ramkach oraz na ich przecięciu) [153]

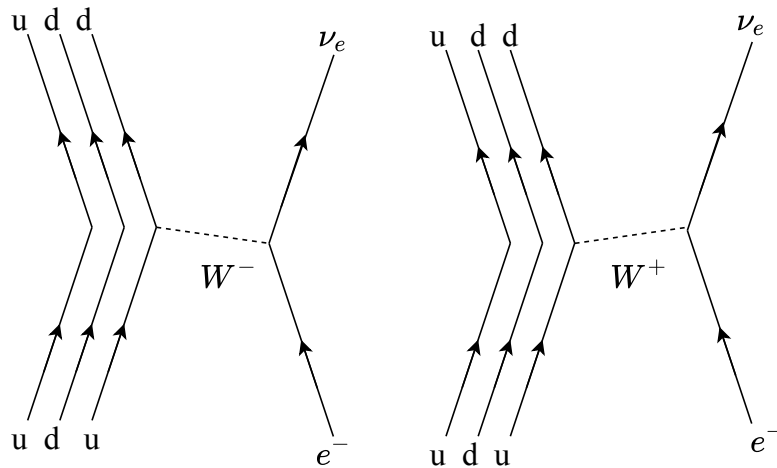


Rysunek 1.2 Diagramy Feynmana rozpadów β : a) β^- , b) β^+

Kolejnym procesem, należącym do grupy rozpadów β jest **wychwyt elektronu** (np. wychwyt K), który podobnie jak rozpad β^+ zachodzi w jądrach z deficytem neutronów. Polega on na wychwycie przez proton elektronu (zwykle z powłok K lub L) i przemianie protonu w neutron z jednoczesną emisją neutrino elektronowego [38, 66]:



W oparciu o teorię oddziaływań słabych (przedstawionych na diagramach Feynmana na Rysunku 1.3), w procesie wychwytu K, elektron oddziałuje z kwarkiem górnym protonu poprzez bozon W (typ bozonu jest nierozróżnialny z powodu jego wirtualności), tworząc kwark dolny i neutrino elektronowe. Wychwyt elektronu z powłoki elektronowej w konsekwencji prowadzi do emisji charakterystycznego promieniowania X (izotopu pochodnego) lub elektronu Augera [66].



Rysunek 1.3 Diagramy Feynmana wychwytu elektronu

1.2 Rozpad α

Jest to proces rozpadu jądra atomowego, w wyniku którego następuje emisja cząstki α (jądra helu) i jest przykładem najbardziej popularnego rozpadu klastrowego (egzotycznego) polegającego na emisji klastra (grupy) nukleonów z jądra pierwotnego. Rozpad α zachodzi dzięki kwantowemu zjawisku tunelowemu czyli penetracji bariery potencjału i w procesie tym biorą udział zarówno oddziaływania jądrowe jak i elektromagnetyczne. Emisja cząstki α jest powszechnym kanałem rozpadu dla jąder o wysokiej liczbie atomowej ($Z > 83$), jednakże znane są też lżejsze jądra ulegające temu rozpadowi, np. jądra pierwiastków ziem rzadkich [54]. Schemat tej przemiany można zapisać zgodnie z regułą Soddy'ego - Fajansa [49, 66, 107]:



Ze względu na zasady zachowania energii i pędu, podział energii (będącą różnicą energii stanów początkowego i końcowego) między jądra wtórne jest ściśle określony w związku z czym cząstka α jest monoenergetyczna, a widmo promieniowania jest liniowe [66, 107].

1.3 Promieniowanie γ

Promieniowanie γ emitowane jest w wyniku deekscytacji wzbudzonych jąder atomowych powstałych na skutek różnych przemian lub zjawisk jądrowych jak rozpady promieniotwórcze (np. opisane wyżej rozpady α i β), rozpraszania i wychwytu neutronów czy

rozszczenia ciężkich jąder [49]. Promieniowanie to jest wysokoenergetycznym promieniowaniem elektromagnetycznym. Zakres energii charakterystycznego promieniowania X (od ok. 1 do 100 keV) częściowo pokrywa się z najniższymi energiami kwantów γ (10 - 10000 keV). Podstawową różnicą między nimi jest źródło emisji - promieniowanie X powstaje w czasie deekscytacji atomów, podczas gdy promieniowanie γ emitowane jest przez wzbudzone jądra atomowe [66, 107]. Należy również wspomnieć, że w astrofizyce znane są źródła promieniowania γ o energiach rzędu setek, a nawet tysięcy teraelektronowoltów (10^{12} eV), których przykładem mogą być kwazary (np. Cygnus X-1 [214]). Detekcja tak wysokoenergetycznego promieniowania kosmicznego odbywa się za pomocą badania cząstek wtórnych powstających w wyniku oddziaływania tego promieniowania z materią obecną w górnych warstwach atmosfery.

Zjawiskiem konkurencyjnym do emisji kwantów gamma jest konwersja wewnętrzna w wyniku której, energia ekscytacji jądra przekazywana jest za pośrednictwem wirtualnego fotonu jednemu z elektronów, w wyniku czego zostaje on wyemitowany z atomu. Powstały wakant jest następnie zapełniany przez elektron z wyższej powłoki, co z kolei powoduje emisję promieniowania X lub elektronu Augera (jak w przypadku wychwytu elektronu) [49].

1.3.1 Oddziaływanie promieniowania γ z materią

U podstaw detekcji promieniowania γ leżą zjawiska umożliwiające transfer energii kwantów gamma do elektronów, które następnie tracą tę energię na jonizację i wzbudzenia atomów ośrodka, co prowadzi do powstania par cząstek naładowanych. Liczba takich par jest proporcjonalna do energii elektronów powstałych na skutek pierwotnej interakcji [66].

Podstawowymi oddziaływaniami prowadzącymi do wyżej opisanych zjawisk są: efekt fotoelektryczny (absorpcja fotonów), rozpraszanie niekoherentne (Comptona) oraz produkcja par. Wszystkie te procesy prowadzą do częściowego lub całkowitego przekazu energii kwantu gamma E_γ elektronom ośrodka, a prawdopodobieństwo wystąpienia danego zjawiska zależy od energii promieniowania [107], co przedstawiono na Rys. 1.4. W wyniku tych procesów następuje osłabienie natężenia strumienia kwantów γ penetrujących materię, a w części również zmniejszenie ich energii.

Efekt fotoelektryczny

Absorpcja fotoelektryczna polega na oddziaływaniu fotonu gamma z elektronem na wewnętrznej powłoce elektronowej (elektron musi być związany ze względu na zasady zachowania energii i pędu [43]). Jeżeli E_γ jest większa od energii wiązania elektronu E_b , foton zostaje pochłonięty a elektron jest emitowany z atomu z energią kinetyczną E_k :

$$E_k = E_\gamma - E_b \quad (1.5)$$

Wzór 1.5 nie uwzględnia energii odrzutu atomu, która wynosi około 0,1 eV [49] i jest zanedbywalna w stosunku do energii kinetycznej elektronu (rzędu keV).

Przekrój czynny na absorpcję fotoelektryczną zależy od liczby atomowej Z absorbentu oraz energii kwantu gamma E_γ :

$$\tau \propto Z^n / E_\gamma^m, \quad (1.6)$$

gdzie n i m zmieniają się w przedziale od 3 do 5 w zależności od energii [66, 107]. Dla ośrodka o określonym Z , relacja 1.6 ma charakter funkcji monotonicznej, z nieciągłościami (tzw. krawędziami absorpcji fotoelektrycznej, Rys. 1.4) dla energii promieniowania gamma równych energiom wiązania elektronów na poszczególnych orbitach.

W wyniku zjawiska fotoelektrycznego, atom ulega wzbudzeniu (z nadmiarem energii równym E_b) i może powrócić do stanu podstawowego na dwa sposoby: poprzez emisję elektronu Augera lub charakterystycznego promieniowania X. Przeważnie zakłada się, że w wyniku absorpcji fotoelektrycznej następuje całkowita depozycja energii kwantu gamma w materiale. Jednakże, dla przypadków zachodzących przy powierzchni absorbentu, promieniowanie X emitowane w wyniku deekscytacji atomu może „ucieć” z jego objętości. Proces ten powoduje powstanie linii widmowej poniżej pikę pełnej absorpcji¹, który w przypadku detektorów germanowych nosi nazwę pikę ucieczki germanu.

Rozpraszanie Comptona

Zjawisko rozpraszania Comptona polega na nieelastycznym rozpraszaniu fotonu na swobodnym lub słabo związanym elektronie (gdy jego energia wiązania w atomie lub sieci krystalicznej (rzędu pojedynczych eV) jest dużo mniejsza od energii początkowej padającego fotonu (rzędu setek keV)). W wyniku oddziaływania następuje częściowy transfer energii fotonu do elektronu. Energia uzyskana przez elektron w wyniku rozpraszania E_e wyraża się wzorem:

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma = E_\gamma \left[1 - \frac{1}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos \varphi)} \right], \quad (1.7)$$

gdzie:

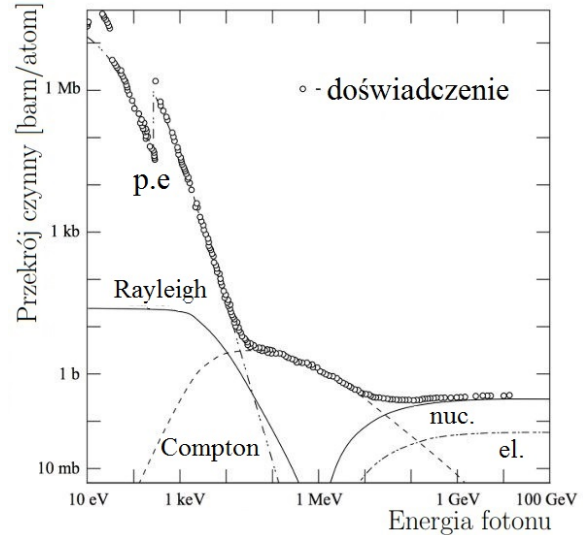
E_γ, E'_γ - energia fotonu przed i po rozproszeniu,

m_0 - masa spoczynkowa elektronu,

c - szybkość światła,

φ - kąt rozproszenia fotonu.

Wraz ze wzrostem kąta rozpraszania φ oraz wzrostem energii padającego kwantu gamma, rośnie ilość energii przekazywanej elektronowi [140]. Największe straty energii po-



Rysunek 1.4 Przekrój czynny dla węgla na oddziaływania fotonów w funkcji energii dla wybranych procesów: fotoelektrycznego (p.e.), rozpraszania Comptona i Rayleigha oraz produkcji par w polu jądra (nuc.) i elektronu (el.). Na podst. [90]

¹pik: „punkt szczytowy - ostro wyróżniający się maksymalny punkt na wykresie obrazującym jakąś wielkość” za: Wielki Słownik Języka Polskiego [155]

czątkowej kwantu gamma obserwuje się dla rozpraszania wstecznego ($\varphi = \pi$), przy czym, nawet wtedy, wyrażenie w nawiasach w równaniu 1.7 jest mniejsze od 1, a w związku z tym, część energii jest unoszona przez rozproszony foton. Wynika z tego, że w skutek rozpraszania komptonowskiego, nie jest możliwy całkowity przekaz energii kwantu gamma do elektronu. Ponadto, foton, który uległ rozproszeniu komptonowskiemu może ulegać dalszym rozproszeniom, stopniowo tracąc energię. W efekcie czego, widmo tak rozpraszanych fotonów jest widmem ciągłym.

Zjawisko to jest najczęściej występującym mechanizmem oddziaływania promieniowania gamma (oraz X) z materiałem ośrodka, a prawdopodobieństwo jego wystąpienia rośnie liniowo z liczbą atomową Z [107].

Rozproszenia koherentne

Należy również wspomnieć o koherentnych rozpraszaniach fotonów, które jednak odgrywają znacznie mniejszą rolę w porównaniu z rozpraszaniem Comptona. Są to rozpraszania Thomsona (na jądrach atomowych) oraz Rayleigha (na silnie związanych elektronach). W zjawiskach tych nie dochodzi do zmiany pierwotnej energii kwantu gamma lub X (nie dochodzi więc ani do jonizacji ani wzbudzenia atomu), a jedynie zmiany jego kierunku ruchu. Zjawisko to jest obserwowane jedynie dla niskoenergetycznych fotonów (poniżej kilkuset kiloelektronowoltów) w materiałach o wysokim Z [49].

Produkcja par

Produkcja par jest zjawiskiem polegającym na reakcji cząstki i antycząstki przez neutralny bozon. W spektrometrii promieniowania gamma odnosi się do powstawania par elektron-pozyton z kwantu γ w obecności pola elektrycznego jądra atomowego. Energią progową padającego promieniowania jest podwojona energia spoczynkowa powstających cząstek - 1022 keV [89], a dodatkowo muszą być spełnione zasady zachowania zarówno energii, pędu, momentu pędu, liczby leptonowej oraz ładunku elektrycznego. Prawdopodobieństwo wystąpienia zjawiska wzrasta z energią kwantu gamma oraz kwadratem liczby atomowej Z absorbentu [49, 89].

Rozdział 2

Promieniowanie kosmiczne

Układ detekcyjny niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma, którego skonstruowanie było jednym z celów niniejszej rozprawy, umożliwia rejestrację (oprócz promieniowania gamma) promieniowania kosmicznego docierającego do powierzchni Ziemi. Promieniowanie to jest jednym z głównych źródeł tła detektora germanowego, które może zostać zredukowane poprzez zastosowanie techniki pomiaru antykoincydencyjnego polegającego na rejestracji cząstek promieniowania kosmicznego przez detektory scyntylacyjne, otaczające detektor germanowy, w trakcie pomiaru gamma-spektrometrycznego. W przypadku jednoczesnej rejestracji sygnałów przez detektor promieniowania γ i którykolwiek ze scyntylatorów (stanowiących tzw. osłonę aktywną) impuls tego pierwszego zostaje odrzucony, co pozwala znacząco zredukować tło tego detektora. W przypadku cyfrowej akwizycji danych, przygotowanie widm antykoincydencyjnych może odbywać się w trybie off-line, umożliwiając rejestrację danych ze wszystkich detektorów układu spektrometrycznego oraz ich późniejszą analizę i wykorzystanie w różnorodnych badaniach.

W poniższym rozdziale zaprezentowane zostaną podstawowe informacje o promieniowaniu kosmicznym, jego genezie, charakterze, najważniejszych oddziaływaniach z materią oraz metodach detekcji.

2.1 Pierwotne i wtórne promieniowanie kosmiczne

Promieniowanie kosmiczne to wysokoenergetyczne cząstki oraz promieniowanie elektromagnetyczne docierające do Ziemi z otaczającej przestrzeni kosmicznej. Ze względu na pochodzenie, promieniowanie kosmiczne można podzielić na:

- składową pozagalaktyczną (ang. *extragalactic cosmic rays*) - czyli wysokoenergetyczne cząstki penetrujące Układ Słoneczny, a pochodzące spoza Galaktyki Drogi Mlecznej,
- składową galaktyczną (ang. *galactic cosmic rays*, *GCR*) - promieniowanie, którego źródła znajdują się w naszej Galaktyce,
- cząstki pochodzenia słonecznego (ang. *solar energetic particles*) [71].

Promieniowanie to określane jest jako **pierwotne promieniowanie kosmiczne**, w którego skład wchodzi protony i cząstki alfa (99%), jądra lekkich pierwiastków oraz

fotony. Ponadto, obserwowane są znikome ilości antymaterii - głównie pozytonów i antyprotonów oraz cięższych antynukleonów [33]. Strumień cząstek pierwotnego promieniowania kosmicznego modyfikowany jest przez galaktyczne i ziemskie pole magnetyczne jak również poprzez aktywność słoneczną (27 dniowy cykl związany z rotacją Słońca i 11 - letni cykl słoneczny) [168].

Widmo energetyczne cząstek promieniowania kosmicznego dla energii powyżej kilku GeV może być opisane za pomocą prawa potęgowego zgodnie z równaniem 2.1:

$$j(E) \propto E_{nuc}^{-\xi} \quad (2.1)$$

gdzie:

j - intensywność strumienia promieniowania kosmicznego,

E_{nuc} - energia kinetyczna na nukleon,

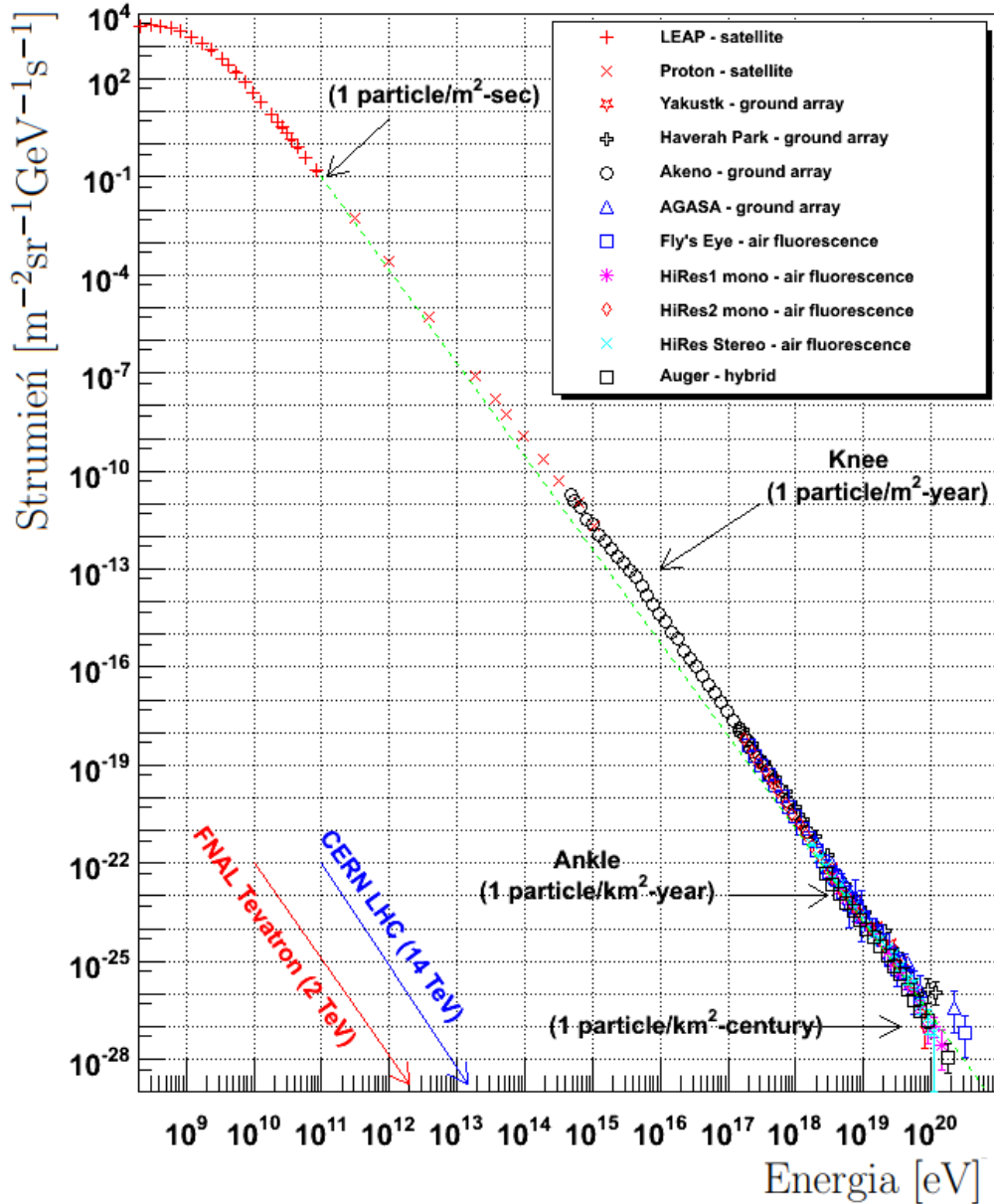
ξ - indeks widmowy.

Rysunek 2.1 przedstawia widmo energetyczne promieniowania kosmicznego. Dla energii powyżej kilku GeV, wartość indeksu ξ wynosi ok. 2,7, aż do załamania krzywej (ang. *knee*, powiązane z przejściem od galaktycznego do pozagalaktycznego promieniowania kosmicznego), gdzie indeks ten zwiększa się do wartości 3,1 - 3,4, natomiast wraz z dalszym wzrostem energii promieniowania, powyżej tzw. kostki (ang. *ankle*) widmo znów się wypłaszcza, a indeks widmowy przyjmuje wartość $\xi \approx 2,6$ [200]. Wahania wartości indeksu ξ spowodowane są zmieniającym się składem i pochodzeniem promieniowania kosmicznego. Dla wyższych energii, ok. $3 \cdot 10^{20}$ eV, obserwuje się tzw. odcięcie GZK (efekt Greisena-Zatsepina-Kuźmina) spowodowane oddziaływaniem pozagalaktycznego promieniowania kosmicznego z mikrofalowym promieniowaniem tła [182].

Dla porównania, na Rysunku 2.1 zaznaczono również maksymalne energie cząstek uzyskiwane w ziemskich laboratoriach - Fermilab i CERN. Olbrzymie energie osiągane przez cząstki promieniowania kosmicznego dają nadzieję na wykorzystanie ich w badaniach struktury materii. Nie mniej jednak, wraz z wzrostem energii maleje strumień rejestrowanych cząstek.

Gdy cząstki pierwotnego promieniowania kosmicznego docierają do ziemskiej atmosfery, oddziałują (zarówno silnie jak i elektromagnetycznie) z jej atomami i molekułami, tracąc energię i generując **wtórne promieniowanie kosmiczne**. Powstające w ten sposób kaskady cząstek, zwane pękami atmosferycznymi, składają się z fotonów, mionów, protonów, pionów, kaonów, elektronów i neutronów itp., które na skutek oddziaływań mogą być źródłem kolejnych kaskad lub ulegać rozpadowi. To, czy cząstka ulegnie rozpadowi lub, w wyniku kolejnych oddziaływań, będzie źródłem następnych kaskad, zależy od jej czasu życia, energii, wysokości nad poziomem morza, kąta zenitalnego oraz gęstości ośrodka [1, 71]. Rysunek 2.2 przedstawia schemat pęku atmosferycznego z podziałem na poszczególne składowe: mionową, hadronową i elektromagnetyczną. Do górnych warstw atmosfery dociera około 20 cząstek na centymetr kwadratowy w ciągu sekundy, natomiast na poziomie morza, jest on zredukowany do około jednej cząstki na centymetr kwadratowy na minutę [35].

Spośród cząstek wtórnych, najliczniejsze są piony: π^+ , π^- , π^0 . Neutralne mezony π^0 o średnim czasie życia $\tau_{\pi^0} \simeq 10^{-16}$ s [164], niemal natychmiast ulegają rozpadowi na dwa wysokoenergetyczne fotony, które mogą tworzyć pary e^+e^- , tym samym wzmacniając



Rysunek 2.1 Widmo energetyczne promieniowania kosmicznego. Dane pochodzą z kilku eksperymentów. Na rysunku zaznaczono również maksymalne energie osiągnięte w ziemskich laboratoriach - Fermi National Accelerator Laboratory (Fermilab) i CERN. Na podst [12].

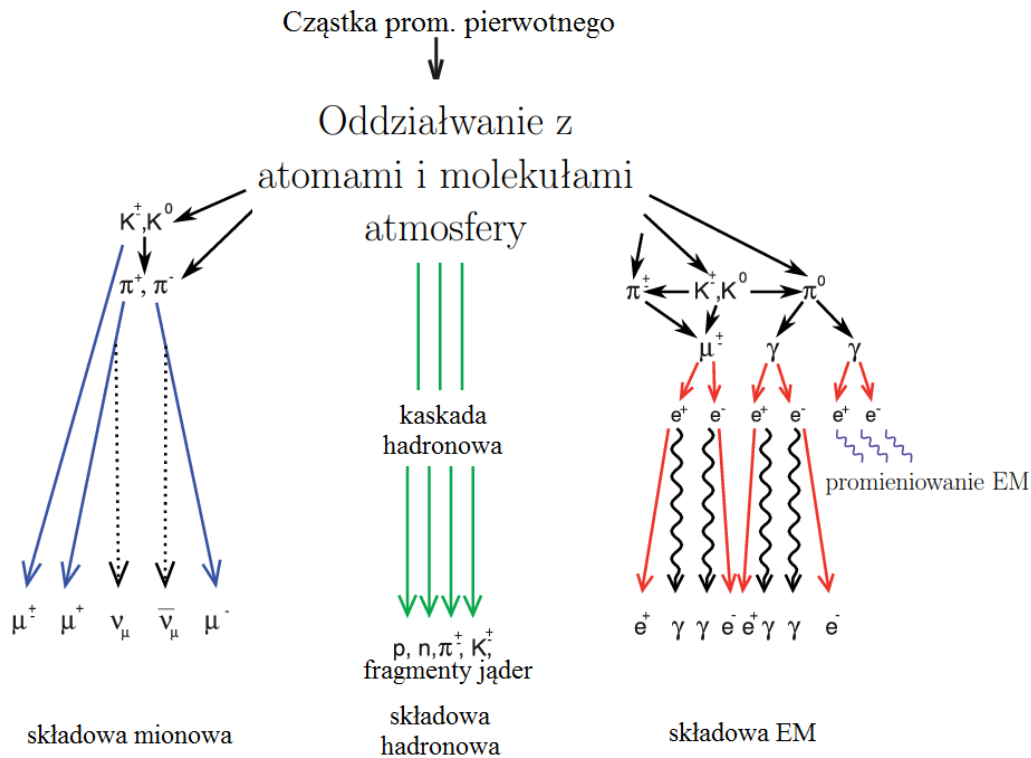
składową elektronowo-fotonową pęków atmosferycznych stanowiącą ok. 30% promieniowania docierającego do powierzchni Ziemi [171]. Piony posiadające ładunek elektryczny: π^+ ($u\bar{d}$) i π^- ($d\bar{u}$) mają znacznie dłuższy średni czas życia $\tau_{\pi^\pm} \simeq 2,6 \cdot 10^{-8}$ s [164], i ulegają zarówno oddziaływaniom silnym jak również rozpadom. Najbardziej prawdopodobnymi są procesy rozpadów na miony i neutrino zgodnie z równaniami 2.2 i 2.3 [30]:

$$\pi^+ = \mu^+ + \nu_\mu \quad (2.2)$$

oraz

$$\pi^- = \mu^- + \bar{\nu}_\mu \quad (2.3)$$

Rozpady te zwiększają liczbę mionów, które z łatwością penetrują niższe warstwy atmosfery oraz neutrino (jeszcze słabiej oddziałujących z materią). Pomimo krótkiego czasu



Rysunek 2.2 Schemat produkcji cząstek w pęku atmosferycznym. Cząstka promieniowania pierwotnego (przeważnie proton) oddziałuje silnie z atomami powietrza i generuje kaskady cząstek, podlegających kolejnym oddziaływaniom lub rozpadom. Składowa EM - składowa elektromagnetyczna. Na podst [77].

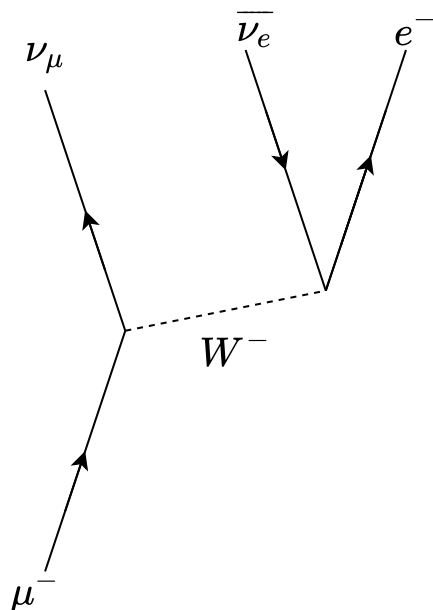
życia mionów ($\tau_\mu = 2,2 \cdot 10^{-6}$ s [164]), większość z nich dociera do powierzchni Ziemi dzięki zjawisku dylatacji czasu (poruszają się z prędkościami relatywistycznymi) i stanowią około 70% wtórnego promieniowania kosmicznego. Dodatkowym kanałem produkcji mionów są rozpady kaonów [30].

Na poziomie morza, strumień cząstek wtórnych składa się z hadronów, neutronów, kwantów gamma, elektronów, mionów, nukleonów i antynukleonów [71], przy czym najliczniejszymi cząstkami naładowanymi są miony. Detekcja tych cząstek jest podstawową rolą osłony aktywnej zbudowanego spektrometru.

2.2 Miony promieniowania kosmicznego

Miony są cząstkami elementarnymi, należącymi do leptonów o ładunku elektrycznym $-1 q_e$ ($+1 q_e$ w przypadku antymionów), spinie połówkowym oraz masie wynoszącej około $105,658 \text{ MeV}/c^2$ (czyli ponad 200 razy większej niż elektron) [84, 164]. Zostały one odkryte przez Carla Andersona i Seta Neddermeyera w 1936 r. w trakcie badań nad promieniowaniem kosmicznym [35]. Początkowo uważano, iż ślady w stosowanej komorze mgłowej pozostawiły wysokoenergetyczne elektrony, ale dokładna analiza zakrzywionych śladów wykazała, że masa tej cząstki leży pomiędzy masą elektronu i protonu. Następnie, odkryte cząstki zostały scharakteryzowane jako „mezony μ ”, podlegające oddziaływaniom silnym, jednak prace M. Conversi, E. Pancini i O. Piccioni [37] wykluczyły tę hipotezę, a dalsze badania wskazały, że miony są cząstkami „zachowującymi” się podobnie jak

ciężkie elektrony i podlegające oddziaływaniom słabym [35]. W związku z tym nazwę „mezon μ ” odrzucono z faktu, iż mezony to cząstki składające się z kwarku i antykwarku oraz podlegające oddziaływaniom silnym.



Rysunek 2.3 Diagram Feynmana rozpadu mionu μ^-

Metry, procesy takie jak emisja promieniowania hamowania (niem. *bremsstrahlung*), produkcja par elektron-pozyton oraz oddziaływania elektromagnetyczne z jądrami atomowymi stają się istotne [30].

Rysunek 2.4 przedstawia widmo energetyczne mionów poruszających się z kierunku pionowego (kąt zenitalny $\theta = 0$) mierzone na poziomie morza. Punkty reprezentują dane pomiarowe uzyskane w różnych eksperymentach, natomiast za pomocą krzywych przedstawiono wyniki obliczeń teoretycznych [178]. Średnia energia mionów, mierzona na poziomie morza wynosi około 4 GeV [192].

Natężenie strumienia mionów docierających do powierzchni Ziemi wykazuje zależność od kąta zenitalnego padającej cząstki. Rysunek 2.5 przedstawia rozkład kątowy intensywności strumienia mionów względem kierunku wertykalnego. Dla niskoenergetycznych mionów, wraz ze wzrostem kąta zenitalnego następuje spadek intensywności ich strumienia spowodowany

Jak wspomniano wyżej, miony są cząstkami nietrwałymi i ulegają rozpadom wg równań 2.4 i 2.5 [164]:

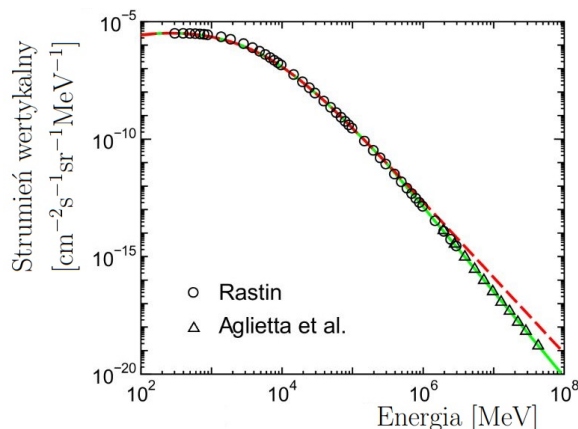
$$\mu^+ = e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu \quad (2.4)$$

oraz

$$\mu^- = e^- + \bar{\nu}_e + \nu_\mu \quad (2.5)$$

Rysunek 2.3 przedstawia diagram Feynmana rozpadu mionu.

Miony, które nie ulegną rozpadowi, poruszając się w atmosferze, tracą energię na skutek szeregu procesów oddziaływania z materią. Dla mionów o energiach mniejszych od około 500 GeV, jonizacja ośrodka jest dominującym procesem strat energii [30, 135]. Natomiast dla mionów o wyższych energiach, mogących penetrować Ziemię na głębokościach rzędów kilometrów, procesy takie jak emisja promieniowania hamowania (niem. *bremsstrahlung*), produkcja par elektron-pozyton oraz oddziaływania elektromagnetyczne z jądrami atomowymi stają się istotne [30].



Rysunek 2.4 Widmo energetyczne mionów. Punkty reprezentują dane pomiarowe, natomiast linie przedstawiają wyniki uzyskane przy pomocy modelu *PHITS-based Analytical Radiation Model in the Atmosphere (PARMA) version 4.0*. Na podst. [178]

wzrostem grubości warstwy atmosfery (drogi jaką muszą pokonać miony od miejsca kreacji do poziomu morza) co zwiększa prawdopodobieństwo ich rozpadu lub absorpcji. W przypadku cząstek wysokoenergetycznych sytuacja jest odwrotna. Piony i kaony powstające na skutek oddziaływań pierwotnego promieniowania kosmicznego z górnymi warstwami atmosfery, mogą ulegać rozpadom lub oddziaływać silnie z materią. To, który proces dominuje, zależy od energii cząstki oraz gęstości atmosfery wzdłuż jej trajektorii. Ponieważ szybkość zmian gęstości atmosfery maleje wraz z odchyleniem od kierunku wertykalnego, cząstki te - piony i kaony, pokonują dłuższą drogę w rzadszym ośrodku, co zwiększa prawdopodobieństwo ich rozpadu, a tym samym powoduje wzrost liczby mionów [30, 71].

Natężenie strumienia mionów w funkcji kąta zenitalnego, mierzone na poziomie morza, można ogólnie przedstawić jako zależność:

$$I(\theta) = I(0^\circ) \cos^{n(p)}(\theta) \quad (2.6)$$

gdzie:

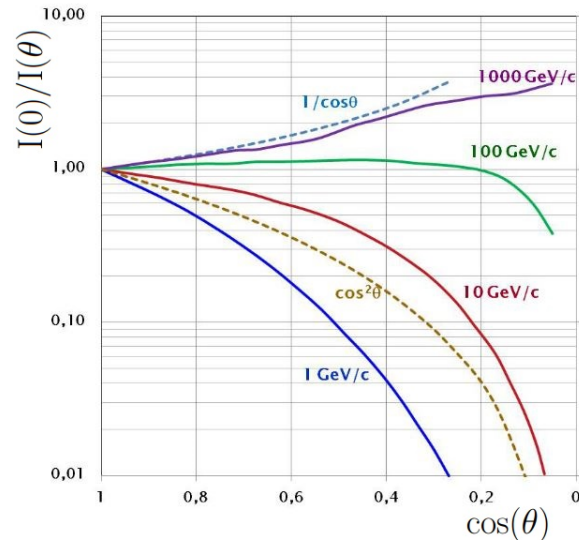
θ - kąt zenitalny,

$n(p)$ - wykładnik zależny od pędu cząstki,

$n \approx 2$ dla mionów o energii rzędu kilku GeV [30, 71, 84].

Ponadto wertykalny strumień mionów zależy od następujących wielkości [30]:

- szerokość geomagnetyczna - ziemskie pole magnetyczne wpływa na trajektorie cząstek pierwotnego i wtórnego promieniowania kosmicznego, powodując ich odchylenie od pierwotnego kierunku, co jest szczególnie istotne w przypadku niskoenergetycznych cząstek,
- aktywność słoneczna - wpływająca na widmo pierwotnego promieniowania kosmicznego,
- wysokość nad poziomem morza - wyrażająca zależność strumienia mionów od wysokości nad poziomem morza, na jakiej rejestrowane jest promieniowanie, zależna również od pędu cząstek,
- warunki atmosferyczne - wraz ze zmianami temperatury i ciśnienia, zmianom ulega strumień mionów, przy czym może on zostać zarówno osłabiony jak i wzmocniony. Wraz ze wzrostem temperatury, gęstość powietrza spada, co zmniejsza prawdopodobieństwo oddziaływania pionów i kaonów z materią, zwiększając prawdopodobieństwo ich rozpadu na miony. Z drugiej strony, zwiększenie objętości atmosfery wydłuża drogę jaką muszą



Rysunek 2.5 Rozkład kątowy intensywności strumienia mionów względem kierunku wertykalnego. Ogólna zależność strumienia mionów od kąta zenitalnego θ dla mionów rejestrowanych na poziomie morza jest proporcjonalna do $\cos^2(\theta)$ co odpowiada energii mionów około 3 GeV. Wraz ze wzrostem energii, rozkład wypłaszcza się, aż staje się proporcjonalny do funkcji $1/\cos(\theta)$ dla energii rzędu TeV. Dla dużych wartości kąta zenitalnego, miony o niskich energiach ulegają rozpadom przed dotarciem do powierzchni Ziemi, a wysokoenergetyczne piony i kaony rozpadają się m.in na miony, co skutkuje wzrostem średniej energii mionów rejestrowanych na poziomie morza. Na podst. [30]

pokonać miony od miejsca powstania do detektora, co powoduje wzrost liczby ich rozpadów [42, 180, 181]. Ten drugi efekt jest dominujący w przypadku niskoenergetycznych mionów. Dla cząstek o wysokich energiach, korelacja liczby mionów i wzrostu temperatury jest dodatnia [30]. Ze względu na fakt, iż gęstość powietrza jest przeważnie większa przy gruncie, zmiany ciśnienia przy powierzchni Ziemi wpływają na intensywność rejestrowanego strumienia mionów. Wraz ze wzrostem ciśnienia, a tym samym gęstości powietrza, wzrasta prawdopodobieństwo rozproszeń oraz absorpcji mionów co powoduje spadek liczby cząstek rejestrowanych przez detektory [41, 45].

2.3 Detekcja promieniowania kosmicznego

Metody detekcji promieniowania kosmicznego można podzielić na bezpośrednie oraz pośrednie, w zależności od energii i rodzaju rejestrowanego promieniowania. W obu przypadkach wykorzystuje się zarówno pasywne jak i aktywne detektory promieniowania.

Bezpośrednie metody detekcji promieniowania kosmicznego, polegają na detekcji i identyfikacji cząstek promieniowania pierwotnego przez detektory umieszczone powyżej ziemskiej atmosfery np. na pokładzie Międzynarodowej Stacji Kosmicznej, w satelitach lub balonach stratosferycznych [182]. Przykładami wykorzystywanych technik badawczych mogą być: zliczanie śladów cząstek promieniowania kosmicznego utworzonych w detektorze polimerowym, pomiary energii promieniowania z wykorzystaniem spektrometrów magnetycznych, detektorów Czerenkowa oraz kalorymetrów.

Badania pośrednie, prowadzone na powierzchni Ziemi, opierają się na detekcji wtórnego promieniowania kosmicznego i skupiają się na rekonstrukcji i interpretacji pęków atmosferycznych, głównie ich składowej elektromagnetycznej i mionowej, ale też hadronowej, oraz fotonów promieniowania Czerenkowa [182]. W celu rejestracji tego promieniowania wykorzystuje się m.in. wspomniane wcześniej detektory Czerenkowa, scyntylatory, komory Wilsona i pęcherzykowe. Najczęściej stosowane metody rejestracji promieniowania to macierze składające się z dużej liczby detektorów (np. scyntylatorów lub tzw. zbiorników Czerenkowa) rozlokowanych na dużej powierzchni (rzędu setek tysięcy m^2) oraz teleskopy rejestrujące fotony promieniowania Czerenkowa lub fotony fluorescencji emitowane przez molekuly azotu. Obserwatoria stosujące tego typu detektory promieniowania kosmicznego to między innymi Obserwatorium Pierre Auger w Argentynie [5] oraz Telescope Array Project w Stanach Zjednoczonych Ameryki [3].

Inne podejście zostało wykorzystane w projekcie CREDO (Cosmic Ray Extremely Distributed Observatory) [86, 87] zapoczątkowanym w IFJ PAN, które polega na wykorzystaniu układów elektronicznych (matryce CMOS) wbudowanych we współczesne telefony komórkowe i tablety, do rejestracji śladów cząstek wtórnego promieniowania kosmicznego. Ideą projektu jest zaangażowanie jak największej liczby uczestników, co pozwoli zbudować system detektorów pokrywający znaczne obszary kuli ziemskiej.

W chwili, gdy cząstka wtórnego promieniowania kosmicznego, penetruje układ elektroniczny aparatu fotograficznego wbudowanego w urządzenie mobilne, może dojść do pobudzenia niektórych jego pikseli, co jest rejestrowane przez zainstalowaną aplikację, a informacja o detekcji przesyłana jest do zewnętrznych baz danych [86].

Rozdział 3

Półprzewodnikowa spektrometria promieniowania γ

Spektrometria promieniowania gamma jest metodą badawczą polegającą na wyznaczeniu widma energetycznego promieniowania gamma czyli rozkładu liczby rejestrowanych fotonów w funkcji ich energii. Umożliwia ona badanie substancji promieniotwórczych i zjawisk fizycznych w różnorodnych dziedzinach nauki, przemysłu i medycyny. Analiza tworzonych widm pozwala na identyfikację jakościową i ilościową izotopów gamma - promieniotwórczych obecnych w badanych próbkach.

W niniejszym rozdziale zaprezentowane zostaną informacje na temat półprzewodnikowej spektrometrii promieniowania γ , takie jak: opis stosowanych detektorów, elektroniki torów spektrometrycznych, osłon spektrometrów (zarówno biernych jak i czynnych) oraz metody kalibracji.

3.1 Detektory półprzewodnikowe

Detektory półprzewodnikowe można rozważać jako zaporowo spolaryzowane złącza p-n (diody), gdzie obszar zubożony jest objętością czynną detektora. Detektory tego rodzaju znalazły szerokie spektrum zastosowań w spektrometrii promieniowania gamma dzięki bardzo dobrej energetycznej zdolności rozdzielczej. Wynika to z najniższej energii potrzebnej na kreację pojedynczej pary nośników ładunków ϵ_{pair} (rzędu kilku elektronowoltów), spośród stosowanych detektorów promieniowania jonizującego. Dla porównania, w przypadku detektorów gazowych $\epsilon_{pair} \sim 30$ eV, natomiast dla detektorów scyntylacyjnych energia konieczna do powstania jednego nośnika informacji - fotoelektronu, wynosi ok. 100 eV [43, 107]. Materiały półprzewodnikowe wykorzystywane do produkcji detektorów to m.in. Si, Ge, GaAs, CdTe, CdZnTe i HgI₂ [50]. Krzem znalazł zastosowanie w spektroskopii promieniowania X i cząstek naładowanych, jednak ze względu na niską liczbę atomową ($Z = 14$), charakteryzuje się względnie niską wydajnością rejestracji kwantów γ . Z kolei GaAs, CdTe, CdZnTe i HgI₂, mają wyższe Z od krzemu, jednak dotychczas nie udało się wytworzyć kryształów o objętości większej niż kilka cm³, przez co nie nadają się do badań promieniowania gamma o energiach większych od kilkudziesięciu keV.

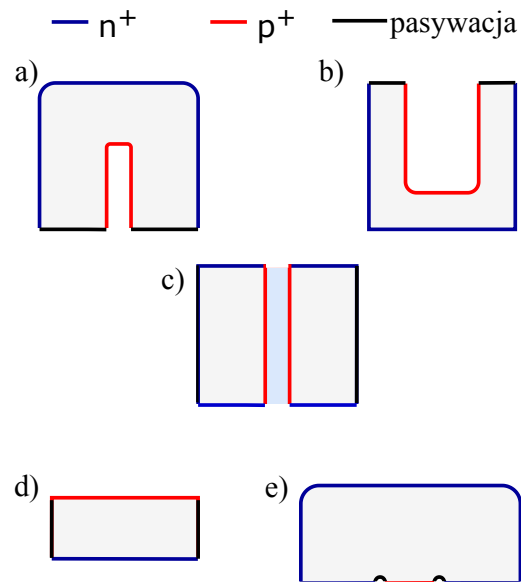
Materiałem najlepiej spełniającym wymagania spektrometrii promieniowania gamma,

a przez to najczęściej wykorzystywanym jest german. Posiada on wąską przerwę energetyczną (0,7 eV) oraz energię $\epsilon_{pair,Ge} = 2,96$ eV [107], co skutkuje dużą liczbą tworzonych par elektron-dziura w pojedynczym akcie jonizacji. Właściwości te znacznie redukuje fluktuacje statystyczne i poprawiają zdolność rozdzielczą, która może być nawet kilkukrotnie lepsza niż w przypadku innych półprzewodników (np. CdTe) [107]. Ponadto, rozwój technik produkcji kryształów germanu (przy użyciu metody Czochralskiego) umożliwia otrzymywanie detektorów o średnicach nawet ponad 10 cm. Nie mniej jednak, podstawową wadą wynikającą z niewielkiej szerokości przerwy energetycznej jest potrzeba chłodzenia detektorów germanowych do temperatury < 110 K. W tym celu najczęściej wykorzystywany jest ciekły azot (LN_2). Powoduje to redukcję zjawiska termicznego wzbudzenia elektronów do pasma przewodnictwa, a tym samym pozwala utrzymać wysoką energetyczną zdolność rozdzielczą [50].

W latach 60 XX w. na rynku pojawiły się detektory germanowe dryfowane litem ($Ge(Li)$), który pełni rolę donora w strukturze germanu, kompensując nadmiar naturalnie występujących zanieczyszczeń akceptorowych w Ge. Pozwala to rozszerzyć obszar zubożony z kilku milimetrów do kilku centymetrów szerokości. Główną wadą tych detektorów była jednak konieczność ich ciągłego przechowywania w temperaturze ciekłego azotu, spowodowana wysoką mobilnością litu w temperaturze pokojowej, mogącą doprowadzić do zachwiania równowagi domieszek w kryształach.

Problem ten został rozwiązany w późnych latach 70., dzięki rozwojowi technik wytwarzania kryształów germanu o wysokiej czystości (ang. *High-Purity Germanium* - *HPGe*) i koncentracji zanieczyszczeń na poziomie 10^{10} cm^{-3} . Tak wysoką czystość kryształu uzyskuje się poprzez zastosowanie techniki czyszczenia strefowego (ang. *zone refining*) [66]. Pozwoliło to uzyskać obszar zubożony w całej objętości kryształu bez ryzyka przekroczenia granicy przebicia przez napięcie polaryzujące [107]. Detektory HPGe mogą być wytwarzane zarówno z półprzewodnika typu p jak i n, w odróżnieniu od detektorów $Ge(Li)$, które muszą być wytwarzane z materiału typu p. Ponadto, wymagają one chłodzenia jedynie w czasie pracy.

Kontakty w detektorach HPGe wykonywane są poprzez implantację boru z jednej strony i dyfuzję litu z drugiej, przy czym w materiale typu p, kontakt zawierający Li



Rysunek 3.1 Najpopularniejsze geometrie detektorów HPGe: a) koaksjalna, b) studzienkowa, c) w pełni koaksjalna (ang. *true-coaxial*), d) planarna, e) BEGe. Wszystkie konfiguracje detektorów wykonane są z kryształu typu p. Na rysunku zaznaczono kontakty, jak również obszary pokryte warstwą izolatora (pasywacja). Na podst. [50, 66]

tworzy złącze pn, którego obszar zubożony ograniczony jest przez kontakt implantowany borem. W detektorach typu n sytuacja jest odwrotna. Rysunek 3.1 przedstawia najczęściej spotykane kształty detektorów germanowych: koaksjalny (cylindryczny), studzienkowy, w pełni koaksjalny (ang. *true-coaxial*), planarny oraz BEGe (ang. *Broad Energy Germanium*).

Wybór odpowiedniego typu detektora podyktowany jest charakterem planowanego eksperymentu (energia kwantów gamma emitowanych przez izotopy zawarte w badanej próbce, oczekiwana wydajność lub stosowana geometria pomiarowa). W ostatnim czasie popularność zyskują detektory typu BEGe, posiadające możliwość rejestracji promieniowania γ w szerokim zakresie energetycznym (od 3 keV do 3 MeV), jak również odpowiednio wysoką wydajność (szczególnie dla nisko energetycznych kwantów γ) i zdolność rozdzielczą. Cechy te zostały osiągnięte dzięki odpowiednim wymiarom kryształu (zapewniającym bardziej jednorodny rozkład pola elektrycznego, w porównaniu do innych geometrii), dużej objętości czynnej detektora (osiągane średnice rzędu 10 cm) oraz doborowi materiału, z którego wykonane jest okienko detektora [149].

Ze względu na szerokie zastosowanie detektorów HPGe (również w niniejszej rozprawie), informacje przedstawione w dalszej części, rozdziału dotyczyć będą właśnie tego typu detektorów.

3.1.1 Generacja sygnału w detektorze HPGe

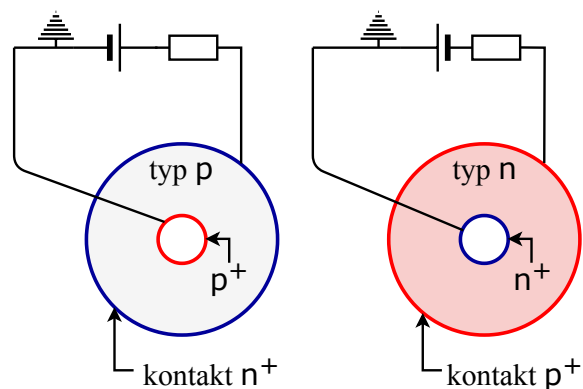
Promieniowanie gamma, penetrujące obszar zubożony detektora, oddziałuje z kryształem detektora (głównie poprzez zjawiska opisane w 1.3.1) co prowadzi przede wszystkim do powstawania elektronów i pozytonów, które następnie ulegając kolejnym rozproszeniom, tracą energię powodując tworzenie par elektron-dziura, których liczba jest proporcjonalna do energii promieniowania zdeponowanej w detektorze.

W wyniku tego procesu, elektrony przenoszone są do pasma przewodnictwa, w skutek czego w paśmie walencyjnym powstają nośniki o ładunku dodatnim - dziury elektronowe. Ładunki te, pod wpływem przyłożonego napięcia polaryzującego detektor, dryfują w kierunku elektrod - elektrony do elektrody n^+ natomiast dziury do elektrody p^+ (Rysunek 3.2). Powstały ruch ładunków tworzy impuls prądowy, którego wielkość można opisać za pomocą teorii Ramo-Shockley'a [80, 113]:

$$i_k(t) = \pm q_k v_k \cdot \vec{E}_0(\vec{x}), \quad \vec{x} = \vec{x}(t) \quad (3.1)$$

gdzie:

i_k - prąd mierzony na k -tej elektrodzie zbiorczej wytworzony przez ruch k -tej składowej nośników ładunku (elektrony lub dziury),



Rysunek 3.2 Przekrój poprzeczny detektorów HPGe (typ koaksjalny) wraz z konfiguracją elektrod. Na podst. [107]

q_k - k -ta składowa całkowitego ładunku wytworzonego przez promieniowanie jonizujące,
 \vec{v}_k - prędkość chwilowa k -tej składowej ładunku zależna od amplitudy pola elektrycznego w danym punkcie,

$\vec{E}_0(\vec{x})$ - rozkład natężenia pola elektrycznego w danym punkcie \vec{x} , wytworzone przez napięcie polaryzujące detektor po usunięciu ładunku przestrzennego q wewnątrz detektora i uziemionych pozostałych elektrodach.

Analizy indukowanych impulsów prądowych przeprowadza się dla konkretnych typów i konfiguracji detektorów, często z wykorzystaniem metod symulacji komputerowych.

Na kształt generowanych impulsów wpływ ma miejsce wytworzenia nośników ładunków, a tym samym czas potrzebny na dotarcie elektronów e i dziur d do odpowiednich elektrod. Czas ten zależy od odległości jaką muszą przebyć ładunki oraz od ich mobilności $\mu_{e,d}$ określanej wzorem:

$$\mu_{e,d} = \frac{v_{e,d}}{E}, \quad (3.2)$$

gdzie:

v - szybkość dryfu elektronów lub dziur w [m/s],

E - wartość natężenia pola elektrycznego w [V/m].

W przypadku detektorów germanowych mobilność nośników ładunków - elektronów i dziur, różni się o ok. 15%. Dla porównania, w przypadku detektorów gazowych, gdzie nośnikami ładunku są elektrony i dodatnie jony, różnica ta wynosi nawet kilka rzędów wielkości [66].

Fakt zależności kształtu generowanego impulsu od miejsca interakcji promieniowania gamma w objętości czynnej detektora pozwala również na rozróżnienie impulsów generowanych przez oddziaływania punktowe (ang. *single-site event*) od oddziaływań zachodzących w wielu punktach detektora (ang. *multi-site event*).

Wygenerowane na elektrodach zbiorczych sygnały poddawane są dalszemu przetwarzaniu z wykorzystaniem komponentów elektronicznych (opisanych w następnych rozdziałach) w celu otrzymania informacji spektrometrycznych - energii promieniowania zdeponowanej w detektorze jak również czasu rejestracji danego impulsu.

3.1.2 Rozdzielczość energetyczna

Wspomnianą na wstępie, cechą wyróżniającą detektory germanowe jest ich wysoka zdolność rozdzielcza, która pozwala na rozróżnienie blisko położonych linii widmowych, które są nierozróżnialne na przykład przy pomocy detektorów NaI(Tl). Szerokość połówkową linii widmowej FWHM (ang. *Full Width at Half Maximum*, W_{FWHM}) można przedstawić za pomocą wzoru 3.3 [107]:

$$W_{FWHM}^2 = W_s^2 + W_c^2 + W_e^2 \quad (3.3)$$

gdzie:

W_s - czynnik uwzględniający statystyczny rozrzut liczby nośników ładunku utworzonych w akcie jonizacji,

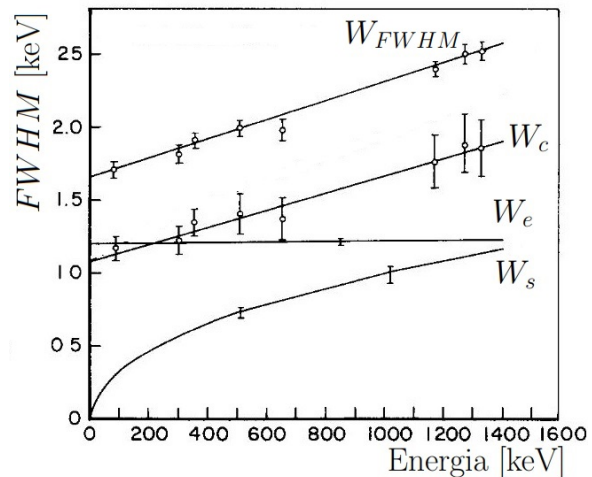
W_c - czynnik uwzględniający fluktuacje wydajności zbierania ładunków,

W_e - czynnik uwzględniający szumy elektroniczne.

Czynnik statystyczny W_s wyraża się wzorem:

$$W_s = \sqrt{2,35\mathcal{F}\epsilon_{pair}E_\gamma} \quad (3.4)$$

gdzie \mathcal{F} to czynnik Fano uwzględniający korelację między konkurencyjnymi procesami kreacji par, a drganiami sieci krystalicznej Ge, natomiast E_γ to energia kwantu gamma. Dotychczas nie wyznaczono dokładnej wartości czynnika Fano, w związku z tym jego wartość estymowana jest na poziomie 0,1 [50]. Kolejny czynnik, W_c - odpowiada za wpływ niekompletnego zbierania ładunków na zdolność rozdzielczą i staje się czynnikiem dominującym dla detektorów o dużej objętości i niskim potencjale polaryzującym [107]. Szumy elektro-



Rysunek 3.3 Zdolność rozdzielcza detektora HPGe w funkcji energii promieniowania γ . Przedstawiono udział poszczególnych czynników wpływających na FWHM: W_s , W_c i W_e . Na podst. [161]

niki przetwarzającej impulsy elektryczne uwzględniane są poprzez czynnik W_e , którego główną składową są szumy generowane przez przedwzmacniacz ładunkoczuły. Ładunek wygenerowany poprzez interakcję promieniowania γ z kryształem Ge jest wzmacniany za pomocą tranzystora FET (ang. *Field-Effect Transistor*), co powoduje również wzmocnienie ewentualnych szumów, a tym samym pogorszenie zdolności rozdzielczej. Rysunek 3.3 przedstawia zależność szerokości połówkowej detektora germanowego w funkcji energii promieniowania γ wraz z podziałem na poszczególne składowe opisane w równaniu 3.3. Dla niskich energii, głównymi czynnikami są szumy elektroniczne oraz fluktuacje wydajności zbierania ładunków, przy czym wraz ze wzrostem energii, zwiększa się wpływ czynnika statystycznego na ostateczną zdolność rozdzielczą detektora.

3.2 Elektronika spektrometryczna

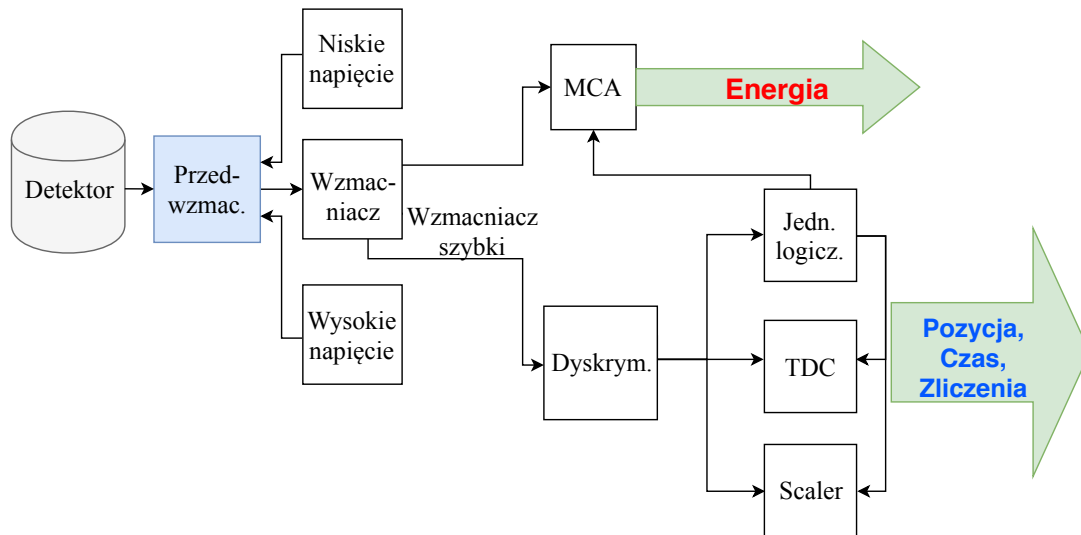
3.2.1 Analogowe przetwarzanie sygnału

Sygnałem wyjściowym z detektora jest ładunek elektryczny proporcjonalny do energii promieniowania gamma zdeponowanej w objętości czynnej detektora. Podstawowym zadaniem elektroniki spektrometrycznej jest zebranie tego ładunku, analiza oraz uzyskanie pożądaných informacji. Rysunek 3.4 przedstawia schemat analogowego toru spektrometrycznego stosowanego w gamma-spektrometrii.

Zasilacz wysokiego napięcia zapewnia odpowiednią polaryzację detektora, natomiast źródło niskiego napięcia służy do zasilania przedwzmacniacza.

Przedwzmacniacz

Układ przedwzmacniacza stanowi interfejs między detektorem a wzmacniaczem i służy zbieraniu ładunku wygenerowanego w detektorze i przemiany go na impuls napięciowy o wysokości proporcjonalnej do ilości tego ładunku (a tym samym do zdeponowanej



Rysunek 3.4 Schemat analogowego toru spektrometrycznego. Na podst. [28, 66]

energii promieniowania gamma). Umożliwia to przesył i dalszą obróbkę słabego sygnału z detektora. W wysokorozdzielczej gamma-spektrometrii, zastosowanie znalazły przede wszystkim przedwzmacniacze ładunkoczułe. Impuls wyjściowy przedwzmacniacza cechuje krótki czas narastania ($0,1 - 0,5 \mu s$, determinowany przez czas zbierania ładunków w kryształach detektora) oraz eksponencjalnie zanikająca krawędź opadająca (zwykle w czasie $50 - 200 \mu s$).

Wzmacniacz

Kształt sygnału wyjściowego przedwzmacniacza jest nieodpowiedni dla pomiarów jego wysokości, ze względu na krótki czas narastania. Ponadto, długi czas jego zaniku powodowałby częste występowanie zjawiska spiętrzania (ang. *pile-up*) następujących po sobie impulsów (Rysunek 3.5).

Głównym zadaniem wzmacniacza, oprócz wzmocnienia sygnału, jest zmiana kształtu jego przebiegu (stąd czasami określany jest on jako wzmacniacz kształtujący), tak aby sprostał opisanym wymaganiom. Ponadto, komponent ten posiada inne funkcje poprawiające parametry sygnału spektrometrycznego, takie jak równoważenie par biegun-zero (ang. *pole-zero cancellation*) czy odrzucanie przypadków spiętrzania sygnału (ang. *pile-up rejection*).

- Kształtowanie impulsu

Do celów spektrometrii promieniowania gamma najczęściej wykorzystuje się wzmacniacze używające filtru semi-gaussowskiego składającego się z jednego komponentu różniczkującego (filtr górnoprzepustowy) i kilku elementów całkujących (filtr dolnoprzepustowy). Obecnie często wykorzystuje się układy aktywne (wzmacniacze operacyjne) zamiast pasywnych filtrów $CR-RC^n$ (n zwykle przyjmuje wartość 2 lub 4) [107].

Dodanie kolejnego stopnia różniczkującego w układzie kształtującym powoduje generację impulsu bipolarnego, posiadającego zarówno część dodatnią (powyżej poziomu odniesienia) jak i ujemną. Ze względu na większy udział szumów (w porównaniu do sygnału semi-gaussowskiego), ten typ impulsów nie jest wykorzystywany rutynowo w spek-

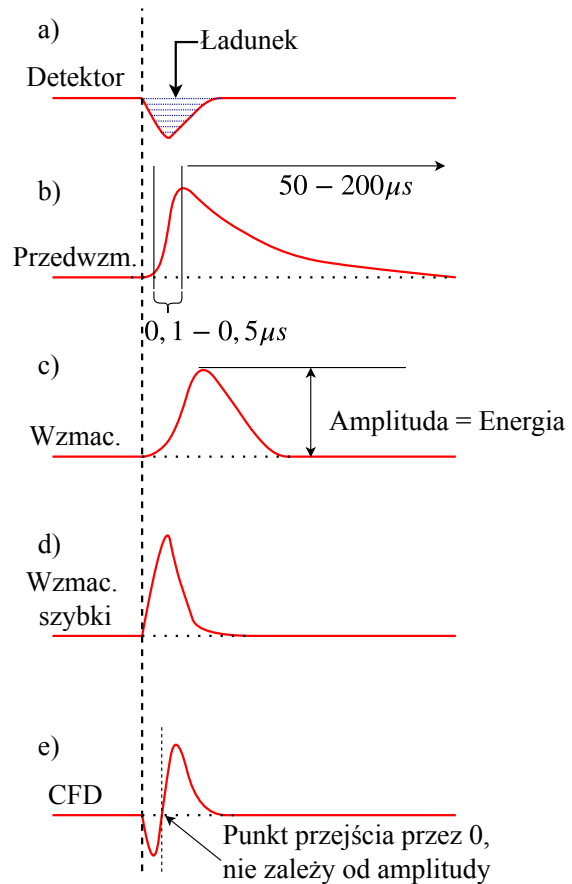
trometrii promieniowania γ , ale znajduje zastosowanie, gdy istotne jest określenie czasu przyścia impulsów (poprzez wyznaczenie punktu przejścia przez zero) [66].

- Równoważenie par biegun-zero

Długi, ale skończony czas zaniku sygnału z przedwzmacniacza powoduje, że impuls po przejściu przez filtry kształtujące opada poniżej wartości odniesienia - pojawia się przerzut ujemny (ang. *undershoot*). Zjawisko to może niekorzystnie wpłynąć na zdolność rozdzielczą spektrometru, ponieważ następne sygnały będą powstawać poniżej właściwej wartości odniesienia i ich amplitudy będą zaniżane. Problem ten może być skorygowany poprzez równoważenie par biegun-zero. Określenie *biegun-zero* odnosi się do funkcji przejścia (transmitancji operatorowej) czyli stosunku transformat Laplace'a sygnału wyjściowego i sygnału wejściowego. Biegunami układu (wartościami własnymi) nazywamy pierwiastki równania charakterystycznego, czyli mianownika transmitancji przyrównanego do zera, natomiast zera układu to pierwiastki licznika. Występowanie biegunów powoduje powstawanie zjawiska przerzutu sygnału. Rozwiązaniem problemu, w najprostszyc przypadkach, jest włączenie opornika o zmiennej rezystancji równoległe do kondensatora w układzie filtru różniczkującego [160]. Ustalenie odpowiedniej rezystancji pozwala na usunięcie bieguna funkcji przenoszenia i osiągnięcie prawidłowego powrotu sygnału do wartości odniesienia (przykładowe rozwiązania dla filtrów CR można znaleźć w [107]).

- Odrzucanie przypadków zjawiska pile-up

Zjawisko spiętrzania impulsów znane również jako zjawisko koincydencji przypadkowych występuje, gdy dwa lub więcej kwantów gamma jest rejestrowanych niemal jednocześnie. Jeśli impulsy te pojawiają się w czasie trwania impulsu wyjściowego wzmacniacza spektroskopowego, nie zostaną zidentyfikowane jako oddzielne sygnały co spowoduje zniekształcenie sygnału wyjściowego w stopniu zależnym od opóźnienia między impulsami. Może to prowadzić do poszerzenia piku absorpcji fotoelektrycznej (foto-piku) kwantu pierwszego, straty zliczenia w ciągłym tle widma lub pojawieniem się piku sumacyjnego,



Rysunek 3.5 Przebieg sygnałów w analogowym torze spektrometrycznym. a) - sygnał generowany przez detektor, ładunek Q jest proporcjonalny do energii promieniowania γ zdeponowanej w detektorze, b) impuls napięciowy V na wyjściu z przedwzmacniacza, $V \propto Q$, c) impuls semi-gaussowski na wyjściu wzmacniacza kształtującego, d) krótki impuls generowany przez wzmacniacz szybki, e) sygnał bipolarny generowany przez dyskryminator CFD (ang. *Constant fraction discriminator*), którego przejście przez zero nie zależy od amplitudy impulsu wejściowego. Na podst. [28, 66]

będącego sumą energii pochłoniętych kwantów promieniowania. Odrzucanie przypadków pile-up realizowane jest poprzez zastosowanie tzw. **wzmacniacza szybkiego**, który wykorzystując bardzo krótkie stałe czasowe, generuje impulsy o dużym szumie (eliminowane poprzez progi dyskryminatorów), lecz tak szybko jak to tylko możliwe po detekcji sygnału wejściowego („składowa szybka” na Rys. 3.5). Utworzony w ten sposób sygnał, konwertowany jest na impuls logiczny, wyzwalający tzw. interwał kontrolny (ang. *inspection interval*), którego długość jest równa długości impulsu wzmacniacza kształtującego. Jeśli w tym czasie pojawi się kolejny impuls, jest on odrzucany [66, 160].

Wzmacniacz szybki

Wyjście wspomnianego wyżej wzmacniacza szybkiego, przeważnie kierowane jest na dyskryminatory, które dzięki wybranym wartościom progowym sygnału pozwalają odfiltrować generowane szумы. Oprócz odrzucania impulsów spiętrzonych, wzmacniacz szybki umożliwia uzyskanie informacji o czasie rejestracji promieniowania poprzez wykorzystanie konwertera czasowo-cyfrowego (ang. *Time-to-Digital Converter, TDC*) oraz liczby zliczeń przez zastosowanie skalera (ang. *scaler*). Implementacja kolejnych modułów takich jak jednostki logiczne, umożliwia poszukiwanie koincydencji między sygnałami, określanie położenia i trajektorii cząstek czy przekazywanie informacji o kształcie impulsu. Zwykle wzmacniacz szybki jest wbudowany w moduł wzmacniacza kształtującego, a jego sygnał jest wyprowadzany jako oddzielne wyjście na panelu wzmacniacza [28].

Analizator wielokanałowy

Prawidłowo ukształtowane impulsy opuszczające wzmacniacz są sortowane pod względem ich wysokości (a tym samym energii zdeponowanej w detektorze) przez analizator wielokanałowy (ang. *Multi-Channel Analyser, MCA*). Współczesne analizatory są urządzeniami wielofunkcyjnymi umożliwiającymi, oprócz sortowania impulsów, wstępną analizę zbieranych danych, ich przechowywanie oraz wyświetlanie. Podstawowym komponentem MCA jest konwerter analogowo-cyfrowy (ang. *Analog-to-Digital Converter, ADC*), którego wynikiem pracy jest różniczkowe widmo wysokości konwertowanych impulsów przedstawiające histogram liczby impulsów ΔN o danej wysokości ΔH . Najczęściej stosowanymi przetwornikami analogowo-cyfrowymi w tradycyjnej spektrometrii promieniowania jonizującego są przetworniki typu Wilkinsons oraz przetworniki z sukcesywną aproksymacją [66].

W ADC typu Wilkinsons, po przekroczeniu przez impuls wejściowy poziomu progowego, układ rozpoczyna ładowanie kondensatora do chwili wykrycia maksymalnej wartości amplitudy sygnału wejściowego. W tej chwili, ładunek zgromadzony w kondensatorze jest proporcjonalny do wysokości impulsu. Następnie, kondensator jest jednostajnie rozładowywany, z szybkością niezależną od amplitudy sygnału. Czas potrzebny na pełne jego rozładowanie jest proporcjonalny do początkowo zgromadzonego ładunku, a tym samym do wysokości impulsu. Wraz z początkiem rozładowywania kondensatora, otwierana jest bramka i rozpoczynane jest zliczanie impulsów generowanych przez wbudowany zegar. Gdy kondensator rozładuje się, bramka jest zamykana, liczba impulsów jest zliczana, a informacja o wysokości impulsu zapisywana w pamięci [43, 66]. Podstawową wadą tego

rodzaju konwerterów jest zależność czasu pracy od wysokości impulsu oraz konieczność zastosowania zegarów o odpowiednio wysokich częstotliwościach generowanych sygnałów [66].

W drugim typie ADC - konwerterów z sukcesywną aproksymacją, dokonywane jest iteracyjne porównywanie wysokości impulsów wejściowych z napięciem referencyjnym. Proces rozpoczyna się od generacji napięcia równego połowie maksymalnej wartości (zakresu ADC) i jego porównaniu z sygnałem wejściowym. Algorytm układu ustawia wartość bitu słowa danych na 1 jeśli wygenerowane napięcie referencyjne jest mniejsze od sygnału wejściowego. W przeciwnym wypadku bit słowa przyjmuje wartość 0. Następnie generowany jest kolejny impuls o wysokości równej połowie impulsu poprzedniego, a ich łączna wysokość porównywana jest znów z napięciem wejściowym. Jeśli jest od niego wyższa to sygnał referencyjny wraca do poprzedniej wartości, a bit słowa ustawiany jest na 0. W przeciwnym wypadku, bit przyjmuje wartość 1, napięcie referencyjne pozostaje bez zmian, a algorytm przechodzi do kolejnej iteracji. Proces ten trwa do momentu, aż ostatnia inkrementacja napięcia odpowiada zmianie o jeden kanał ADC (najmniej znaczący bit). Utworzone słowo danych stanowi cyfrowy odpowiednik wysokości sygnału wejściowego. W odróżnieniu od konwerterów typu Wilkinsona, czas analizy sygnału nie zależy od jego wysokości, co pozwala uzyskać szybszą konwersję sygnału. [43, 66].

Podstawowym parametrem analizatora wielokanałowego jest jego liniowość. W idealnym przypadku zależność między wysokością impulsu, a numerem kanału do którego dane zliczenie jest zakwalifikowane jest relacją liniową o punkcie przecięcia (0,0). Niestabilność pracy aparatury elektronicznej, spowodowana różnorodnymi czynnikami zarówno wewnętrznymi jak i zewnętrznymi, może doprowadzić do odchylenia od tej prostej zależności liniowej. Wyróżnia się dwa typy liniowości analizatorów wielokanałowych - całkową i różniczkową. Pierwsza z nich pozwala wyznaczyć odchylenia od zależności liniowej między wysokością impulsu, a numerem kanału analizatora. Z kolei liniowość różniczkowa jest miarą błędu jednorodności szerokości kanałów analizatora i jest bardziej czułą metodą wyznaczania nieliniowości [107].

W czasie pomiarów gamma-spektrometrycznych użytkownik powinien zwracać uwagę również na inny parametr pracy toru spektrometrycznego, mianowicie na czas martwy (ang. *dead time*, DT). Wielkość ta definiowana jest jako różnica między rzeczywistym czasem trwania pomiaru (ang. *real time*, RT), a tak zwanym czasem żywym (ang. *live time*, LT), czyli czasem w jakim przetwornik ADC może przyjąć i przetworzyć kolejny impuls. Często wielkość tę wyraża się następująco:

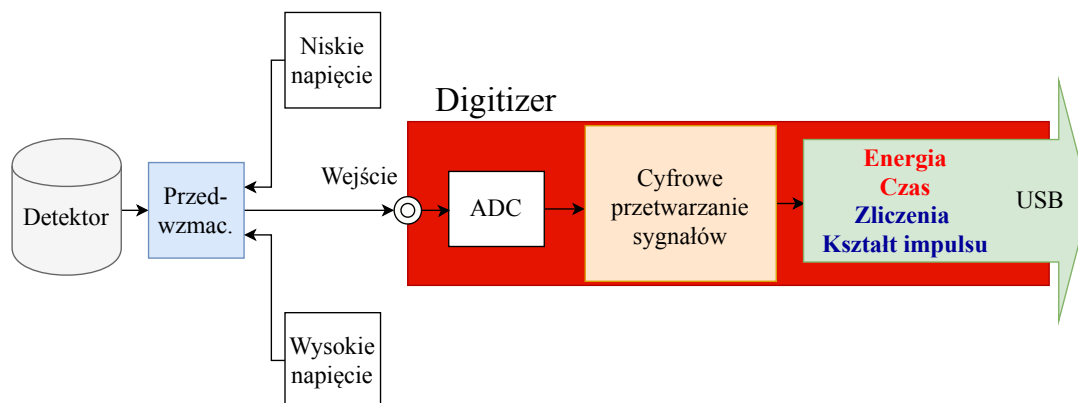
$$\%DT = \frac{RT - LT}{RT} \cdot 100 \quad (3.5)$$

Zależność ta jest szczególnie istotna przy pomiarach materiałów wysokoaktywnych, dla których czas martwy może wynieść nawet kilkadziesiąt procent.

Należy nadmienić, że przedstawiony tutaj opis tradycyjnego, analogowego toru spektrometrycznego zawiera jedynie podstawowe informacje, gdyż spotkać można zarówno bardziej rozbudowane systemy, jak również systemy oparte o inne komponenty elektroniczne.

3.2.2 Cyfrowe przetwarzanie sygnału

Na początku lat dziewięćdziesiątych XX w., dzięki rozwojowi elektroniki cyfrowej i układów cyfrowego przetwarzania sygnałów (w szczególności szybkich konwerterów ADC) zapewniających dobrą energetyczną oraz czasową zdolność rozdzielczą, na rynku pojawiły się systemy cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma. Pozwoliło to na zastąpienie kilku oddzielnych urządzeń elektronicznych tworzących analogowe toru spektrometryczne, jednym, kompaktowym, wielofunkcyjnym urządzeniem (zwanym digitizerem) [47, 68]. Dodatkową zaletą tego typu urządzeń jest możliwość akwizycji danych z kilku detektorów jednocześnie. Rysunek 3.6 przedstawia schemat cyfrowego toru spektrometrycznego.



Rysunek 3.6 Schemat cyfrowego toru spektrometrycznego opartego o konstrukcję digitizera. Na podst. [25]

Konwerter analogowo-cyfrowy

W cyfrowych systemach spektrometrycznych, analogowy sygnał z przedwzmacniacza przesyłany jest bezpośrednio do wejścia digitizera. Pierwszym etapem przetwarzania sygnału jest jego zamiana na reprezentację cyfrową, przy czym kluczowym aspektem są odpowiednie parametry ADC takie jak rozdzielczość czy częstość próbkowania. Obecnie, dzięki rozwojowi konwerterów analogowo-cyfrowych, wykorzystuje się przetworniki o porównaniu bezpośrednim (ang. *flash ADC*) oraz przetworniki potokowe (ang. *pipeline ADC*).

Przetworniki o porównaniu bezpośrednim dokonują jednoczesnego (w trakcie trwania jednego cyklu zegara) porównania wysokości napięcia wejściowego z szeregiem napięć referencyjnych przy pomocy komparatorów. Stany wyjściowe komparatorów, po zakodowaniu stanowią reprezentację bitową sygnału wejściowego. Zaletą tego typu przetworników jest krótki czas przetwarzania (są to najszybsze przetworniki), który jednak jest okupiony koniecznością zastosowania ogromnej liczby komponentów (n -bitowy przetwornik wymaga $2^n - 1$ komparatorów, a zwiększenie rozdzielczości o kolejny bit wymaga podwojenia ich liczby) [10, 165].

Przetwornik analogowo-cyfrowy typu *pipeline* dokonuje konwersji sygnału w kolejnych krokach, a następujące po sobie stopnie przetwarzania połączone są w szereg. W pierwszym kroku, sygnał wejściowy jest próbkowany, zapamiętywany, a następnie porównywany z napięciem referencyjnym. Wynik działania komparatora stanowi jeden bit słowa

wyjściowego. Jeśli napięcie wejściowe jest większe od referencyjnego, bit słowa ustawiany jest na 1, a napięcie referencyjne odejmowane od napięcia wejściowego. W przeciwnym wypadku, bit przyjmuje wartość 0, a sygnałem wyjściowym jest oryginalne, zapamiętane wcześniej napięcie. Następnie sygnał jest mnożony przez 2 i przesyłany do kolejnego stopnia przetwornika. Tego typu przetworniki można rozważać jako ADC z sukcesywną aproksymacją, gdzie każdy krok aproksymacji wysokości sygnału dokonywany jest przez oddzielny układ elektroniczny. Zaletą tego typu ADC jest duża przepustowość, gdyż po przekazaniu sygnału do kolejnego stopnia przetwornika, obecny może rozpocząć przetwarzanie następnego impulsu. Wadą jest fakt, iż całe, n -bitowe słowo uzyskiwane jest dopiero po n cyklach zegara [165].

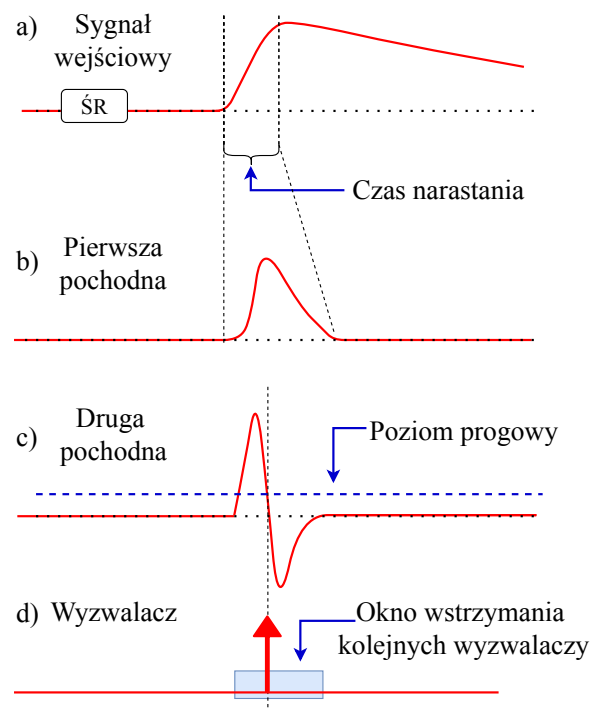
Przeprowadzanie konwersji sygnału analogowego na cyfrowy, na wstępnym etapie przetwarzania („najbliżej detektora jak to tylko możliwe”) pozwala na uniknięcie wprowadzania zniekształceń sygnału na dalszych etapach obróbki (jak ma to miejsce w systemach analogowych np. z powodu zmian temperatury, wilgotności czy fluktuacji napięcia zasilania) co zapewnia jego stabilność [107, 185].

Po przeprowadzeniu cyfryzacji, dane przesyłane są do układu FPGA (ang. *field programmable gate array*) czyli programowalnej macierzy bramek, gdzie następuje cyfrowe przetwarzanie sygnału w czasie rzeczywistym za pomocą odpowiednich algorytmów. Etap ten jest niezbędny, gdyż ilość surowych danych generowanych przez konwerter analogowo-cyfrowy (rzędu setek megabajtów na sekundę) jest za duża, aby można ją było przesłać i analizować z wykorzystaniem komputera PC. Zadaniem układu FPGA jest przeprowadzenie cyfrowej filtracji sygnału w celu redukcji strumienia danych [28, 185].

Najczęściej stosowane są równoległe dwie fazy filtracji: czasowa (ang. *timing filter*) oraz energetyczna (trapezowa, ang. *trapezoidal filter*).

Filtr czasowy

Głównym zadaniem filtru czasowego jest identyfikacja impulsów wejściowych i generacja odpowiadających im sygnałów cyfrowych zwanych wyzwalaczami (ang. *trigger*), kiedy

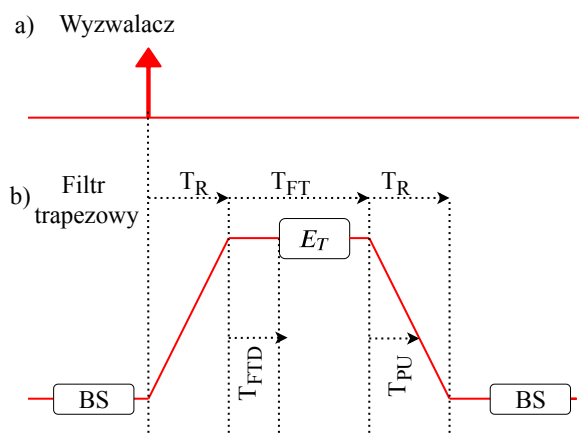


Rysunek 3.7 Przebieg sygnału w cyfrowym filtrze czasowym. a) sygnał wejściowy, ŚR - okno czasowe średniej ruchomej redukującej szum o wysokiej częstotliwości, b) impuls po pierwszym różniczkowaniu (przeprowadzanym w trakcie narastania sygnału wejściowego), usuwającym nieskoczęstotliwościowe składowe sygnału c) sygnał bipolarny po drugim różniczkowaniu, którego przejście przez zero wyznacza czas rejestracji impulsu, zaznaczono również wartość progową sygnału d) sygnał wyzwalający, oraz okno wstrzymania generacji kolejnych wyzwalaczy. Na podst. [25, 28, 73]

sygnał wejściowy przekroczy zadany poziom progowy (w celu odrzucenia przypadków szumu, wartość sygnału musi być większa niż wartość progowa przez kilka kolejnych cykli) oraz wyznaczenie chwili rejestracji sygnału (znacznika czasowego ang. *time stamp*). Rysunek 3.7 przedstawia przebieg sygnału poddanego działaniu algorytmu filtra czasowego. Najczęściej w tym celu wykorzystuje się cyfrowy filtr RC-CR², którego wynikiem jest impuls bipolarny. Filtr ten składa się z trzech komponentów:

- **Składowa całkująca** - filtr wygładzający, oparty o średnią ruchomą, którego zadaniem jest usunięcie szumów o wysokich częstotliwościach, mogących generować fałszywe impulsy wyzwalające,
- **Pierwsza różniczka** - usuwa składowe sygnału o niskich częstotliwościach, różniczkowanie jest realizowane w trakcie trwania krawędzi narastającej sygnału wejściowego,
- **Druga różniczka** - generuje sygnał bipolarny, którego punkt przejścia przez zero (niezależny od amplitudy sygnału) wyznacza czasu rejestracji impulsu [73].

Filtr energetyczny



Rysunek 3.8 Przebieg sygnału w cyfrowym filtrze energetycznym (trapezowym): a) sygnał wyzwalający, b) rekonstrukcja wysokości impulsu wejściowego. BS - (ang. *baseline*) - poziom bazowy sygnału, E_T - okno uśredniające wysokość trapezu T_R - (ang. *Trapezoid Rise time*) - czas narastania sygnału, T_{FT} - (ang. *Trapezoid Flat-Top*) - czas trwania płaskiej części trapezu, T_{FTD} - ang. *Trapezoid Flat-Top Delay* - czas opóźnienia okna wyznaczającego wysokość trapezu, T_{PU} - ang. *Pile-up* - czas trwania obszaru wykrywania przypadków spiętrzenia impulsów. Na podst. [25, 26, 73]

wyznaczającego wysokość trapezu T_{FTD} (ang. *Trapezoid Flat-Top Delay*) od krawędzi

Wysokość impulsu wyznaczana jest za pomocą filtra energetycznego (trapezowego). Algorytm tego filtra polega na transformacji eksponencjalnego zaniku impulsu wejściowego na sygnał trapezowy, którego wysokość jest proporcjonalna do amplitudy impulsu (czyli energii zdeponowanej w detektorze). Filtr trapezowy pełni podobną rolę co wzmacniacz kształtujący w analogowych systemach akwizycji. Rysunek 3.8 przedstawia przebieg sygnału w czasie wykonywania algorytmu filtra energetycznego.

Okno BS reprezentuje średnią ruchomą wyznaczającą poziom bazowy sygnału (ang. *baseline*). Realizowane jest to przez cyfrowe uśrednianie sygnału w chwili kiedy dany kanał analizatora nie jest zajęty, a amplituda trapezu jest mniejsza od określonej wartości progowej. Kolejne parametry akwizycji to: czas narastania trapezu T_R (ang. *Trapezoid Rise Time*) konieczny dla ukształtowania sygnału, czas trwania płaskiej części trapezu T_{FT} (ang. *Trapezoid Flat-Top*), czas opóźnienia okna

narastania, długość trwania okna uśredniającego wysokość sygnału E_T oraz czas kontroli zjawiska pile-up T_{PU} (ang. *Pile-up*), czyli obszaru w czasie trwania którego, jeśli nastąpi spiętrzenie impulsów, sygnał zostanie odrzucony.

To czy dany impuls zostanie zakwalifikowany zależy od spełnienia następujących warunków: wyznaczona energia musi być pomiędzy minimalnym a maksymalnym poziomem progowym oraz w czasie T_{PU} nie może dojść do zjawiska spiętrzenia sygnału.

Należy nadmienić, że przedstawione parametry są wybranymi, podstawowymi wielkościami charakteryzującymi ogólny proces cyfrowego przetwarzania sygnału spektrometrycznego. Liczba parametrów i opcji jakie muszą zostać wybrane, ustalone i zoptymalizowane przed przystąpieniem do wykonywania pomiarów spektrometrycznych, zwykle przekracza 50.

Uzyskane końcowe dane spektrometryczne - czas rejestracji, energia oraz kształt impulsu - przesyłane są do komputera PC, gdzie są zapisywane i mogą być poddane dalszej obróbce off-line. Charakterystyczną cechą cyfrowej akwizycji danych jest oddzielna rejestracja wszystkich danych pomiarowych dla każdego detektora wchodzącego w skład systemu spektrometrycznego. Pozwala to na zastosowanie dowolnych metod analizy danych już po przeprowadzeniu pomiaru. Otwiera to możliwości wykorzystania tych samych danych w różnych eksperymentach. Podsumowując, podstawowe zalety cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma w porównaniu do analogowego odpowiednika są następujące:

- jedno urządzenie dostarcza informacje o czasie, energii i kształcie impulsu, co pozwala zredukować liczbę oddzielnych komponentów toru spektrometrycznego,
- konwersja analogowego sygnału z przedwzmacniacza na reprezentację cyfrową na wejściu analizatora, zapewnia brak wprowadzania zniekształceń na dalszych etapach obróbki danych,
- akwizycja danych dla kilku kanałów (detektorów) analizatora prowadzona jest jednocześnie co umożliwia łatwe wyznaczanie korelacji między nimi (np. tworzenie widm antykoincydencyjnych),
- parametry akwizycji danych zapisywane są na komputerze PC jako pliki konfiguracyjne, dzięki czemu zredukowana zostaje konieczność manualnych regulacji (np. ustalanie wzmocnienia) co zapewnia szybkość, niezawodność i powtarzalność ustawień tych parametrów,
- możliwość budowy *biblioteki* parametrów i dopasowania ich wartości do charakteru planowanych eksperymentów,
- łatwiejszy rozwój i modyfikacje systemu.

Z kolei wady w pełni cyfrowego podejścia do spektrometrii promieniowania gamma to:

- pierwsza konfiguracja i optymalizacja wymaga wiedzy w zakresie cyfrowego przetwarzania sygnałów,
- przesyłanie dużych ilości danych wymaga ciągłego połączenia z PC,

- ogromna ilość danych wymusza wykorzystanie komputerów PC o odpowiednio dobranych parametrach (m.in. pamięci o dużej pojemności i szybkości odczytu oraz procesora o wysokim taktowaniu zegara) zarówno w czasie akwizycji jak i analizy off-line danych, która jest czasochłonna.

3.3 Tło i osłony spektrometru

Obecność izotopów promieniotwórczych w środowisku oraz promieniowania kosmicznego docierającego do powierzchni Ziemi powoduje rejestrację przez detektor germanowy tzw. promieniowania tła, tj. kwantów gamma nie mających swojego źródła w badanym materiale. Charakter widma tła promieniowania zależy od rodzaju tego promieniowania, typu i wielkości detektora oraz stosowanych osłon. W przypadku pomiarów materiałów o małej aktywności, redukcja poziomu tła odgrywa kluczową rolę, pozwalając na osiągnięcie odpowiednio niskich limitów detekcji.

Źródłami tła w spektrometrze są:

- izotopy promieniotwórcze obecne w materiałach, z których wykonany jest detektor i jego osłony,
- zewnętrzne ziemskie promieniowanie gamma (ang. *terrestrial radiation*),
- promieniotwórczość powietrza,
- pierwotne i wtórne promieniowanie kosmiczne oddziałujące z detektorem i elementami osłony,
- tło neutronowe powstałe na skutek oddziaływań promieniowania kosmicznego oraz samorzutnych rozpadów izotopów uranu i toru (np. reakcje (α, n)) [74, 92, 102, 103, 107].

W widmie tła wyróżnia się dwie jego składowe: kontinuum powstające na skutek rozpraszania promieniowania gamma oraz oddziaływań cząstek naładowanych z materią oraz piki fotoelektryczne pochodzące od pełnej absorpcji kwantów gamma emitowanych przez nuklidy obecne w tle (np. linia 1460 keV pochodząca od ^{40}K). Metody redukcji składowych tła spektrometru można podzielić na stosowanie wielowarstwowych osłon biernych i osłon czynnych.

Osłony bierne

Jako osłony bierne przed promieniowaniem gamma, rutynowo wykorzystuje się materiały o dużej gęstości i wysokiej liczbie atomowej. Najczęściej stosowane są osłony wykonane z ołowiu o grubości ok. 10 - 15 cm pozwalające na znaczną redukcję promieniowania tła (zależną od energii kwantów gamma) [159]. Problemem wiążącym się ze stosowaniem komercyjnie dostępnego ołowiu jest obecność ^{210}Pb (o aktywności na poziomie 1 - 2 kBq/kg) pochodzącego z rozpadu izotopów należących do szeregu uranowego, którego prekursor, ^{238}U występuje w rudzie ołowiowej. Czas połowicznego zaniku ^{210}Pb wynosi

22,3 lat i emituje on promieniowanie gamma o energii 46,5 keV. Ponadto, w wyniku jego rozpadu powstaje ^{210}Bi emitujący promieniowanie β ($E_{\beta_{max}} = 1,2 \text{ MeV}$), będące źródłem promieniowania hamowania i wzbudzające promieniowanie charakterystyczne ołowiu. Dodatkowym źródłem promieniowania mogą być zanieczyszczenia pochodzące z opadu promieniotwórczego powstałego m.in. w wyniku przeprowadzania naziemnych i atmosferycznych testów broni jądrowej. Sposobem na rozwiązanie obu powyższych problemów może być stosowanie do budowy osłon spektrometru, ołowiu wytopionego kilkaset lat temu, co pozwala wyraźnie zmniejszyć stężenie aktywności ^{210}Pb (około 1000-krotnie dla ołowiu wytopionego ponad 220 lat temu) oraz zapewnia brak domieszek nuklidów pochodzenia antropogenicznego. Ponadto, oddziaływanie promieniowania kosmicznego z materiałami osłony, może powodować produkcję izotopów promieniotwórczych.

Z faktu, że promieniowanie tła ma złożoną strukturę oraz osłona ołowiana jest źródłem promieniowania charakterystycznego Pb i promieniowania hamowania, koniecznym jest stosowanie wielowarstwowych osłon wewnętrznych spektrometru (ang. *lining*) z materiałów o coraz niższej liczbie atomowej. W tym celu wykorzystuje się np. blachy kadmowe (pochłaniające promieniowanie X, ale wykorzystywane przede wszystkim jako absorbent neutronów, o czym poniżej), blachy miedziane oraz osłony wykonane ze szkła akrylowego [66].

Na poziom tła detektora wpływ ma również obecność izotopów radonu (w szczególności ^{222}Rn oraz ^{220}Rn) i jego pochodnych w powietrzu w pomieszczeniu, w którym znajduje się spektrometr, a tym samym w jego komorze pomiarowej. Niektóre z krótkożyciowych izotopów powstających w wyniku rozpadu radonu są nuklidami gamma-promieniotwórczymi (np. ^{214}Pb , ^{214}Bi czy ^{208}Tl), których rozpady powodują podwyższenie tła spektrometru. Najczęstszymi sposobami redukcji stężenia radonu są: przepływ oparów azotu (pochodzących z naczynia Dewara) lub powietrza wolnego od radonu przez objętość komory pomiarowej spektrometru i/lub uszczelnienie osłony pasywnej.

Składowa neutronowa promieniowania tła wpływa na widmo spektrometru poprzez reakcje rozpraszania oraz wychwytu neutronów w detektorze i jego osłonie powodujące emisję kwantów gamma. W celu redukcji tych zjawisk należy, w pierwszej kolejności dokonać moderacji neutronów poprzez zastosowanie zewnętrznych osłon spektrometru wykonanych z materiałów o niskiej liczbie atomowej, najczęściej zawierających wodór (np. woda) i/lub węgiel (np. parafina). Neutrony podlegają reakcjom wychwytu zarówno w samych warstwach moderujących (np. reakcje $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$, $E_\gamma = 2,2 \text{ MeV}$) jak również w wewnętrznych warstwach osłony (np. reakcje (n,γ) z jądrami kadmu prowadzące do emisji kwantów gamma o energii 558,4 keV). Powstające promieniowanie γ może spowodować wzrost tła spektrometru, stąd konieczność stosowania odpowiednio dobranych warstw wewnętrznych osłony, mających na celu jego absorpcję [138, 143].

Osłony aktywne

Miony wtórnego promieniowania kosmicznego docierające do powierzchni Ziemi oddziałują z detektorem germanowym i osłoną pasywną wywołując szereg reakcji skutkujących podwyższeniem tła spektrometru. Cząstki te mogą bezpośrednio oddziaływać z materiałem detektora deponując w nim część swojej energii, jak również ulegać rozpadom

na elektrony i pozytony, które następnie mogą ulec rozproszeniom, emitować promieniowanie hamowania lub anihilować. Ponadto, miony podlegać mogą reakcjom wychwytu (odwrotnej reakcji beta: $\mu^- + (Z, A) \rightarrow (Z - 1, A)^* + \nu_\mu$) wzbudzając jądra atomowe [159], tworzyć kaskady hadronowe, wywoływać procesy spalacji oraz reakcje fotojądrowe (miony mogą generować kaskady elektromagnetyczne składające się z wysokoenergetycznych fotonów), tym samym powodując generację dodatkowych neutronów oraz fotonów w tle spektrometru [74, 103, 121].

Uwzględniając powyższe zjawiska, oddziaływania promieniowania kosmicznego są odpowiedzialne za znaczą część zliczeń tła rejestrowanych przez spektrometr gamma. Z faktu, iż miony są wysoko przenikliwym promieniowaniem, nie jest możliwa izolacja detektora germanowego poprzez zastosowanie racjonalnej grubości osłony pasywnej. Ponadto taka osłona byłaby źródłem promieniowania wtórego opisanego wcześniej. Najprostszym rozwiązaniem, jednak niemożliwym do zastosowania w każdym laboratorium, jest umieszczenie spektrometru gamma na pewnej głębokości pod ziemią, co pozwala zredukować strumień promieniowania kosmicznego. Innym podejściem jest zastosowanie osłon czynnych (tzw. detektorów veto) otaczających osłony bierne spektrometru i pracujących w trybie antykoincydencji z detektorem germanowym. W roli detektorów veto stosuje się wielodrotowe komory proporcjonalne (komory Charpaka) i scyntylatory plastikowe. W przypadku rejestracji promieniowania (w czasie trwania okna czasowego o zadanej długości) zarówno przez detektor osłony aktywnej i detektor germanowy, zliczenie z tego drugiego jest odrzucane.

Kolejnym typem osłony aktywnej są systemy redukujące tło komptonowskie (ang. *Compton Suppression Systems*) detektora germanowego. Układ taki składa się z detektorów (najczęściej stosowane są detektory scyntylacyjne NaI(Tl) lub BGO) otaczających detektor germanowy i działających z nim w antykoincydencji. Dodatkową zaletą tego systemu jest redukcja tła pochodzącego od zewnętrznego, ziemskiego promieniowania gamma, promieniowania kosmicznego oraz eliminacja pików ucieczki [66].

3.4 Wyznaczenie aktywności, kalibracja spektrometru

Podstawowym celem pomiarów przeprowadzanych przy użyciu spektrometru promieniowania gamma jest wyznaczenie aktywności A izotopów gamma-promieniotwórczych obecnych w badanym materiale. Wielkość tę definiuje się za pomocą wzoru 3.6:

$$A = \frac{N(E_\gamma)}{\varepsilon(E_\gamma)p(E_\gamma)T} K \dots \quad [Bq], \quad (3.6)$$

gdzie:

E_γ - energia kwantów γ ,

$N(E_\gamma)$ - liczba zliczeń netto w pikie fotoelektrycznym o energii E_γ ,

$\varepsilon(E_\gamma)$ - wydajność rejestracji kwantów gamma o energii E_γ ,

$p(E_\gamma)$ - prawdopodobieństwo emisji kwantu gamma o energii E_γ , przypadające na jeden rozpad jądra danego izotopu,

T - czas pomiaru [s] (tzw. czas żywy),

K - współczynniki korekcyjne, uwzględniające m.in. koincydencyjne sumowanie, samoabsorbpcję promieniowania w próbce czy rozpad jąder danego izotopu w czasie poboru i pomiaru próbki.

Wyznaczenie zależności opisanej wzorem 3.6 wymaga uprzedniego przeprowadzenia procesów kalibracji: energetycznej oraz wydajnościowej. Pierwsza z nich polega na przyporządkowaniu numeru kanału analizatora wielokanałowego (wysokości impulsu generowanego przez przedwzmacniacz) do energii kwantów gamma rejestrowanych w danym kanale. Proces ten polega na pomiarze źródła kalibracyjnego zawierającego izotopy emitujące kwanty gamma o znanej energii, identyfikacji odpowiadającym im foto-pików i dopasowaniu wielomianu stopnia N postaci:

$$E(C) = \sum_{n=0}^N a_n C^n, \quad (3.7)$$

gdzie:

$E(C)$ - energia odpowiadająca linii widmowej zlokalizowanej w kanale C ,

C - numer kanału analizatora,

a_n - współczynniki wielomianu.

Najczęściej stosuje się wielomiany stopnia pierwszego lub drugiego co pozwala uwzględnić odchylenia konwerterów analogowo-cyfrowych od charakterystyki liniowej.

Drugi etap kalibracji, kalibracja wydajnościowa, wymaga uprzedniego sprecyzowania pojęcia wydajności układu spektrometrycznego. Wyróżnia się następujące definicje *wydajności*:

- **wydajność względna** - określa względną wydajność detekcji przez detektor germanowy kwantów gamma o energii 1332 keV emitowanych przez ^{60}Co względem wydajności detektora NaI(Tl) o wymiarach 3x3 cale (średnica x wysokość). W obu przypadkach źródło punktowe umieszczenie jest w odległości 25 cm od detektora,
- **wydajność całkowita** - stosunek liczby wszystkich kwantów gamma emitowanych ze źródła do liczby wszystkich fotonów rejestrowanych przez detektor,
- **wydajność wewnętrzna** - stosunek liczby zarejestrowanych zliczeń do liczby fotonów padających na detektor,
- **wydajność w pikie fotoelektrycznym** $\varepsilon(E_\gamma)$ - to stosunek liczby zliczeń w foto-piku o danej energii do liczby kwantów gamma o tej energii, emitowanych przez źródło. W praktyce jest to podstawowy parametr charakteryzujący układ spektrometryczny.

Wydajność w foto-piku $\varepsilon(E_\gamma)$, określana jest za pomocą przekształconego wzoru 3.6:

$$\varepsilon(E_\gamma) = \frac{N(E_\gamma)}{ATp(E_\gamma)} K, \quad (3.8)$$

i zależy ona od kształtu źródła i jego położenia względem detektora czyli od tzw. geometrii pomiaru. Proces kalibracji wydajnościowej spektrometru promieniowania gamma można przeprowadzić w następujących krokach:

1. pomiar źródła kalibracyjnego zawierającego izotopy promieniotwórcze o znanej aktywności, którego geometria powinna być tożsama lub maksymalnie zbliżona do geometrii planowanego pomiaru próbki,
2. określenie w widmie wzorca liczby zliczeń N_i w wybranej linii widmowej i o energii $E_{\gamma,i}$,
3. wyznaczenie wydajności $\varepsilon_i(E_{\gamma,i})$ dla danej energii $E_{\gamma,i}$ za pomocą wzoru 3.8,
4. dopasowanie do otrzymanych punktów odpowiedniej funkcji $\varepsilon(E_\gamma)$, wyznaczającej wydajność spektrometru dla wybranego zakresu energetycznego.

Rysunek 3.9 przedstawia przykładową zależność wydajności spektrometru w pikie fotoelektrycznym od wybranych energii promieniowania dla detektora germanowego. W celu wyznaczenia wydajności dla dowolnej energii, należy do otrzymanych punktów dopasować funkcję ciągłą. Wyróżnia się dwa rodzaje funkcji dopasowujących: semiempiryczne i analityczne. Formuły semiempiryczne zawierają uproszczone modele fizyczne oddziaływań fotonów z materią m.in. poprzez uwzględnienie współczynników absorpcji, samoabsorpcji fotonów w próbce czy rozprożeń komptonowskich. Częściej spotykanym podejściem, zwłaszcza w rutynowych pomiarach, jest dopasowywanie funkcji nie mających związku z aspektami fizycznymi, lecz najlepiej dopasowanych do punktów wyznaczonych empirycznie. Najczęściej stosuje się wielomiany postaci:

$$\log \varepsilon(E_\gamma) = \sum_{n=0}^N a_n \left(\log \frac{E_\gamma}{E_{\gamma,0}} \right)^n, \quad (3.9)$$

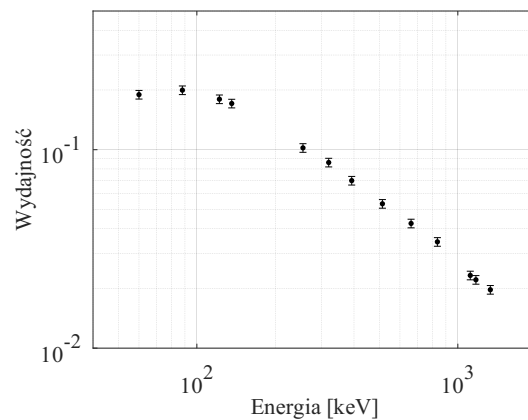
gdzie:

a_n - współczynniki wielomianu,

$E_{\gamma,0}$ - stała normalizująca jednostki, zwykle $E_{\gamma,0} = 1$ keV [102].

Stosowanie wielomianów stopni 2., 3. lub 4., pozwala uzyskać niepewność krzywej kalibracji na poziomie kilku procent, co jest satysfakcjonujące dla większości zastosowań spektrometrii promieniowania gamma [43, 102].

Innym podejściem jest stosowanie wielu funkcji do opisu krzywej wydajności. Do poszczególnych przedziałów energetycznych, dopasowuje się wybrane krzywe (np. funkcję kwadratową dla przedziału energii 20 - 200 keV i funkcję liniową dla energii powyżej 200 keV (w skali logarytmiczno-logarytmicznej)), które następnie „zszywa” się w punktach



Rysunek 3.9 Wydajność w pikie fotoelektrycznym $\varepsilon(E_\gamma)$ w funkcji energii promieniowania gamma. Przedstawienie zależności w skali logarytmiczno-logarytmicznej pozwala ocenić liniową relację dla energii powyżej 200 keV [102]

styku. Metoda ta pozwala zmniejszyć niepewność oszacowania wydajności nawet do 1 - 2% [100, 102].

Rozwój mocy obliczeniowej komputerów powoduje coraz częstsze zastosowanie metod symulacji komputerowych do wyznaczenia oddziaływań fotonów z materią, a tym samym obliczeń wydajności detektorów germanowych. Najczęściej wykorzystuje się programy oparte o metodę Monte Carlo takie jak: GEANT4 czy MCNP (ang. *Monte Carlo N-Particle code*). Oprogramowania te, śledząc historię cząstki (od chwili powstania do całkowitej absorpcji lub opuszczenia rozpatrywanego obszaru) wyznaczają sposób interakcji, liczbę i rodzaj powstających cząstek wtórnych oraz ilość energii zdeponowanej w detektorze. Na podstawie otrzymanych danych można wyznaczyć widmo energetyczne, a w konsekwencji wydajność spektrometru [21].

3.5 Laboratoria ultra-niskotłowe

Opisane wyżej metody pozwalają na satysfakcjonującą redukcję tła spektrometrów promieniowania gamma w przeważającej liczbie zastosowań. Istnieją jednak badania, jak pomiary bardzo niskich aktywności próbek środowiskowych czy fizyka cząstek elementarnych, gdzie konieczne jest uzyskanie ultra niskich poziomów tła. Osiągane jest to poprzez umieszczenie systemów detekcyjnych głęboko pod ziemią (co przede wszystkim zmniejsza strumień cząstek promieniowania kosmicznego), jak również zastosowanie materiałów konstrukcyjnych o bardzo niskich zawartościach zanieczyszczeń radioaktywnych. Tabela 3.1 zawiera zestawienie wybranych laboratoriów ultra-niskotłowej spektrometrii promieniowania gamma [128]. Dla każdego laboratorium określono głębokość na jakiej się znajduje, wyrażoną w ekwiwalencie grubości warstwy wody (ang. *meter water equivalent* [m w.e.]) będącym standardową miarą osłabienia promieniowania kosmicznego. Osiągane bardzo niskie poziomy tła spektrometrów promieniowania gamma, będących na wyposażeniu wymienionych laboratoriów są niemal niemożliwe do osiągnięcia w ośrodkach znajdujących się na powierzchni Ziemi. Osłabienie tła spektrometrów w funkcji głębokości pod ziemią można opisać za pomocą następujących charakterystyk:

- < 10 m w.e. - składowa EM promieniowania kosmicznego jest zredukowana, niewielka redukcja składowej mionowej i neutronów indukowanych przez miony,
- 10 - 100 m w.e. - składowa EM jest zanedbywalnie słaba, strumień mionów jest zredukowany o czynnik 5 - 50, strumień neutronów produkowanych przez miony jest zredukowany od 2 do 10 razy,
- 100 - 1000 m w.e. - kosmogeniczna aktywacja materiałów spektrometru jest zanedbywalna, głównym źródłem neutronów stają się reakcje (α, n) ,
- > 1000 m w.e. - wpływ promieniowania kosmicznego jest zanedbywany, jedynym źródłem neutronów są reakcje (α, n) [91].

Tabela 3.1 Zestawienie wybranych laboratoriów ultra-niskotłowej spektrometrii promieniowania gamma [128]

Jednostka badawcza	Laboratorium / Kraj	Głębokość [m w.e.]	Częstość zliczeń detektora HPGe [$\text{d}^{-1}\text{kg}^{-1}$]
Austrian Research Centre Seibersdorf	Laboratorium niskotłowe / Austria	~ 1	8200(200)
Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg IAEA -	Laboratorium niskotłowe / Niemcy	15	2012(23)
Marine Environment Laboratory (IAEA-MEL)	CAVE/Monako	35	840(50)
Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytik (VKTA)	Felsenkeller / Niemcy	110	3870(30)
Uniwersytet Islandzki Joint Research Centre, Institute for Reference Materials and Measurements (IRMM)	Islandia HADES / Belgia	350 500	- 260(4)
Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB)	UDO / Niemcy	2100	277(4)
Laboratori Nazionali del Gran Sasso (LNGS)	Gran Sasso / Włochy	3800	87(1)
Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement	Modena / Francja	4800	30(1)

CZEŚĆ PRAKTYCZNA

Rozdział 4

Niskotłowy, cyfrowy spektrometr promieniowania γ w IFJ PAN

W niniejszym rozdziale zaprezentowana zostanie konstrukcja niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania γ znajdującego się w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN. Głównymi komponentami tej aparatury są:

- detektor germanowy typu BEGe,
- wielowarstwowa osłona pasywna,
- pięć plastikowych detektorów scyntylicyjnych,
- cyfrowy analizator danych - digitizer.

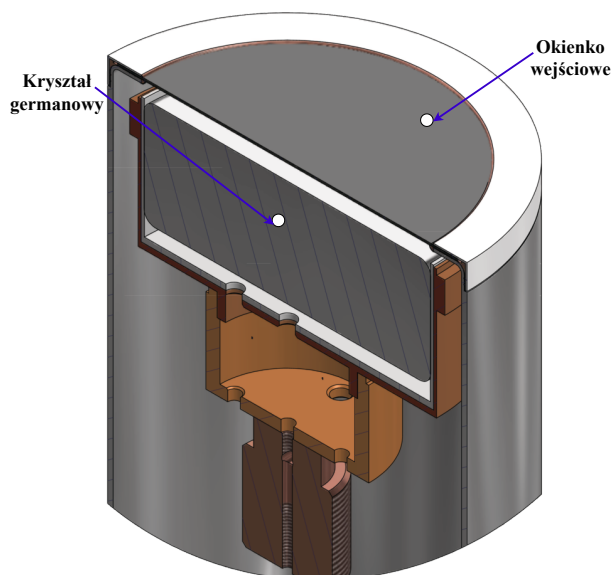
4.1 Detektor BEGe

Zastosowany detektor germanowy typu BEGe (ang. *Broad Energy Germanium*, Rysunek 4.1) został wyprodukowany przez firmę CANBERRA. Detektory tego typu, dzięki odpowiednio zaprojektowanym elektrodom i doborze germanu o profilu domieszek poprawiającym zbieranie ładunku (tym samym rozdzielczość i kształt pików) łączą w sobie cechy detektorów przeznaczonych do pomiarów promieniowania gamma o niskich i wysokich energiach [149].

Podstawowymi cechami detektorów półprzewodnikowych BEGe są: szeroki zakres energii rejestrowanych kwantów gamma - od 3 keV do 3 MeV, płaska powierzchnia czołowa kryształu, bez zaokrągleń (ang. *bulletization*) oraz cienkie okienko wejściowe. Duża średnica kryształu (w stosunku do standardowych detektorów koaksjalnych, w zależności od wersji od ok. 5 cm do nawet 9 cm) i zarazem niewielka wysokość (od 2 do ponad 3 cm) pozwalają uzyskać bardzo dobrą wydajność rejestracji promieniowania gamma o energiach poniżej 1 MeV. Zarówno wydajność rejestracji promieniowania, jak i energetyczna zdolność rozdzielcza są optymalizowane dla energii 662 keV (w odróżnieniu od typowych pomiarów wydajności przeprowadzanych dla źródeł ^{60}Co). Ponadto, niewielka wysokość kryształu powoduje łatwiejsze przenikanie wysokoenergetycznego promieniowania kosmicznego oraz kwantów gamma emitowanych przez naturalnie występujące radio-

nuklidy (np. ^{40}K (1460 keV) i ^{208}Tl (2615 keV)) co skutkuje obniżeniem tła detektora [149].

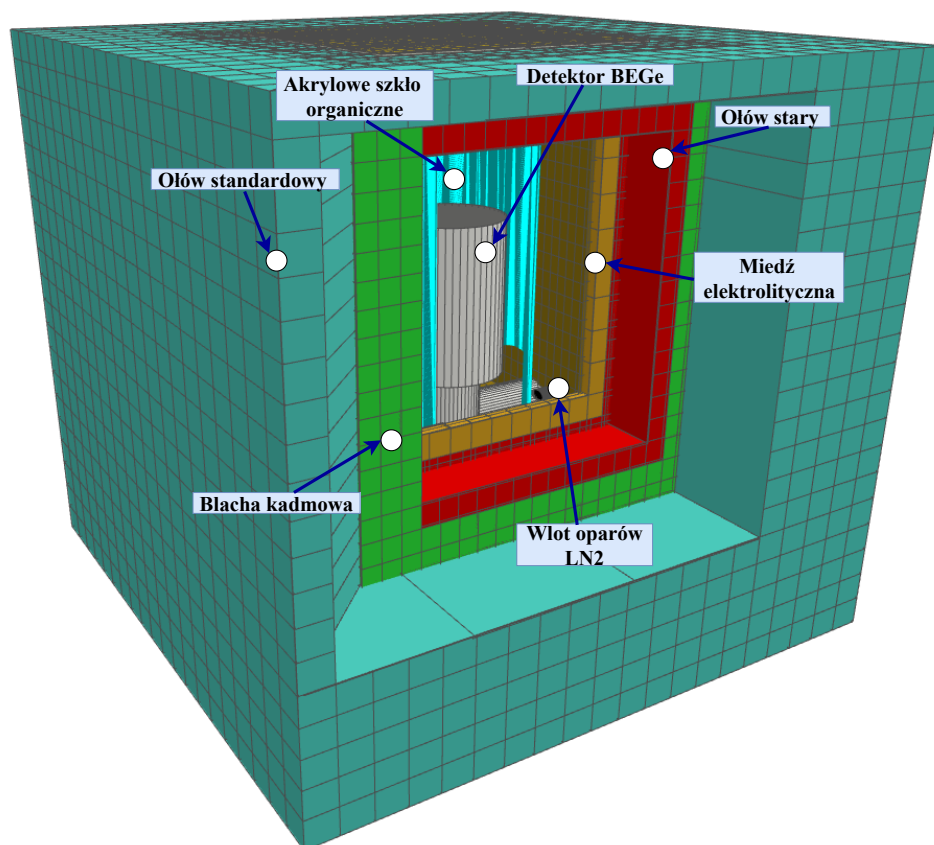
Detektor zastosowany w konstruowanym spektrometrze nosi oznaczenie producenta BE5030. Charakteryzuje się on wydajnością względną 48%, okienkiem węglowym o grubości 0,6 mm oraz U-kształtnym kriostatem (model 7905-30U) o średnicy zewnętrznej detektora 102 mm (mierzonej na wysokości okienka, ang. *endcap*), wykonanym z aluminium [149]. Kryształ germanu typu p w kształcie walca ma wymiary 80,6 mm średnicy oraz 31,6 mm wysokości. Rozdzielczość energetyczna wynosi 0,75 keV oraz 2,00 keV odpowiednio dla energii kwantów γ - 122 keV i 1332 keV. Zastosowany przedwzmacniacz sygnału - *iPATM Intelligent Preamplifier for HPGGe Detectors* [149], zasilany jest za pomocą wzmacniacza spektrometrycznego CAEN N968 [190]. Wyjście przedwzmacniacza podłączone jest bezpośrednio do jednego z wejść digitizera CAEN DT5725. Napięcie polaryzujące kryształ wynosi 3,5 kV i dostarczane jest za pomocą zasilacza Canberra model 3106D [189].



Rysunek 4.1 Model detektora BEGe. Widoczne m.in. okienko wejściowe oraz kryształ germanowy [149]

4.2 Osłona pasywna

Wielowarstwowa osłona pasywna spektrometru ma kształt prostopadłościanu i składa się z następujących materiałów (patrząc od zewnątrz do wewnątrz): bloki parafiny o grubości od 8 do 12 cm (pełniące rolę moderatora neutronowego), scyntylatory plastikowe o grubości 5 cm (komponenty osłony aktywnej), 10 cm standardowego ołowiu (redukującego strumień fotonów γ ; aktywność ^{210}Pb na poziomie poniżej 2000 Bq/kg), 2 mm blachy kadmowej (absorbującej neutrony termiczne), 5 cm starego ołowiu (wytopionego ponad 2500 lat temu, o niskiej zawartości ^{210}Pb - około 6 – 8 Bq/kg, którego zadaniem jest osłabienie promieniowania gamma emitowanego przez blachę Cd po reakcji wychwytu neutronów), 1 cm miedzi elektrolitycznej (absorbującej fluorescencyjne promieniowanie X ołowiu) oraz od 0,5 do 1 cm akrylowego szkła organicznego (absorbent niskoenergetycznych fotonów X). Rysunek 4.2 przedstawia ułożenie warstwy osłony pasywnej. Osłona ta została skonstruowana w 1998 r. (za wyjątkiem osłony ze szkła akrylowego, zaprojektowanej i wykonanej w ramach opisywanej w niniejszej pracy modernizacji spektrometru), a w miejsce zainstalowanej w niej w 2001 r. komory Charpaka [147], obecnie zastosowano detektory scyntylacyjne (osłona aktywna). Dodatkowo, do wewnętrznej komory spektrometru (o objętości około 16,5 dm³) doprowadzono opary ciekłego azotu z naczynia



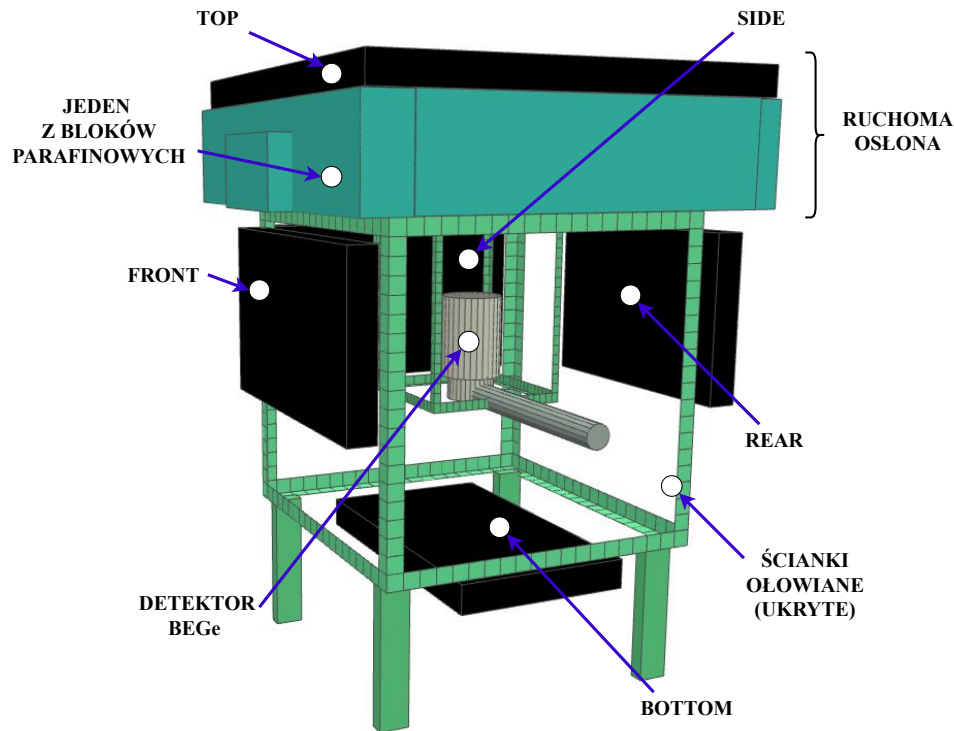
Rysunek 4.2 Model 3D osłony pasywnej spektrometru w kształcie prostopadłościanu, przedstawiający kolejne warstwy osłony oraz usytuowanie detektora germanowego. Komora wewnętrzna zamykana jest od góry demontowalnymi, jednocentymetrowymi płytami miedzianymi. Model wykonany za pomocą oprogramowania Wings 3D [211]

Dewara w celu redukcji stężenia izotopów pochodnych radonu ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{212}Pb [159].

4.3 Detektory scyntylacyjne

Oslonę aktywną spektrometru stanowi pięć prostopadłościennych, plastikowych detektorów scyntylacyjnych typu EJ-200 wyprodukowanych przez firmę Scionix [63]. Scyntylatory tego typu znajdują szerokie zastosowanie zarówno w przemyśle jak i nauce. Bazą polimerową tych scyntylatorów jest poliwinylotoluen (PVT), a ich głównymi zaletami są: stosunkowo duży wydatek świetlny (ang. *light output*), krótki czas zaniku sygnału (rzędu nanosekund), łatwość produkcji, możliwość dowolnego kształtowania oraz stosunkowo niska cena. Szczegółowe dane techniczne zamieszczono w Dodatku B.

System detekcji światła detektorów scyntylacyjnych składa się z fotonowielaczy ET 9900 o średnicy 30 mm oraz generatorów wysokiego napięcia. Detektory te przymocowane są do osłony pasywnej spektrometru i pełnią rolę dodatkowej, aktywnej osłony redukującej tło spektrometru, indukowane przez oddziaływanie promieniowania kosmicznego z detektorem germanowym i osłoną pasywną [82, 83, 92]. Dwa scyntylatory umieszczone są horyzontalnie powyżej i poniżej detektora BEGe, na potrzeby niniejszej pracy oznaczone są one nazwami: TOP (numer 2, wymiary 70 cm x 70 cm x 5 cm (wysokość x szerokość



Rysunek 4.3 Względne usytuowanie detektorów spektrometru promieniowania gamma w IFJ PAN. Niektóre elementy osłony pasywnej zostały ukryte. Ruchoma część osłony umożliwia wymianę próbek, a jej wielowarstwowa konstrukcja jest analogiczna jak w przypadku pozostałej części osłony pasywnej (patrząc od góry): blok parafiny, scyntylator TOP, 10 cm standardowego ołowiu, blacha kadmowa oraz 5 cm starego ołowiu. Na podst. Gorzkiewicz et al. (2019) [68]. Model wykonany za pomocą oprogramowania Wings 3D [211]

x grubość)) i BOTTOM (numer 3, 30 cm x 50 cm x 5 cm). Pozostałe zamocowane są wertykalnie: FRONT (numer 4, 30 cm x 50 cm x 5 cm), SIDE (numer 5, 30 cm x 50 cm x 5 cm) and REAR (numer 1, 30 cm x 45 cm x 5 cm) [68]. Usytuowanie wszystkich detektorów przedstawia Rysunek 4.3.

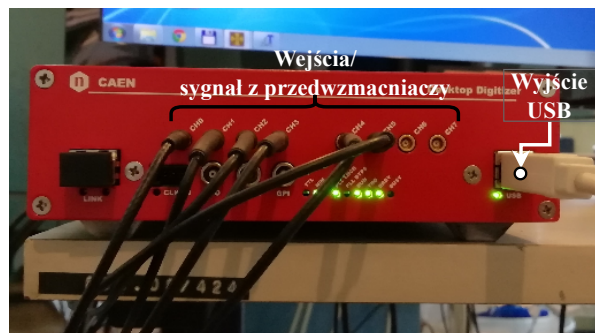
Światło fluorescencji, emitowane przez materiał scyntylatorów w wyniku jego oddziaływania z promieniowaniem jonizującym, dociera do fotokatody białkalicznej fotopowielaczy ET 9900 [55], gdzie następuje jego konwersja na impuls prądowy, który jest wzmacniany za pomocą 11 dynod wykonanych z SbCs. Następnie sygnał przesyłany jest do przedwzmacniaczy (po jednym na każdy detektor) AMP100-E2-X4, z których impulsy przekazywane są bezpośrednio do wejść (1 - 5) cyfrowego analizatora (digitizera).

4.4 Digitizer CAEN DT5725

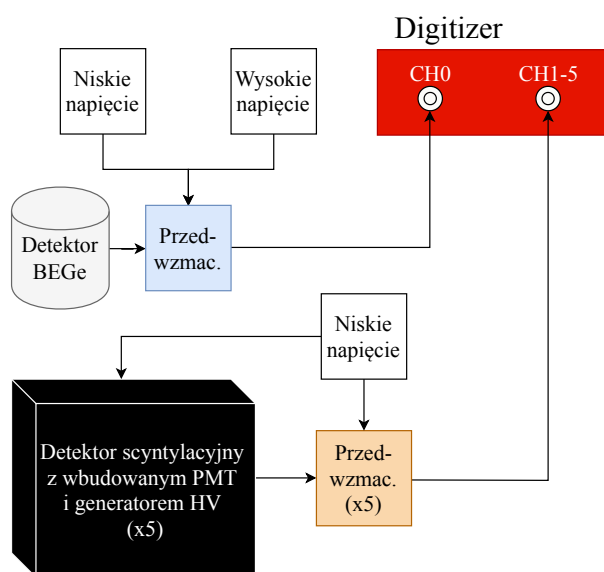
Akwizycja danych pomiarowych odbywa się za pomocą digitizera CAEN DT5725 (Rys. 4.4) [46]. Urządzenie to pozwala na jednoczesną rejestrację danych pomiarowych dla 8 detektorów (obecna wersja spektrometru wykorzystuje 6 wejść - jedno przez detektor germanowy (CH0) oraz 5 przez scyntylatory (CH1-CH5)) poprzez wbudowany przetwornik

analogowo-cyfrowy o przetwarzaniu bezpośrednim (ang. *flash*) o rozdzielczości 14 bitów i częstotliwości próbkowania 250 MS/s.

Dane mogą być rejestrowane z maksymalną rozdzielczością czasową 4 ns. Zawierają one informacje o czasie rejestracji oraz energii impulsów. Ponadto możliwa jest wizualizacja i akwizycja przebiegów czasowych poszczególnych impulsów co jest pomocne m.in. podczas procesu konfiguracji i optymalizacji parametrów pracy spektrometru (funkcja oscyloskopu) [27]. Analizy te dokonywane są za pomocą zaimplementowanych cyfrowych algorytmów przetwarzania sygnałów (patrz rozdział 3.2.2), które redukują ilość danych przesyłanych do komputera PC poprzez uniwersalną magistralę szeregową USB.



Rysunek 4.4 Digitizer CAEN DT5725



Rysunek 4.5 Schemat toru spektrometrycznego w IFJ PAN. PMT - fotopowielacz, HV - wysokie napięcie, CH - kanał analizatora

Akwizycją danych zarządza program dostarczony przez producenta - CAEN *CoMPASS Multiparametric DAQ Software for Physics Applications* [25], który umożliwia m.in. wprowadzanie zmian i zapis parametrów pracy digitizera i wbudowanych cyfrowych algorytmów, kontrolę statystyki rejestrowanych impulsów, wyświetlanie widm energetycznych, przebiegów czasowych rejestrowanych impulsów oraz opóźnień między wybranymi detektorami. Wynikiem przeprowadzanych pomiarów są pliki w formacie `{.csv}` zawierające trzy kolumny danych: czas rejestracji impulsu (w pikosekundach), jego energia (w kanałach) oraz kod błędu (w notacji szesnastkowej, poprawny zapis oznaczany jest jako `0x0`).

Analiza off-line generowanych danych pomiarowych wykonywana jest za pomocą autorskiego oprogramowania VETO, które pozwala na przygotowanie widm antykoincydencyjnych detektora BEGe, jak również, m.in. na badanie koincydencji między dowolnie wybranymi detektorami, wyznaczanie ich wzajemnych opóźnień, tworzenie widm sekwencyjnych oraz energetycznych (w formacie `{.tka}`). Analiza on-line wykonywana za pomocą komercyjnie dostępnego oprogramowania powoduje bezpowrotną utratę niepożądanego danych. Z kolei analiza off-line, wykonywana po przeprowadzeniu pomiaru, daje możliwość rejestracji wszystkich danych pomiarowych ze wszystkich detektorów układu spektrometrycznego. Umożliwia to przeprowadzanie filtracji i analizy danych za pomocą



(a) Komora wewnętrzna spektrometru



(b) Widok ogólny spektrometru

Rysunek 4.6 Stanowisko niskotłowej, cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma w IFJ PAN

dowolnie wybranych filtrów logicznych, skutkiem czego, te same dane mogą zostać wykorzystane wielokrotnie w różnorodnych badaniach i eksperymentach. Dokładny opis aplikacji, wraz ze schematami blokowymi zastosowanych algorytmów, można znaleźć w Dodatku A.

Rysunek 4.5 przedstawia schemat opisywanego toru spektrometrycznego, którego głównymi komponentami są: detektor BEGe, pięć detektorów scyntylicyjnych oraz digitizer. Natomiast Rysunek 4.6 przedstawia komorę wewnętrzną spektrometru (4.6 a) oraz ogólny widok stanowiska niskotłowej, cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma w IFJ PAN (4.6 b).

Rozdział 5

Optymalizacja parametrów pracy cyfrowego spektrometru promieniowania γ

Cyfrowa spektrometria promieniowania gamma posiada wiele zalet, jak również otwiera nowe możliwości pomiarowe (np. wielokrotna analiza off-line danych pomiarowych przy zastosowaniu różnych warunków logicznych). Nie mniej jednak, uruchomienie takiego stanowiska badawczego, a także optymalizacja parametrów jego pracy pod kątem planowanych eksperymentów jest procesem czasochłonnym i wymagającym zastosowania wiedzy z dziedziny cyfrowego przetwarzania sygnałów (ang. *digital signal processing - DSP*).

Wykorzystywany w projekcie program CAEN CoMPASS, pozwala na modyfikację i wybór wartości ponad 50 parametrów zarządzających akwizycją danych pomiarowych (lista wybranych parametrów, wykorzystywanych do konfiguracji digitizera DT5725 w niniejszej pracy została zawarta w Dodatku C). W niniejszym rozdziale zaprezentowane zostaną wyniki procesu optymalizacji wartości kluczowych parametrów pracy digitizera DT5725 (takich jak **Trapezoid Rise Time**, **Ns baseline**, **Ns Peak** czy **Threshold**), które ze względu na fakt, iż mają decydujący wpływ na jakość widm uzyskiwanych za pomocą detektorów pracujących w systemie spektrometrycznym, muszą być ustalone przed przystąpieniem do pomiarów próbek o nieznannej aktywności.

Przeprowadzone badania, dotyczące detektora BEGe, polegały na pomiarach szerokości połówkowej (FWHM) wybranych pików fotoelektrycznych w funkcji wartości wybranych parametrów akwizycji danych oraz wyjściowej częstości zliczeń (ang. *Output Count Rate - OCR*). Wybrane wartości OCR pozwoliły na badanie zmienności szerokości połówkowej pików w szerokim zakresie częstości zliczeń - od ok. 30 Hz do ponad 1 kHz. Wartości te osiągnięto dzięki doborowi źródeł kalibracyjnych (mieszaniny nuklidów gamma - promieniotwórczych zawierające m.in. izotopy ^{137}Cs i ^{60}Co) o odpowiednich aktywnościach oraz ich odległości od detektora.

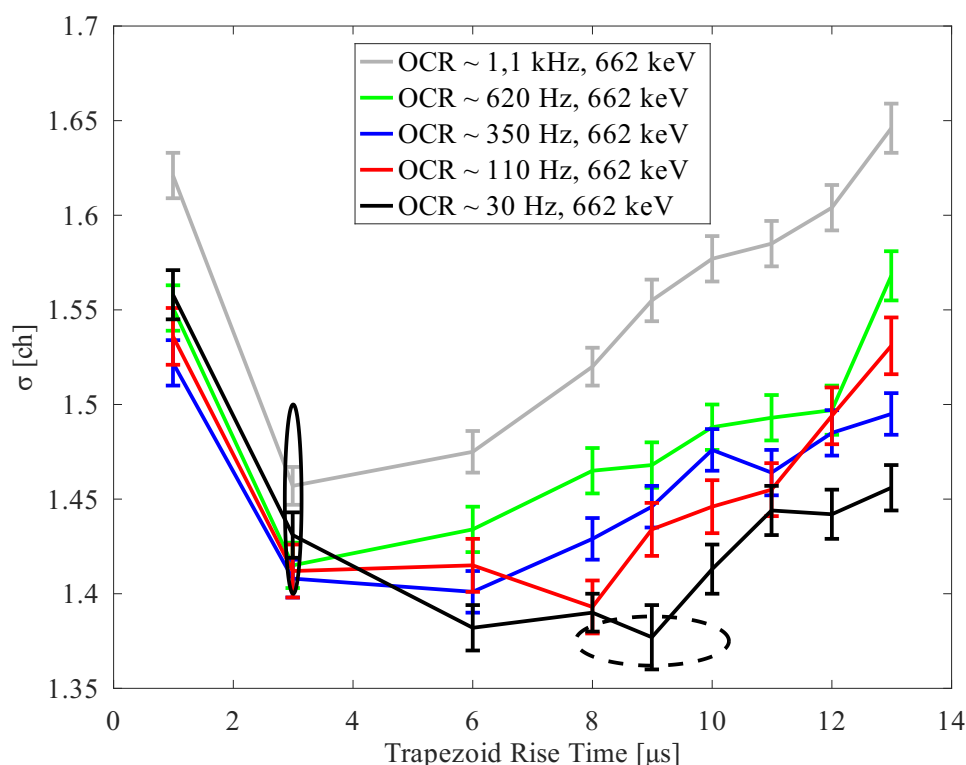
W przypadku detektorów scyntylicyjnych, proces optymalizacji polegał na znalezieniu odpowiednich wartości parametrów akwizycji (odpowiedzialnych za kształt sygnału trapezoidalnego generowanego przez filtr energetyczny) oraz poziomu progowego sygnału. Do badań wykorzystano impulsy generowane jedynie przez promieniowanie kosmiczne (głównie miony).

Po przeprowadzeniu procesu optymalizacji, wyznaczono wzajemne opóźnienia między detektorami pracującymi w systemie spektrometrycznym oraz oszacowano czas martwy detektora germanowego w funkcji częstości zliczeń.

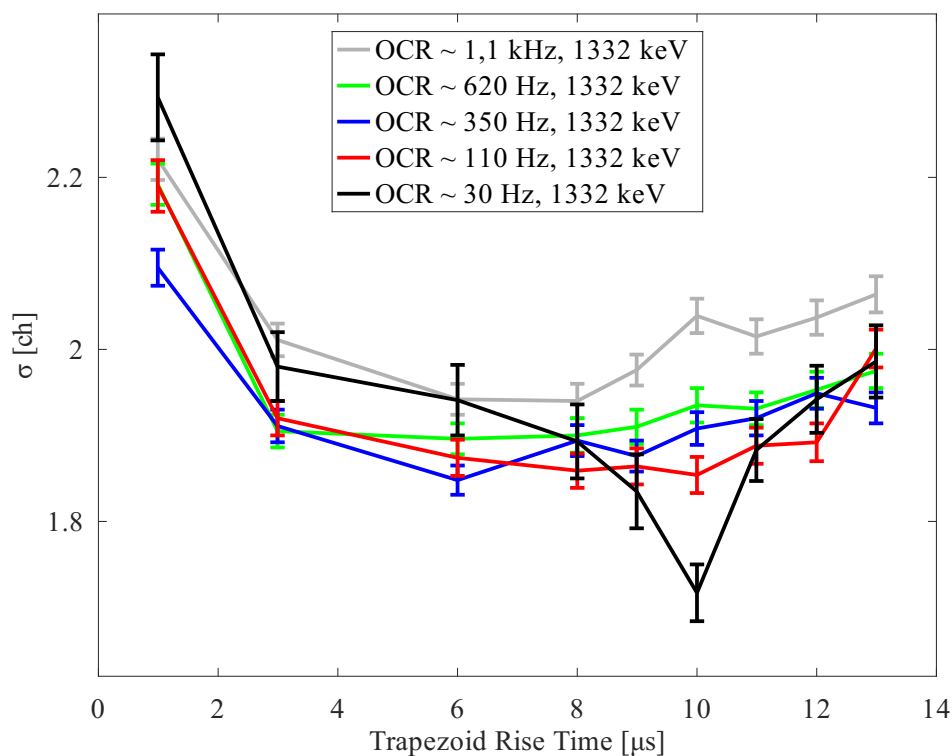
Wszelkie analizy danych przeprowadzone na potrzeby tego i kolejnych rozdziałów pracy wykonywane były za pomocą języka programowania oraz środowiska obliczeniowego GNU Octave [67].

5.1 Trapezoid Rise Time

Trapezoid Rise Time jest to parametr akwizycji reprezentujący czas niezbędny do osiągnięcia przez trapez odpowiadający danemu impulsowi, swojej pełnej wysokości, a co za tym idzie odpowiednio płaskiej części szczytowej pozwalającej na prawidłową ewaluację jego wysokości (czyli energii zdeponowanej w detektorze). Parametr ten pełni podobną rolę co czas kształtowania (ang. *Shaping Time*) w tradycyjnych, analogowych wzmacniaczach spektrometrycznych. Oprogramowanie umożliwia wybór wartości z przedziału od $0 \mu\text{s}$ do $16,368 \mu\text{s}$ z krokiem co 16 ns . Rysunki 5.1 oraz 5.2 przedstawiają szerokości linii $662 \text{ keV } ^{137}\text{Cs}$ i $1332 \text{ keV } ^{60}\text{Co}$ (szerokość dopasowanej krzywej rozkładu normalnego σ wyrażona w kanałach przetwornika ADC [ch], $W_{FWHM} \simeq 2,35\sigma$) w funkcji wartości parametru czasu narastania trapezu - Trapezoid Rise Time, dla różnych częstości zliczeń.



Rysunek 5.1 Związek między szerokością FWHM linii $662 \text{ keV } ^{137}\text{Cs}$ a wartościami Trapezoid Rise Time. Dla niskich częstości zliczeń (elipsa, linia przerywana), optymalne wartości parametru Trapezoid Rise Time osiągane są dla wyższych wartości czasu narastania trapezu ($8,992 \mu\text{s}$). Elipsa (linia ciągła) - optymalne wartości Trapezoid Rise Time dla wyższych OCR (powyżej 30 Hz)



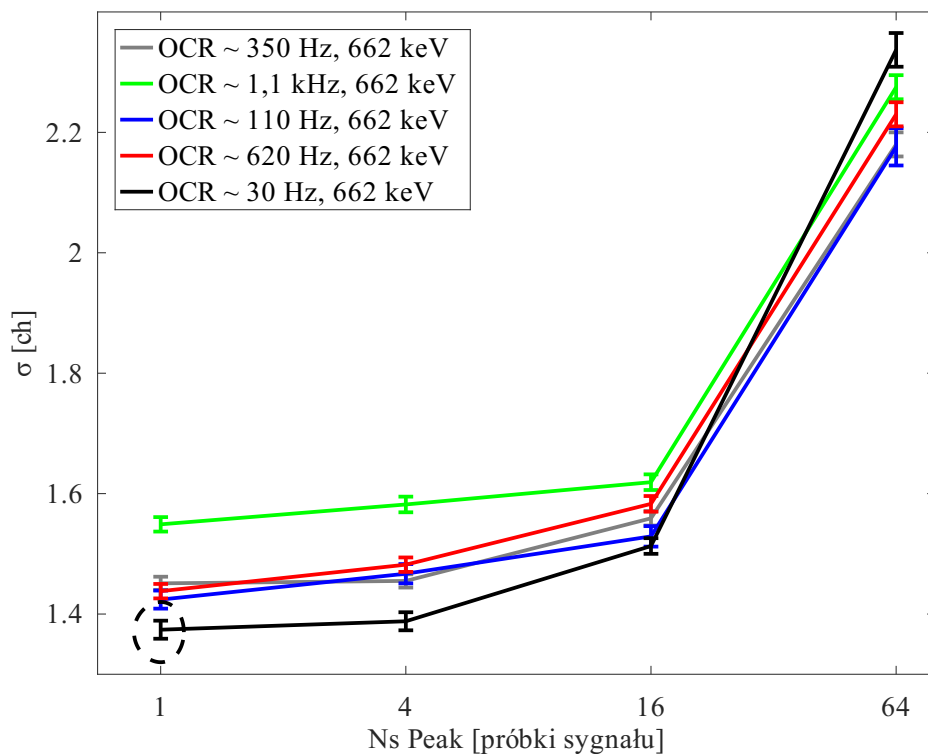
Rysunek 5.2 Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Trapezoid Rise Time. Najniższą szerokość połówkową uzyskano dla wartości czasu narastania trapezu równej $10,0 \mu\text{s}$

Badania wykazały, iż wraz ze spadkiem częstości zliczeń, należy wybierać wyższe wartości czasu narastania trapezu w celu uzyskania wysokiej energetycznej zdolności rozdzielczej. Biorąc pod uwagę, iż budowany spektrometr przeznaczony jest do pomiarów śladowej radioaktywności (niskie wartości OCR, czarne linie na Rys. 5.1 i 5.2) wybrano wartość Trapezoid Rise Time równą $8,992 \mu\text{s}$ (czyli najlepszą wartość dla linii 662 keV). W przypadku eksperymentów charakteryzujących się wyższymi aktywnościami próbek (powyżej kilkudziesięciu zliczeń na sekundę), należy wybrać niższe wartości czasu narastania trapezu (elipsa o ciągłej linii na Rys. 5.1) co pozwala uniknąć przypadków spiętrzenia impulsów i pogorszenia energetycznej zdolności rozdzielczej. Zarówno dla niskich jak i wysokich częstości zliczeń, nie należy wybierać skrajnych możliwych wartości Trapezoid Rise Time, ponieważ skutkuje to dużym wzrostem szerokości połówkowej pików.

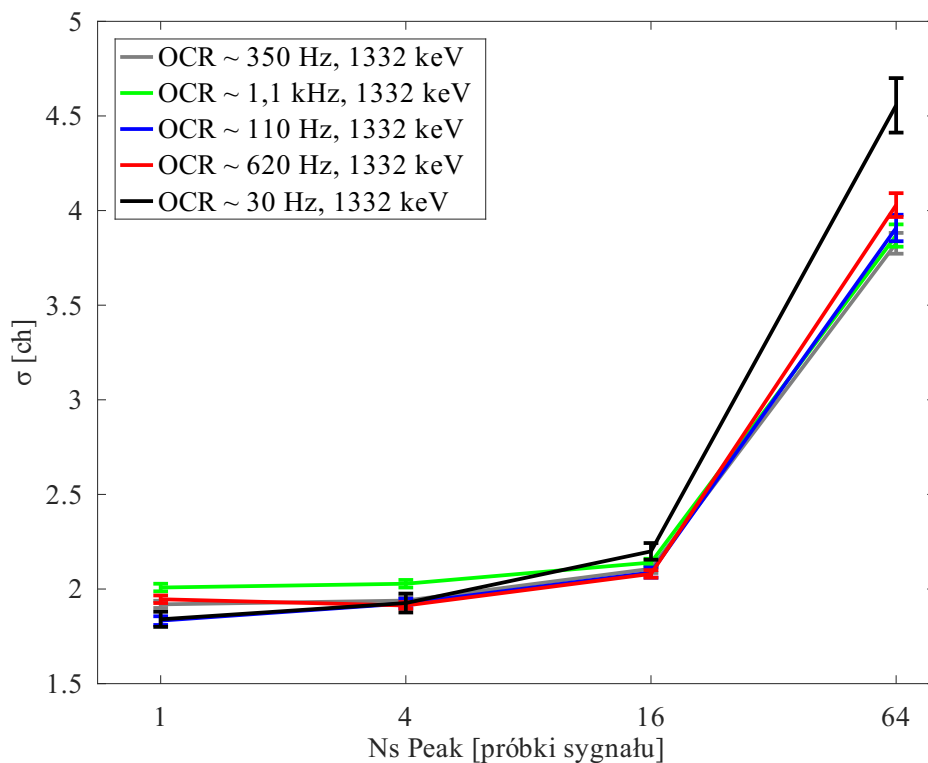
5.2 Ns Peak

W następnym kroku zbadano relację między wartościami Ns Peak a energetyczną zdolnością rozdzielczą. Parametr Ns Peak określa liczbę próbek sygnału wykorzystywaną do wyznaczania wysokości trapezu, a tym samym energii danego impulsu.

Rysunki 5.3 oraz 5.4 przedstawiają zależność między liczbą próbek używaną do ewaluacji wysokości trapezu, a energetyczną zdolnością rozdzielczą. Najniższe wartości FWHM osiągnięto dla Ns Peak równym jednej próbce sygnału (elipsa o przerywanej linii na Rys. 5.3).



Rysunek 5.3 Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs a wartościami Ns Peak. Najniższe szerokości połówkowe uzyskano na dla niskich wartości parametru Ns Peak, przy czym dla niskich częstotliwości zliczeń optymalne wyniki osiągnięto dla wartości tego parametru równej 1 próbce sygnału (elipsa, linia przerywana)

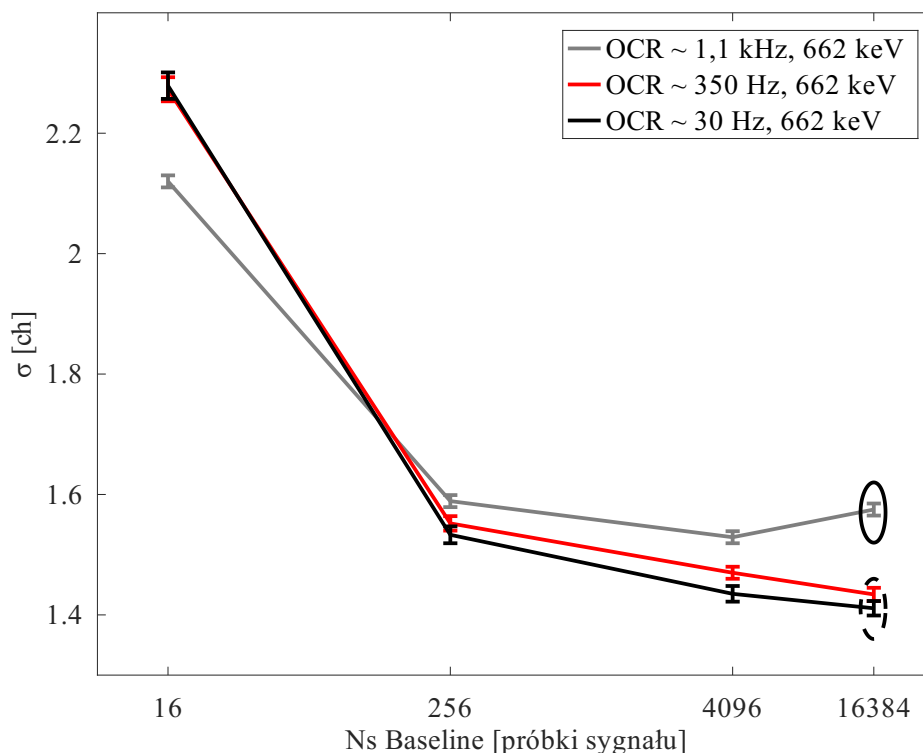


Rysunek 5.4 Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Ns Peak

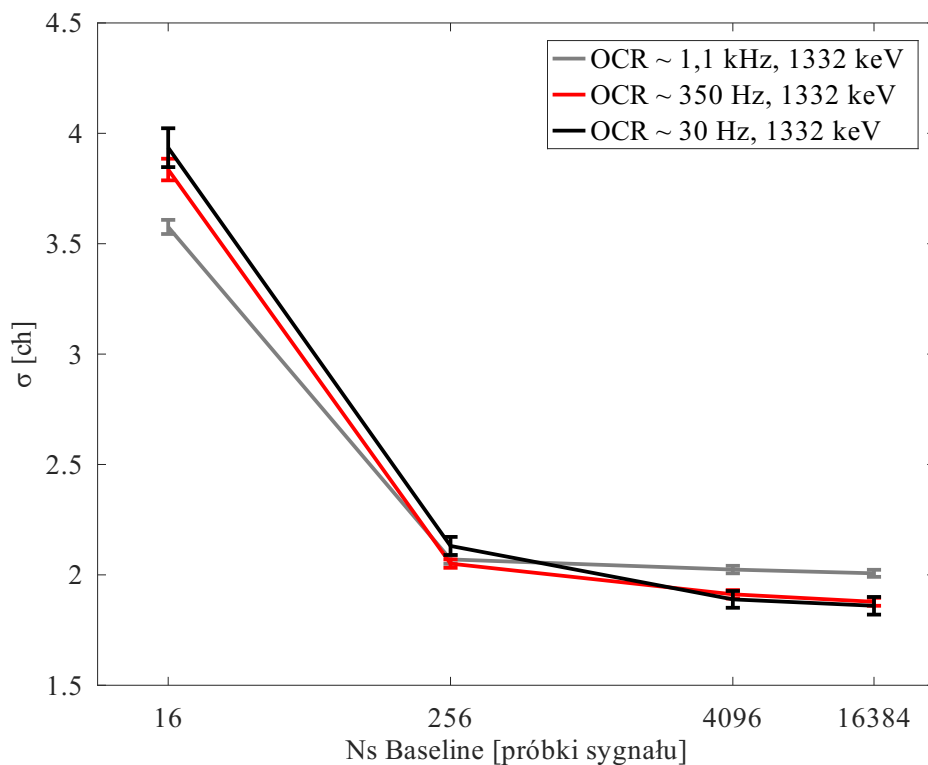
Z wyborem wartości N_s Peak wiąże się także wartość innego parametru - **Trapezoid Flat Top**, która oznacza czas trwania płaskiej części trapezu i wpływa na jej kształt. Zbyt niska wartość może powodować pogorszenie zdolności rozdzielczej, natomiast zbyt wysoka (wraz z długim czasem narastania sygnału) może skutkować zwiększeniem częstości występowania zjawiska spiętrzania impulsów. Dla planowanych niskotłowych pomiarów wybrano wartość $2,000 \mu s$ pozwalającą uzyskać najlepszy kształt trapezu. Należy jeszcze nadmienić, iż wartość parametru **Peaking time** wyznaczającego miejsce obliczania wysokości trapezu (wyrażona jako procentowa część Trapezoid Flat Top) została ustalona na 50,4%, czyli w ok. połowie długości trwania trapezu. Dzięki temu zapewniono, iż wysokość trapezu obliczana jest w miejscu, gdzie jego szczytowa część jest najbardziej płaska i odporna na zakłócenia.

5.3 N_s Baseline

Kolejny eksperyment polegał na pomiarze FWHM linii widmowych w zależności od wartości parametru N_s Baseline. Parametr ten wyznacza liczbę próbek sygnału wykorzystywanych w obliczeniach poziomu bazowego sygnału wejściowego, który może fluktuować m.in. z powodu szumów występujących w układach elektronicznych, uziemieniu lub systemie zasilania układu spektrometrycznego. Wartość ta wyznaczana jest w przypadku braku wystąpienia impulsu. Rysunki 5.5 i 5.6 prezentują otrzymane wyniki.



Rysunek 5.5 Związek między szerokością FWHM linii $662 \text{ keV } ^{137}\text{Cs}$ a wartościami N_s Baseline. W przypadku niskich częstości zliczeń, najlepsze wyniki osiągnęte są dla największej liczby próbek sygnału wykorzystywanych w obliczeniach poziomu odniesienia (16384 próbki sygnału, elipsa o przerywanej linii). Wyjątek stanowią wyższe wartości OCR (elipsa o ciągłej linii)



Rysunek 5.6 Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Ns Baseline

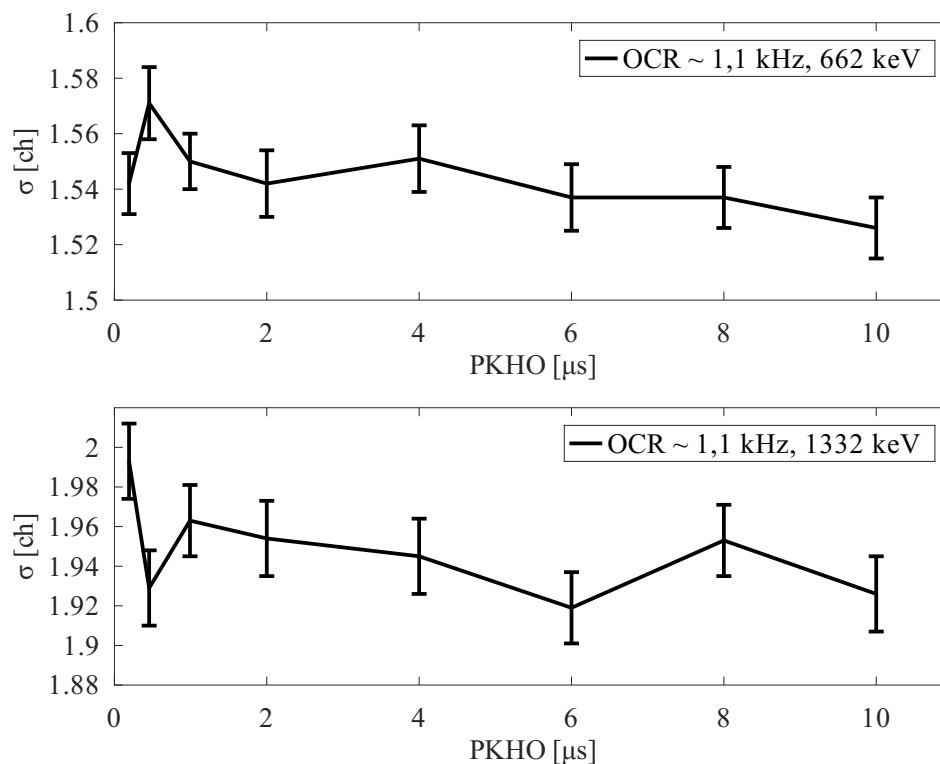
W przypadku niskich częstości zliczeń, w celu uzyskania najlepszej energetycznej zdolności rozdzielczej, należy wybrać maksymalną wartość parametru Ns Baseline równą 16384 próbek sygnału (elipsa o przerywanej linii, Rys. 5.5). Jednakże, wraz ze wzrostem OCR (od około 1 kHz), wartość ta powoduje zwiększanie szerokości połówkowej pików (elipsa o ciągłej linii) i należy rozważyć zmniejszenie jej wartości w celu zachowania optymalnej energetycznej zdolności rozdzielczej. Zjawisko to spowodowane jest zmniejszeniem średniego odstępu czasowego pomiędzy następującymi po sobie impulsami.

5.4 Peak Holdoff

W celu uniknięcia strat energetycznej zdolności rozdzielczej detektorów wraz ze wzrostem częstości zliczeń, oprogramowanie CoMPASS umożliwia wybór wartości parametru **Peak Holdoff (PKHO)**. Parametr ten wstrzymuje akwizycję danych w przypadku pojawienia się kolejnego impulsu po zbyt krótkim odstępie czasu od sygnału poprzedniego i wystąpienia nałożenia się na siebie odpowiadających im trapezów, co może powodować niepoprawną ewaluację wysokości drugiego trapezu. Peak Holdoff pozwala na zachowywanie i dalszą analizę jedynie dobrze rozdzielonych impulsów, zapewniając tym samym właściwe wyznaczenie poziomu odniesienia dla poszczególnych trapezów. Niemniej jednak wadą tej techniki jest wzrost liczby odrzucanych impulsów, gdyż parametr ten wyznacza minimalną odległość czasową między impulsami przed sprawdzeniem czy doszło do ich spiętrzenia (pile-up).

Ponieważ, Peak Holdoff zaczyna odgrywać rolę dopiero dla wysokich częstości zliczeń,

w eksperymencie badano przypadek jedynie dla najwyższej badanej wartości OCR wynoszącej ok. 1,1 kHz. Rysunek 5.7 przedstawia zależność szerokości FWHM linii widmowych 662 keV i 1332 keV w funkcji wartości parametru Peak Holdoff w zakresie od 0,192 μs do 10 μs . Ze względu na zbyt niską wartość OCR (która i tak jest około 1000 razy większa od aktywności próbek planowanych do pomiarów) nie zaobserwowano różnic w szerokości pików (w związku z czym do dalszych prac wybrano wartość Peak Holdoff równą 2 μs).



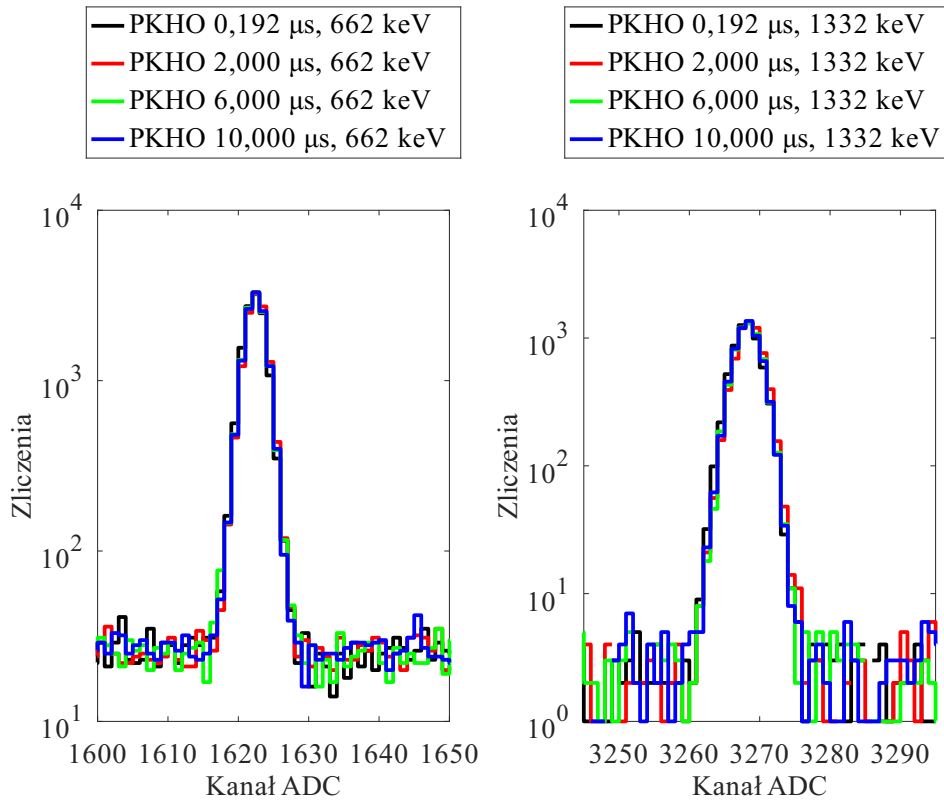
Rysunek 5.7 Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs i 1332 keV ^{60}Co a wartościami Peak Holdoff (PKHO)

Według noty aplikacyjnej producenta digitizera AN2508 [24], parametr ten zaczyna odgrywać rolę dopiero przy częstościach zliczeń, powyżej 100000 zliczeń na sekundę. Fakt ten potwierdza przeprowadzony eksperyment. Zaobserwowano brak zmniejszenia powierzchni pików czyli zwiększania częstości występowania zjawiska pile-up przy wzroście wartości parametru Peak Holdoff. Tabela 5.1 przedstawia liczby zliczeń w rozważanych liniach widmowych 662 keV ^{137}Cs i 1332 keV ^{60}Co . W granicach niepewności wszystkie wartości są sobie równe, niezależnie od wartości parametru Peak Holdoff. Rysunek 5.8 przedstawia kształt pików linii 662 keV

Tabela 5.1 Pola powierzchni pików 662 keV i 1332 keV w zależności od wartości parametru Peak Holdoff

PKHO [μs]	Zliczenia w foto-piku	
	662 keV	1332 keV
0,192	13489(232)	6455(160)
0,496	13209(230)	6586(162)
0,992	13273(230)	6526(162)
2,000	13234(230)	6504(162)
4,000	13176(230)	6481(162)
6,000	13300(230)	6350(160)
8,000	13331(230)	6475(160)
10,000	13295(230)	6393(160)

i 1332 keV. Można zaobserwować brak poszerzenia linii wraz ze wzrostem wartości Peak Holdoff (analogicznie do Rys. 5.7) jak również liczba zliczeń netto obu pików pozostaje niezmienna.



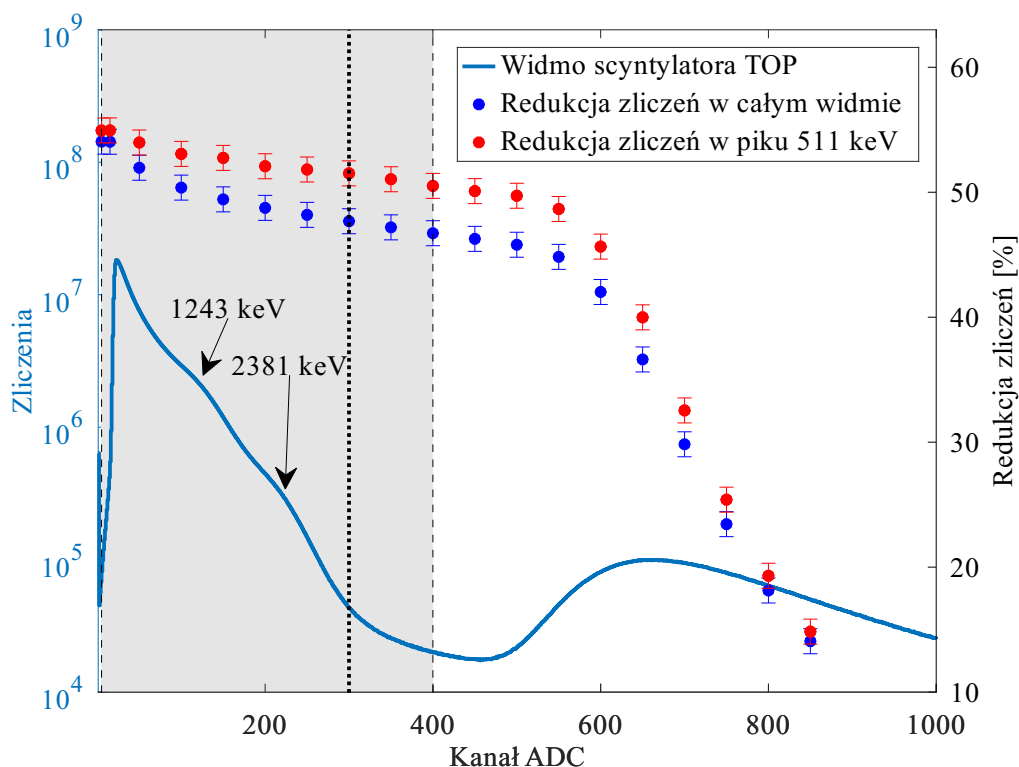
Rysunek 5.8 Związek między szerokością FWHM i wysokością linii 662 keV ^{137}Cs i 1332 keV ^{60}Co a wartościami Peak Holdoff (PKHO)

5.5 Threshold

Parametr Threshold czyli progowa wartość sygnału rejestrowana przez detektor germanowy została wybrana tak, aby umożliwić badanie kwantów gamma o jak najniższych energiach, a zarazem uniknięcie zapisu szumów elektronicznych pojawiających się na początkowych kanałach konwertera ADC. Dla detektora BEGe wartość tego parametru została ustalona tak, aby móc rejestrować promieniowanie γ o energiach od 10 keV.

Dodatkowy problem, dotyczący parametru Threshold, może wynikać z jednej z wad cyfrowej akwizycji danych czyli ogromnej ilości danych generowanej w czasie pojedynczego pomiaru (patrz Rozdział 3.2.2), co może komplikować kwestie przechowywania i przenoszenia danych oraz znacznie wydłużać czas niezbędny do przeprowadzenia analiz off-line. W przypadku konstruowanego spektrometru, problem ten jest szczególnie istotny dla detektorów scyntylacyjnych, które mogą rejestrować promieniowanie z częstotliwością rzędu setek herców (dla niskiej wartości progowej sygnału). Biorąc pod uwagę średni czas niskotłowych pomiarów gamma spektrometrycznych (wynoszący ok. jednego tygodnia), w ich wyniku może zostać wygenerowanych nawet 50 GB surowych danych. W związku z tym, przeprowadzono optymalizację wartości parametru Threshold dla detektorów scyntylacyjnych.

Rysunek 5.9 przedstawia widmo scyntyлятора TOP (linia niebieska). Niskoenergetyczna część widma (obszar zacieniony, między 5. a 400. kanałem analizatora ADC (przerywane linie pionowe)) zawiera przede wszystkim zarejestrowane promieniowanie gamma z wyraźnie widocznymi krawędziami komptonowskimi: 1243 keV i 2381 keV kwantów gamma emitowanych w wyniku rozpadów izotopów ^{40}K (1460 keV) oraz ^{208}Tl (2614 keV), występujących w naturalnym tle promieniowania. Promieniowanie rejestrowane powyżej 400. kanału ADC to przede wszystkim składowa mionowa promieniowania kosmicznego [162, 197].



Rysunek 5.9 Wyznaczenie wartości parametru Threshold dla detektorów scyntyłacyjnych. Pionowe linie przerywane ustawione na 5. i 400. kanale ADC wyznaczają niskoenergetyczną część widma, zawierającą przede wszystkim zarejestrowane promieniowanie gamma (obszar zacieniony) z zaznaczonymi krawędziami komptonowskimi: 1243 keV i 2381 keV. Część widma powyżej 400. kanału ADC odpowiada przypadkom rejestracji mionów. Linia pionowa (kropki), ustalona na 300. kanał ADC wyznacza wybrany poziom progowy dla detektorów scyntyłacyjnych. Znaczniki reprezentują redukcję liczby zliczeń detektora BEGe w całym widmie energetycznym (niebieski) oraz w pikie 511 keV (czerwony)

W celu redukcji i optymalizacji ilości danych rejestrowanych przez spektrometr, a następnie analizowanych przy użyciu programu VETO, wyznaczono współczynnik redukcji danych w całym widmie energetycznym detektora BEGe (znacznik niebieski) oraz w pikie anihilacyjnym 511 keV (znacznik czerwony) w funkcji poziomu progowego sygnału detektora scyntyłacyjnego TOP. Testowane wartości parametru Threshold rozciągały się od kanału piątego (najniższy kanał przetwornika analogowo-cyfrowego nierejestrujący szumów), aż do kanału 850. (kanał ADC powyżej głównego pikę rejestrowanych mionów).

Można zauważyć, że promieniowanie gamma rejestrowane przez scyntylator, nie po-

woduje efektywnego wzrostu redukcji tła spektrometru, co oznacza, że niemal wszystkie koincydencje pomiędzy detektorami scyntylicyjnymi, a detektorem germanowym spowodowane są poprzez oddziaływania mionów promieniowania kosmicznego, co potwierdzone jest poprzez zmniejszenie wartości współczynnika redukcji tła w przypadku ustawienia poziomu progowego sygnału powyżej piku *mionowego* zlokalizowanego w pobliżu 650. kanału ADC.

Ostatecznie, wartość progową sygnału detektorów scyntylicyjnych ustalono na 300. kanał ADC (zarówno w oprogramowaniu CoMPASS jak i w programie VETO - jako wartość domyślna; na Rys. 5.9 - pionowa linia kropkowana). Przeprowadzona procedura pozwoliła zachować wysoką wydajność redukcji tła promieniowania detektora BEGe, jak również zminimalizować ilość zbędnych danych rejestrowanych w czasie pomiarów. W przypadku konstruowanego spektrometru, osiągnięto spadek ilości rejestrowanych danych z 7,6 GB/dzień/5 scyntylicyjatorów dla poziomu progowego ustalonego na 5. kanał ADC do 310 MB/dzień/5 scyntylicyjatorów dla poziomu progowego ustalonego na 300. kanał analizatora (ponad 24-krotna redukcja ilości danych).

5.6 Trap. pole zero

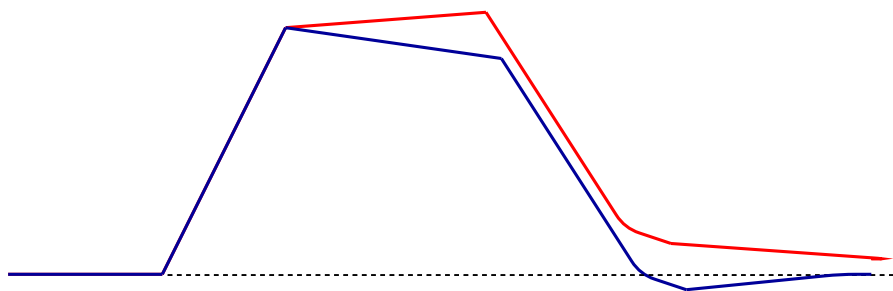
Parametr **Trap. pole zero** (skrótowa nazwa pochodzi od Trapezoid Pole-Zero Adjustment) pozwala zrównoważyć pary biegun-zero funkcji przenoszenia filtra trapezowego w celu uniknięcia zarówno zjawiska przerzutu dodatniego (ang. *overshoot*) jak i przerzutu ujemnego (ang. *undershoot*) - Rys. 5.10. Umożliwia to poprawny powrót opadającej krawędzi trapezu danego impulsu do poziomu bazowego. Ponadto, poprawne ustalenie tego parametru pozwala zmniejszyć ilość odrzucanych impulsów z powodu wystąpienia zjawiska pile-up przy dużych częstościach zliczeń.

Proces wyboru poprawnej wartości tego parametru polega na wykorzystaniu funkcji oscyloskopu wbudowanej w digitizer i za jej pomocą obserwacji przebiegów czasowych poszczególnych impulsów oraz odpowiadających im trapezów, a następnie wybraniu odpowiedniej wartości parametru Trap. pole zero prowadzącej do likwidacji lub możliwie jak największej minimalizacji zjawiska przerzutu sygnału (dodatniego i ujemnego).

5.7 Energy fine gain

Parametr **Energy fine gain** pozwala ustawić cyfrowe wzmocnienie sygnału tak, aby widmo energetyczne zajmowało całą skalę przetwornika ADC. Zbyt mała wartość tego parametru powoduje, iż widmo jest skompresowane i wyższe kanały przetwornika nie są wykorzystywane, skutkiem czego poszczególne piki są usytuowane zbyt blisko siebie, co może powodować problemy przy analizie wyników przeprowadzanych pomiarów. Z kolei zbyt duża wartość Energy fine gain powoduje, że część impulsów przekracza zakres ADC i nie zostają zarejestrowane. Optymalna wartość, skutkuje wypełnieniem jak największej liczby kanałów przetwornika, a zarazem możliwością rejestracji kwantów gamma o wysokich energiach (w niskotłowej spektrometrii promieniowania gamma interesujący obszar energetyczny rejestrowanego promieniowania rozciąga się od ok. 10 keV do ok. 3 MeV).

a) Przerzut dodatni b) Przerzut ujemny



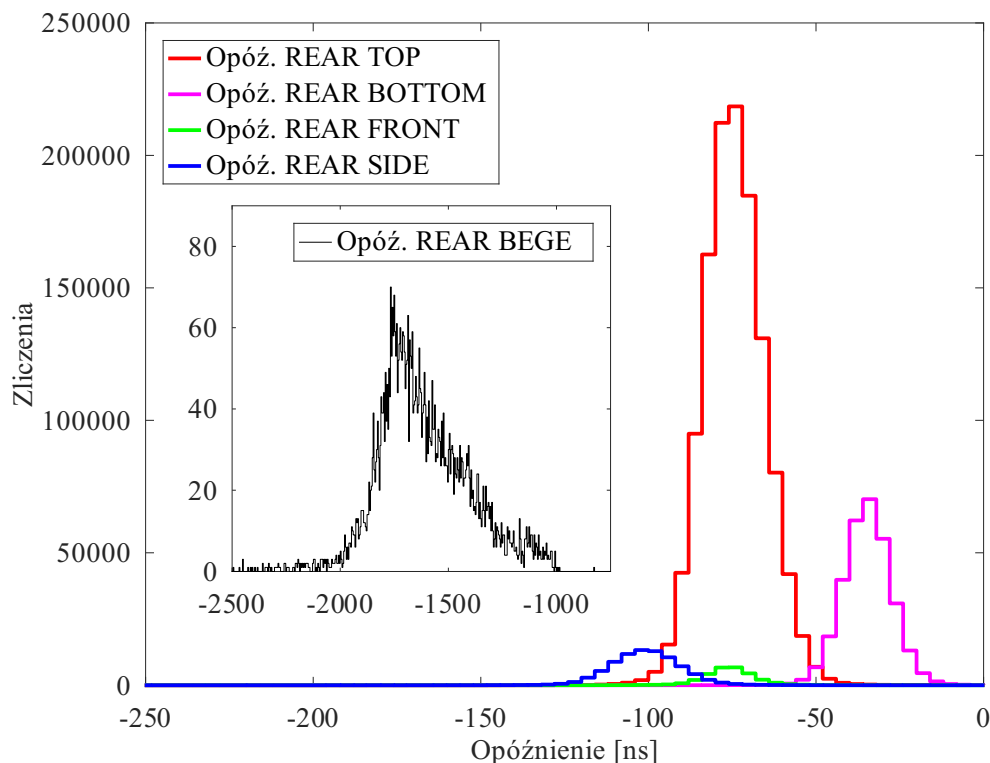
Rysunek 5.10 Zjawisko przerzutu (a) dodatniego i (b) ujemnego wynikające ze źle dobranej wartości parametru Trap. pole zero

W oprogramowaniu CoMPASS, wartość parametru Energy fine gain może przyjmować wartości od 1 do 10 z krokiem co 1.

5.8 Wyznaczenie opóźnień między detektorami

Kolejnym krokiem procesu konfiguracji było wyznaczenie opóźnień między detektorami pracującymi w układzie spektrometrycznym, wykorzystując do tego celu zebrane widma oraz program VETO (podprogram *Search delays*). Różnice znaczników czasowych wyznaczane są w przypadku zajścia koincydencji (w czasie trwania okna o zadanej długości) między detektorami wybranej pary. Zgodnie z oczekiwaniami i charakterystykami detektorów, różnice czasowe pomiędzy detektorami scyntylacyjnymi są na poziomie około 100 ns, podczas gdy opóźnienia detektora germanowego względem scyntylatorów są znacznie większe i zawierają się w przedziale 1,62 - 1,72 μ s. Tak duża różnica czasu wynika z innego procesu generacji sygnału przez detektory scyntylacyjne i germanowe.

Rysunek 5.11 przedstawia rozkład czasowy przypadków koincydencji sygnału detektora REAR z sygnałami z pozostałych detektorów spektrometru. Wszystkie opóźnienia mają wartość ujemną co oznacza, że tor spektrometryczny detektora REAR, przetwarza sygnały szybciej niż pozostałe tory (dla przypadków koincydencyjnych, znaczniki czasowe detektora REAR mają mniejszą wartość). Z kolei kształt rozkładu koincydencji między detektorami - scyntylacyjnym a detektorem germanowym - jego prawostronna asymetria, wskazuje na występowanie zarówno natychmiastowych (ang. *prompt*) jak i opóźnionych (ang. *delayed*) koincydencji [215]. Wartości opóźnień między detektorem BEGe a scyntylatorami używane w dalszej części pracy, zostały wybrane jako punkt, w którym rozkłady czasowe koincydencji (np. czarna krzywa na Rys. 5.11) osiągną wartość maksymalną. Wybór okna czasowego koincydencji na 2000 ns pozwala zapewnić, że wszystkie przypadki koincydencji biorą udział w analizach off-line. Wyznaczone wartości opóźnień między wszystkimi detektorami układu spektrometrycznego - BEGe, TOP, BOTTOM, REAR, FRONT i SIDE przedstawia Tabela 5.2. Wartości te zostały również zapisane w pliku zawierającym ustawienia domyślne programu VETO - *settings.cnf*, i wykorzystywane są w dalszych analizach, na przykład podczas tworzenia widm antyko-



Rysunek 5.11 Rozkład czasowy przypadków koincydencji sygnału detektora REAR i sygnałów z pozostałych detektorów - TOP, BOTTOM, FRONT, SIDE oraz BEGE. Rozkłady dla innych par detektorów wyglądają analogicznie. Wartości opóźnień między wszystkimi detektorami przedstawia Tabela 5.2

Tabela 5.2 Zestawienie opóźnień między detektorami pracującymi w układzie spektrometrycznym - BEGe, REAR, TOP, BOTTOM, FRONT i SIDE. Wartość w danej komórce przedstawia opóźnienie detektora z wiersza względem detektora z kolumny wyrażone w nanosekundach

Detektor	BEGe	REAR	TOP	BOTTOM	FRONT	SIDE
BEGe	0,00	1720	1645	1694	1635	1615
REAR	-1720	0,00	-76,75	-36,76	-77,87	-102,89
TOP	-1645	76,75	0,00	43,10	-1,83	-26,26
BOTTOM	-1694	36,76	-43,10	0,00	-43,60	-68,18
FRONT	-1635	77,87	1,83	43,60	0,00	-24,54
SIDE	-1615	102,89	26,26	68,18	24,54	0,00

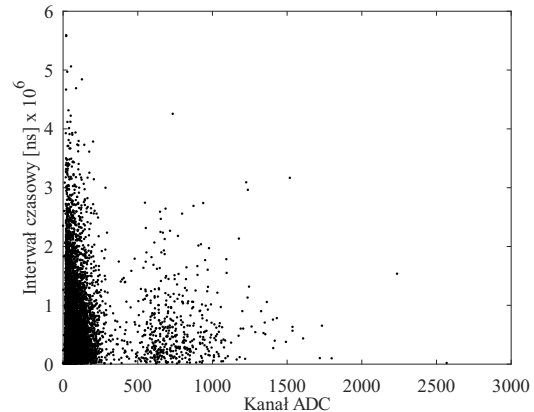
incydencyjnych detektora germanowego.

5.9 Weryfikacja czasu przetwarzania impulsów

Tematem związanym z opóźnieniami sygnałów detektorów jest czas procedowania impulsów przez cyfrowy układ akwizycji i analizy danych pomiarowych. W tym celu wyznaczono interwały czasowe (wyrażone w nanosekundach) między kolejnymi, 10000 zarejestrowanych sygnałów detektora scyntylacyjnego w funkcji ich wysokości (kanału analiza-

tora ADC).

Rysunek 5.12 przedstawia otrzymane wyniki. Zarejestrowane zliczenia o niskich energiach (poniżej ok. 500. kanału ADC) odpowiadają głównie rejestrowanym fotonom, podczas gdy zliczenia o energiach powyżej ok. 500. kanału ADC odpowiadają przypadkom rejestracji mionów. Wyniki pozwalają wyciągnąć wniosek o braku związku między czasem przetwarzania impulsu, a jego wysokością. Wynik ten został potwierdzony poprzez wyznaczenie współczynnika korelacji Pearsona R między wartościami interwałów czasowych, a numerami kanałów przetwornika analogowo-cyfrowego. Obliczona wartość współczynnika wyniosła $R = 0,001$ co świadczy o braku korelacji liniowej. Wynik ten został statystycznie potwierdzony poprzez zastosowanie testu t-Studenta, którego p-wartość = 0,917, na poziomie istotności $\alpha_t = 0,05$ nie pozwala odrzucić hipotezy zerowej ($R = 0$). Otrzymany wynik jest zgodny z oczekiwaniami, gdyż w konstrukcji digitizera CAEN DT5725 zastosowano przetwornik analogowo-cyfrowy o przetwarzaniu bezpośrednim (ang. *flash*), którego czas przetwarzania impulsu nie zależy od jego wysokości (patrz rozdział 3.2.2).



Rysunek 5.12 Zależność interwałów czasowych między kolejnymi impulsami, a wysokością tych impulsów. Współczynnik korelacji Pearsona $R = 0,001$ wskazuje na brak korelacji, a wynik testu t - Studenta, którego p-wartość = 0,917, na poziomie istotności $\alpha_t = 0,05$ nie pozwala odrzucić hipotezy zerowej ($R = 0$)

5.10 Wyznaczenie koincydencji przypadkowych

Cechą układów koincydencyjnych jest występowanie koincydencji przypadkowych czyli jednoczesnych impulsów rejestrowanych przez układ detekcyjny, pochodzących od różnych, całkowicie niezależnych ciągów stochastycznych [112]. W przypadku układu koincydencyjnego składającego się z m detektorów o czasie rozdzielczym τ_r (definiowanym jako maksymalny interwał czasowy między impulsami, które uznawane są jako równoczesne, równym długości trwania okna koincydencji OK w programie VETO) oraz średnich częstościach zliczeń równych odpowiednio J_1, J_2, \dots, J_m , częstotliwość koincydencji przypadkowych J_{KP} określona jest wzorem [107, 112]:

$$J_{KP}^{(m)} = m\tau_r^{(m-1)} \prod_{k=1}^m J_k. \quad (5.1)$$

Wartości częstości występowania koincydencji przypadkowych można wyznaczyć między dowolnie wybranymi grupami detektorów układu spektrometrycznego z wykorzystaniem wzoru 5.1, natomiast w przypadku układów dwu-detektorowych, wzór 5.1 można uprościć do postaci:

$$J_{KP}^{(2)} = 2\tau_r J_1 J_2. \quad (5.2)$$

Tabela 5.3 Częstość występowania koincydencji (w [1/s]) między parami detektorów skonstruowanego spektrometru promieniowania gamma oraz procentowy udział koincydencji przypadkowych

Detektor	BEGe	REAR	TOP	BOTTOM	FRONT	SIDE
BEGe		$3,4 \cdot 10^{-2} / 0,26\%$	$6,3 \cdot 10^{-1} / 0,09\%$	$1,9 \cdot 10^{-1} / 0,07\%$	$7,5 \cdot 10^{-2} / 0,13\%$	$7,1 \cdot 10^{-2} / 0,14\%$
REAR			$3,4 \cdot 10^0 / 0,15\%$	$8,1 \cdot 10^{-1} / 0,15\%$	$7,7 \cdot 10^{-2} / 1,18\%$	$2,2 \cdot 10^{-1} / 0,40\%$
TOP				$4,5 \cdot 10^0 / 0,17\%$	$4,3 \cdot 10^0 / 0,14\%$	$4,5 \cdot 10^0 / 0,13\%$
BOTTOM					$1,5 \cdot 10^0 / 0,09\%$	$1,4 \cdot 10^0 / 0,09\%$
FRONT						$5,0 \cdot 10^{-1} / 0,20\%$
SIDE						

Tabela 5.3 przedstawia częstości występowania koincydencji (w [1/s]) między parami detektorów skonstruowanego spektrometru promieniowania gamma. Wartości procentowe reprezentują udział liczby koincydencji przypadkowych wyznaczonych za pomocą wzoru 5.2, w liczbie wszystkich zarejestrowanych impulsów koincydencyjnych.

Można zauważyć, że koincydencje przypadkowe stanowią znikomą część wszystkich zarejestrowanych koincydencji co potwierdza, że długość okna koincydencji została wybrana poprawnie.

5.11 Oszacowanie czasu martwego spektrometru

Wersja oprogramowania CoMPASS (1.0.4), wykorzystywana w czasie wykonywania badań na potrzeby pracy doktorskiej, nie udostępnia użytkownikowi informacji o czasie martwym detektora, a jedynie o czasie rzeczywistym pomiaru. O ile problem ten jest nieistotny z punktu widzenia pomiarów materiałów niskoaktywnych, to zaczyna on odgrywać rolę w eksperymentach wymagających stosowania bardziej aktywnych źródeł (dla częstości rejestrowania impulsów powyżej kilku tysięcy herców w całym zakresie widma). Przypadek taki zachodzi na przykład dla pomiarów źródeł kalibracyjnych stosowanych do wyznaczenia wydajności spektrometru w piku foto-elektrycznym.

W celu oszacowania czasu martwego detektora germanowego przeprowadzono eksperyment mający na celu uzyskanie tej informacji za pomocą innego, analogowego toru spektrometrycznego. Zgodnie ze wzorem 3.8, wydajność detektora w foto-piku (o energii E_γ) dla toru cyfrowego (indeks C) oraz analogowego (indeks A) zależy od zarejestrowanej liczby zliczeń w wybranym piku fotoelektrycznym $N(E_\gamma)$, aktywności źródła A , czasu żywego pomiaru LT oraz prawdopodobieństwa emisji kwantu gamma $p(E_\gamma)$:

$$\varepsilon_{C,A}(E_\gamma) = \frac{N_{C,A}(E_\gamma)}{ALT_{C,AP}(E_\gamma)}. \quad (5.3)$$

Zakładając, że wydajność torów spektrometrycznych jest taka sama, czyli pomiary wykonywane są w tej samej geometrii (definiującej rejestrowaną częstość zliczeń) oraz nie następuje strata impulsów w czasie ich przetwarzania można przyjąć $\varepsilon_C(E_\gamma) = \varepsilon_A(E_\gamma)$, co pozwala uprościć i przekształcić powyższy wzór:

$$LT_C = LT_A \frac{N_C}{N_A}. \quad (5.4)$$

Na tej podstawie można wyznaczyć względny czas martwy (patrz wzór 3.5) cyfrowego toru spektrometrycznego dla danej częstości zliczeń:

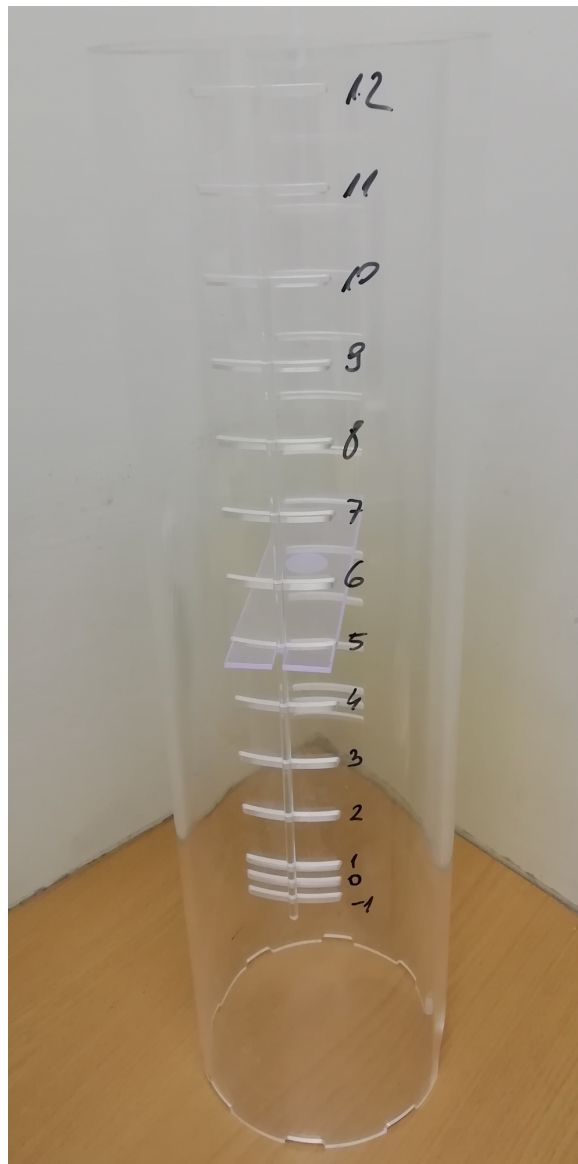
$$\%DT_C = \frac{RT_C - LT_A \frac{N_C}{N_A}}{RT_C} \cdot 100 \quad (5.5)$$

Przeprowadzając pomiary dla różnych częstości zliczeń dla obu torów spektrometrycznych, można wykreślić zależność czasu martwego dla cyfrowego systemu akwizycji w funkcji częstości rejestracji impulsów (obciążenia spektrometru) zgodnie z powyższym wzorem (5.5).

W celu jednoznacznego określania geometrii pomiarowej, zaprojektowano i wykonano statyw rurowy ze szkła organicznego (Rysunek 5.13) z otworami służącymi do umieszczenia w nich półeczki z punktowym źródłem kalibracyjnym.

Po jednej stronie statywu zamocowano pręt, który wpasowując się w wycięcie w półce, uniemożliwia jej przypadkowe przemieszczenie. Poziom (-1) pozwala umieścić półeczkę bezpośrednio nad okienkiem detektora (niewykorzystywane w eksperymencie). Poziom (0) oznacza wysokość detektora wraz z założonym uchwytem (holderem, ang. *holder*) do pomiaru próbek w geometrii filtru powietrza (zabieg ten został zastosowany w celu ochrony okienka wejściowego przed przypadkowym uszkodzeniem). Kolejny poziom (1) znajduje się 5 mm wyżej, a następne co 30 mm. Półka posiada centralnie wyfrezowane zagłębienia o średnicy 12,1 mm oraz 20 mm, pozwalające na kontrolę pozycji stosowanych źródeł punktowych.

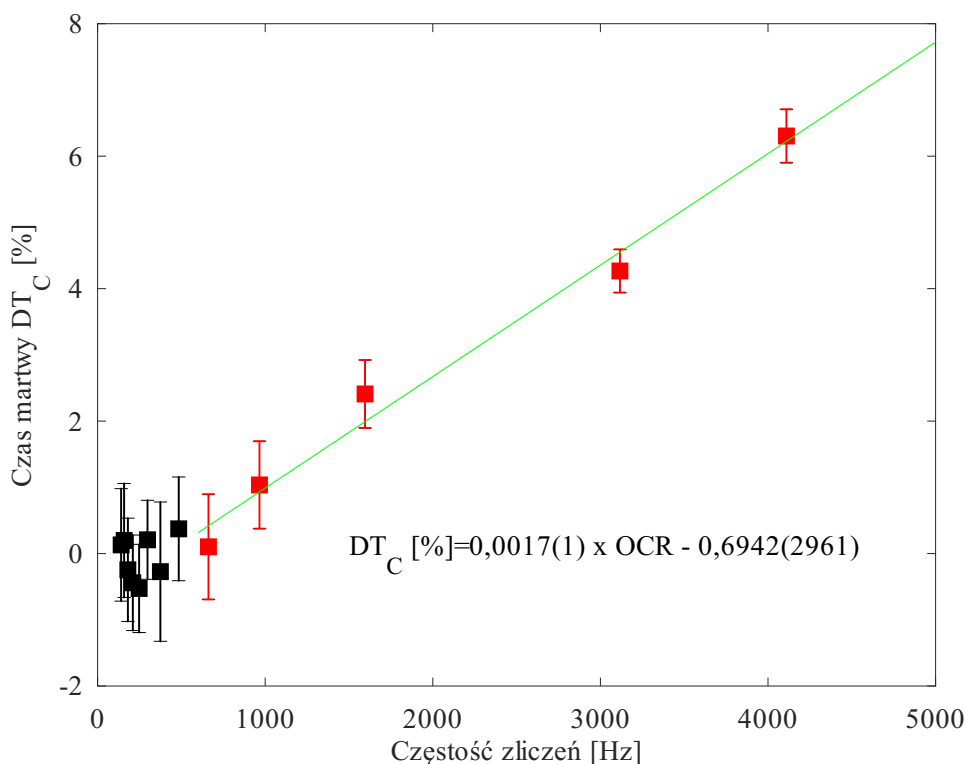
Analogowy tor spektrometryczny składa się (oprócz detektora BEGe) ze wzmacniacza spektrometrycznego CAEN N968 (ustalony czas kształtowania impulsu 3 μ s, sygnał wyjściowy unipolarny) [190] oraz Wielokanałowego Analizatora Amplitudy Impulsów Tukan 8k USB [101] zarządzanego oprogramowaniem Tukan 8k.



Rysunek 5.13 Statyw rurowy wykorzystywany w eksperymencie w celu określania geometrii pomiaru wykorzystywany przy szacowaniu czasu martwego cyfrowego systemu akwizycji. Poziom (-1) - półeczka ze źródłem kalibracyjnym bezpośrednio nad okienkiem detektora. Poziom (0) - półeczka bezpośrednio nad detektorem wraz z założonym uchwytem do pomiaru próbek w geometrii filtru powietrza (FP). Kolejny poziom (1) znajduje się 5 mm wyżej, a następne co 30 mm

Przeprowadzone pomiary polegały na pomiarze punktowych źródeł kalibracyjnych zawierających izotop ^{137}Cs , w funkcji odległości tych źródeł od detektora co pozwoliło pokryć zakres rejestrowanych częstości zliczeń (OCR) od ok. 135 Hz do ponad 4 kHz. Następnie, zebrane widma poddano analizie, wyznaczając liczbę zliczeń netto zarejestrowaną w foto-piku o energii 662 keV oraz oszacowano czas martwy cyfrowego systemu akwizycji.

Rysunek 5.14 przedstawia zależność czasu martwego cyfrowego układu akwizycji danych w funkcji rejestrowanej częstości zliczeń (obciążenia), wyznaczony według wzoru 5.5. Punkty odpowiadające niskiemu obciążeniu spektrometru (poniżej 700 Hz) oscylują wokół zera (co zostało potwierdzone testem t-Studenta dla jednej próby - na poziomie istotności $\alpha_t = 0,05$, nie ma podstaw od odrzucenia hipotezy zerowej, że średnia wartość tych punktów jest statystycznie równa zero, p-wartość = 0,636). W związku z tym, czas martwy nie jest istotny przy planowanych pomiarach niskotłowych. Dla wyższych częstości zliczeń, dopasowano metodą najmniejszych kwadratów prostą o parametrach $DT_C[\%] = 0,0017(1) \cdot OCR - 0,6942(2961)$, gdzie OCR - to Output Count Rate.



Rysunek 5.14 Oszacowanie zależności czasu martwego cyfrowego toru spektrometrycznego w funkcji rejestrowanej częstości zliczeń (OCR). Dla częstości zliczeń mniejszej od ok. 700 Hz, czas martwy zachowuje wartości bliskie zero.

Należy wyraźnie zaznaczyć, iż uzyskane wartości czasu martwego dla cyfrowego toru spektrometrycznego mogą nie odpowiadać wartościom rzeczywistym, ze względu na różnice w technikach analogowej i cyfrowej akwizycji danych. Oszacowane wartości czasu martwego, znajdują zastosowanie w niniejszej pracy jedynie w przypadku pomiarów źródeł kalibracyjnych charakteryzujących się większymi aktywnościami. Planowanym krokiem rozwojowym spektrometru jest instalacja nowszej (w przypadku dostępności) wersji pro-

gramu CoMPASS oraz ponowne przeprowadzenie procesu konfiguracji i optymalizacji - czas trwania ok. 2 - 3 miesiące. Proces opisany w niniejszym rozdziale trwał dłużej ze względu na zmianę przez producenta digitizera oprogramowania do akwizycji danych (z CAEN MC² na CAEN CoMPASS) w jego trakcie oraz problemy ze stosowanymi aplikacjami, które były na bieżąco raportowane producentowi i rozwiązywane.

Rozdział 6

Widma detektorów niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania γ

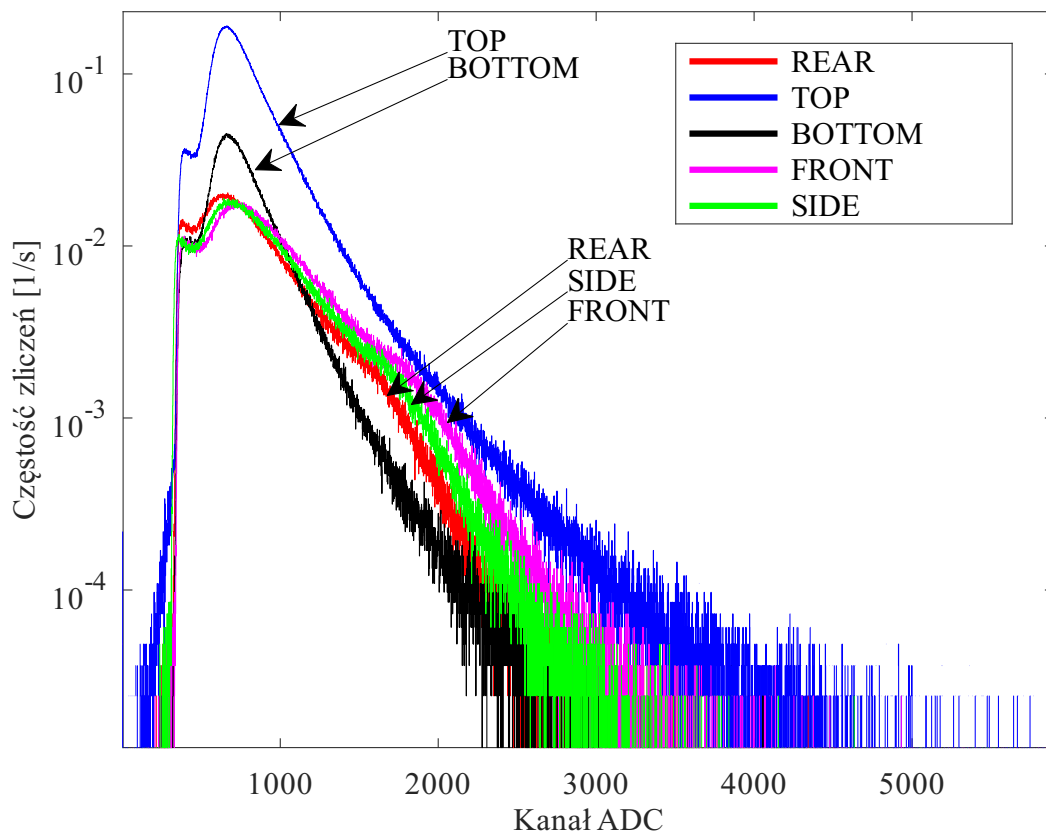
Po wybraniu odpowiednich wartości parametrów pracy cyfrowego analizatora danych, przystąpiono do akwizycji widm tła i pomiarów przy użyciu detektorów pracujących w systemie spektrometrycznym. Na ich podstawie, przeprowadzono analizę charakterystyki widm tła detektorów scyntylicyjnych, a przede wszystkim detektora germanowego, co ma duże znaczenie przy planowanych, niskotłowych pomiarach gamma - spektrometrycznych.

6.1 Widma detektorów scyntylicyjnych

Rysunek 6.1 przedstawia widma prostopadłościennych detektorów scyntylicyjnych wykorzystywanych w konstrukcji niskotłowego spektrometru promieniowania gamma. Główną składową tych widm stanowią przede wszystkim zliczenia mionów promieniowania kosmicznego dzięki dyskryminacji niskoenergetycznej części widma, czyli rejestrowanego promieniowania gamma, po wcześniejszym wyznaczeniu poziomu progowego sygnału (Threshold).

Dwie najwyższe krzywe odpowiadają detektorom zorientowanym horyzontalnie - TOP (linia niebieska) i BOTTOM (linia czarna). Z kolei trzy niższe, reprezentują widma detektorów usytuowanych wertykalnie, zamocowanych do ścian ołowianych spektrometru - REAR (linia czerwona), SIDE (linia zielona) oraz FRONT (linia koloru magenta). Można zauważyć, iż detektory usytuowane pionowo rejestrują mniej cząstek w porównaniu z scyntylatorami horyzontalnymi. Efekt ten wynika z faktu, iż intensywność strumienia mionów promieniowania kosmicznego zależy od kąta zenitalnego kierunku padania cząstki. Zjawisko to zostało przedstawione w Rozdziale 2.2 (równanie 2.6).

Rozkłady częstości zliczeń rejestrowanych przez detektory zorientowane pionowo są niższe także dlatego, iż powierzchnia detektora „widziana” z głównego kierunku padania mionów ($\theta \approx 0$) jest o wiele mniejsza skutkiem czego, mniej cząstek dociera do detektora. Ponadto, rozkłady te są szersze w porównaniu do rozkładów odpowiadających detekto-



Rysunek 6.1 Widma detektorów scyntylacyjnych: TOP i BOTTOM - detektorów usytuowanych poziomo, FRONT, REAR i SIDE - detektorów zorientowanych pionowo. Detektory pionowe rejestrują mniej cząstek w porównaniu do detektorów horyzontalnych głównie z powodu związku intensywności strumienia mionów kosmicznych i kąta zenitalnego θ padających cząstek wyrażającego się funkcją $\cos^2\theta$

rom horyzontalnym, co jest dodatkową manifestacją kątovej zależności rozkładu intensywności strumienia mionów (równanie 2.6), a co za tym idzie, średniej długości drogi pokonanej w detektorze przez rejestrowane cząstki [197]. Dzięki pionowemu usytuowaniu detektorów, w ich widmie można zaobserwować dodatkową strukturę (wybrzuszenie) zlokalizowaną w wyższych energiach (około 2000. kanału ADC). Jest to spowodowane faktem, iż większość cząstek docierających do powierzchni detektorów ma kierunek pionowy i mogą pokonać dłuższą drogę w pionowo usytuowanym scyntylatorze, tym samym zdeponować w nim więcej energii [197].

6.2 Widmo detektora BEGe

Konstruowany spektrometr jest przede wszystkim przeznaczony do badań śladowej aktywności emiterów promieniowania gamma. Fakt ten sprawia, że jednym z krytycznych zadań procesu konfiguracyjnego jest redukcja tła detektora germanowego. Cel ten został osiągnięty poprzez zastosowanie wielowarstwowej osłony pasywnej, przepływu oparów azotu przez komorę spektrometru oraz zastosowaniu systemu detektorów antykoincydencyjnych (ang. *cosmic ray veto system*, patrz Rozdział 4).

Rysunki 6.2, 6.3 oraz 6.4 przedstawiają kolejne zakresy energetyczne widma promieniowania gamma zarejestrowanego przez detektor germanowy przed zastosowaniem układu antykoincydencyjnego (VETO WYŁ, linia czarna), po doprowadzeniu oparów azotu (VETO WYŁ + LN₂, linia zielona) oraz po odrzuceniu przypadków koincydencji między detektorem BEGe, a detektorami scyntylacyjnymi (VETO WŁ + LN₂, linia czerwona). W celu ułatwienia identyfikacji linii widmowych na Rys. 6.2 (przedstawiającym widmo dla energii promieniowania mniejszych od 1000 keV) zaznaczono niektóre z obecnych w widmie tła pików pochodzących od naturalnie występujących radionuklidów: 295 keV, 351 keV, 609 keV oraz 969 keV. Ponadto powiększono obszar widma zawierający pik anihilacyjny 511 keV. W tym zakresie energii, redukcja tła wyniosła 61,43%. Na Rysunkach 6.3 i 6.4 przedstawiono widmo tła detektora BEGe w zakresach energetycznych (1000 keV - 2000 keV, redukcja tła 64,76%) oraz (2000 keV - 2800 keV, redukcja tła 64,39%) oraz zaznaczono następujące linie widmowe: 1120 keV, 1328 keV, 1764 keV, 2223 keV oraz 2615 keV. Dla krzywej przedstawiającej widmo po zastosowaniu technik redukcji tła, można zauważyć silną redukcję wymienionych linii. Tabela 6.2 zawiera zidentyfikowane linie widmowe zarejestrowane w tle spektrometru promieniowania gamma wraz z ich pochodzeniem (na podstawie [6, 17, 32, 74, 78, 103, 159]), częstością zliczeń oraz uzyskaną redukcją zliczeń netto, między spektrometrem pracującym z wyłączoną osłoną aktywną, po zastosowaniu przepłukiwania komory wewnętrznej oparami ciekłego azotu oraz po włączeniu systemu antykoincydencyjnego.

Zastosowany układ pozwolił osiągnąć redukcję zliczeń tła na poziomie 64% (z 1,21 cps do 0,43 cps w przedziale energii od 40 do 2700 keV), z czego system detektorów veto odpowiedzialny jest za redukcję ok. 59% zliczeń w całym widmie, podczas gdy dalsze 5% jest uzyskane dzięki przepływowi oparów azotu usuwającego radon i jego pochodne z komory pomiarowej spektrometru. Wykorzystując dane dotyczące częstości zliczeń tła promieniowania rejestrowanego w laboratoriach podziemnych (Laubenstein et al. (2004) [128]) można oszacować, iż zastosowany system antykoincydencyjny pozwolił na redukcję tła odpowiadającą umieszczeniu spektrometru na głębokości 20 - 30 m w.e. [68].

Liczba zliczeń w linii anihilacyjnej powstającej na skutek zjawiska kreacji par, indukowanego przez oddziaływania wysokoenergetycznych kwantów gamma oraz mionów promieniowania kosmicznego [23] została zredukowana o 65%.

Linie widmowe pochodzące od nieelastycznego rozpraszania neutronów prędkich, jak również wychwytu neutronów termicznych w kryształach germanowym detektora oraz materiałach osłony pasywnej (głównie miedzi i ołowiu) zostały zredukowane w zakresie od 15,8% (linia 1115,5 keV pochodząca od reakcji $^{70}\text{Ge}(n,2n\alpha)^{65}\text{Zn}$ oraz $^{65}\text{Cu}(n,n'\gamma)^{65}\text{Cu}^*$) do 90,2% (linia 2092,8 keV powstająca w wyniku reakcji $^{207}\text{Pb}(n,n'\gamma)^{207}\text{Pb}^*$). Dodatkowo, uzyskano wysoką wydajność redukcji pików pochodzących od rozpadów izotopów pochodnych radonu, mianowicie 91,0% oraz 90,6% odpowiednio dla linii 351 keV oraz 609 keV. Należy nadmienić, iż ze względu na fakt, że osłona wewnętrzna umieszczona w komorze spektrometru, wykonana ze szkła organicznego, jest podatna na gromadzenie ładunku elektrostatycznego, bardzo ważnym jest regularne usuwanie kurzu i innych zanieczyszczeń, które mogą przylegać do ścianek tej osłony powodując z czasem wzrost poziomu tła detektora germanowego.

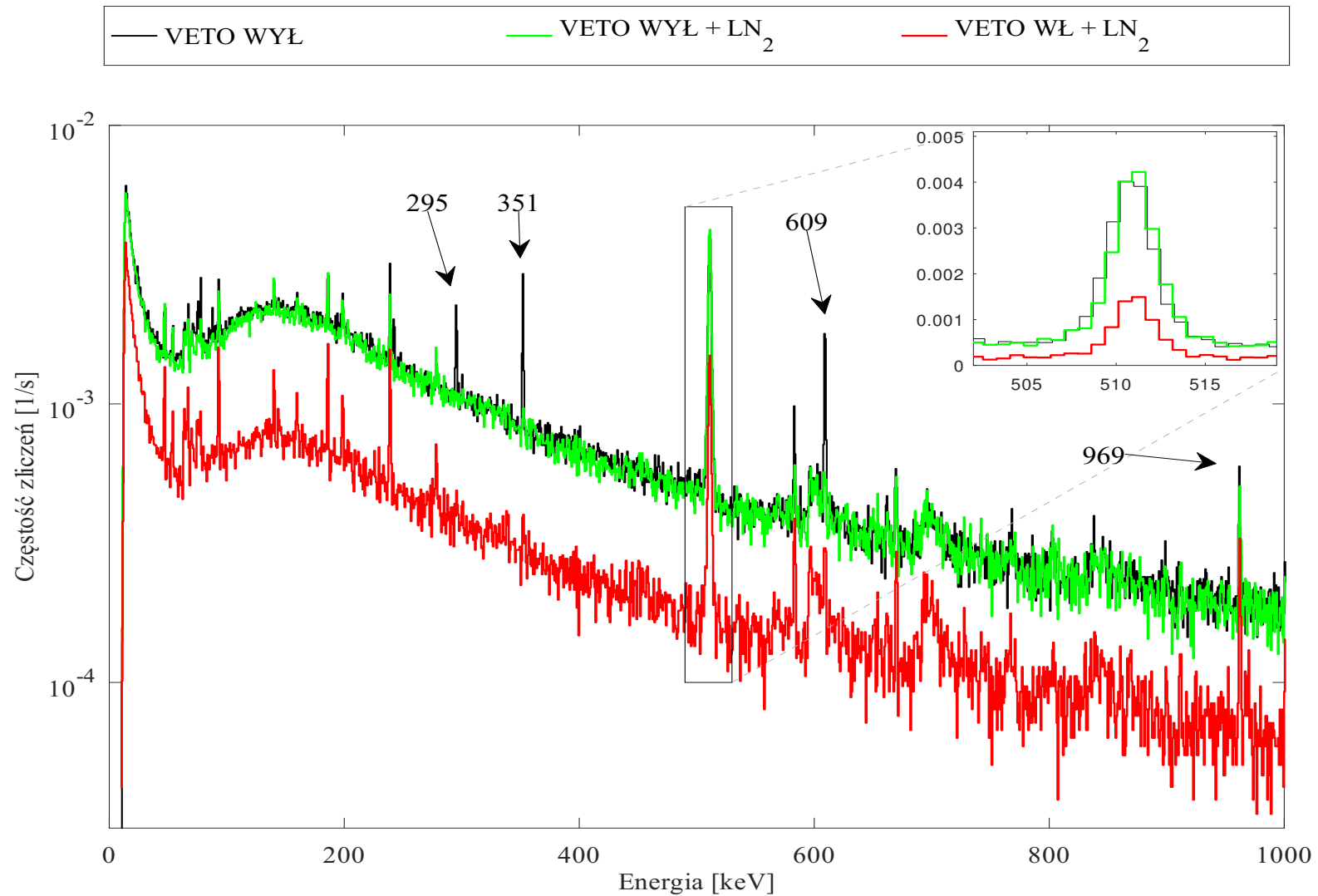
Należy zauważyć, iż w przypadku linii widmowej o energii 880,9 keV pochodzącej

Tabela 6.1 Udział poszczególnych detektorów scyntylacyjnych w redukcji tła detektora germanowego

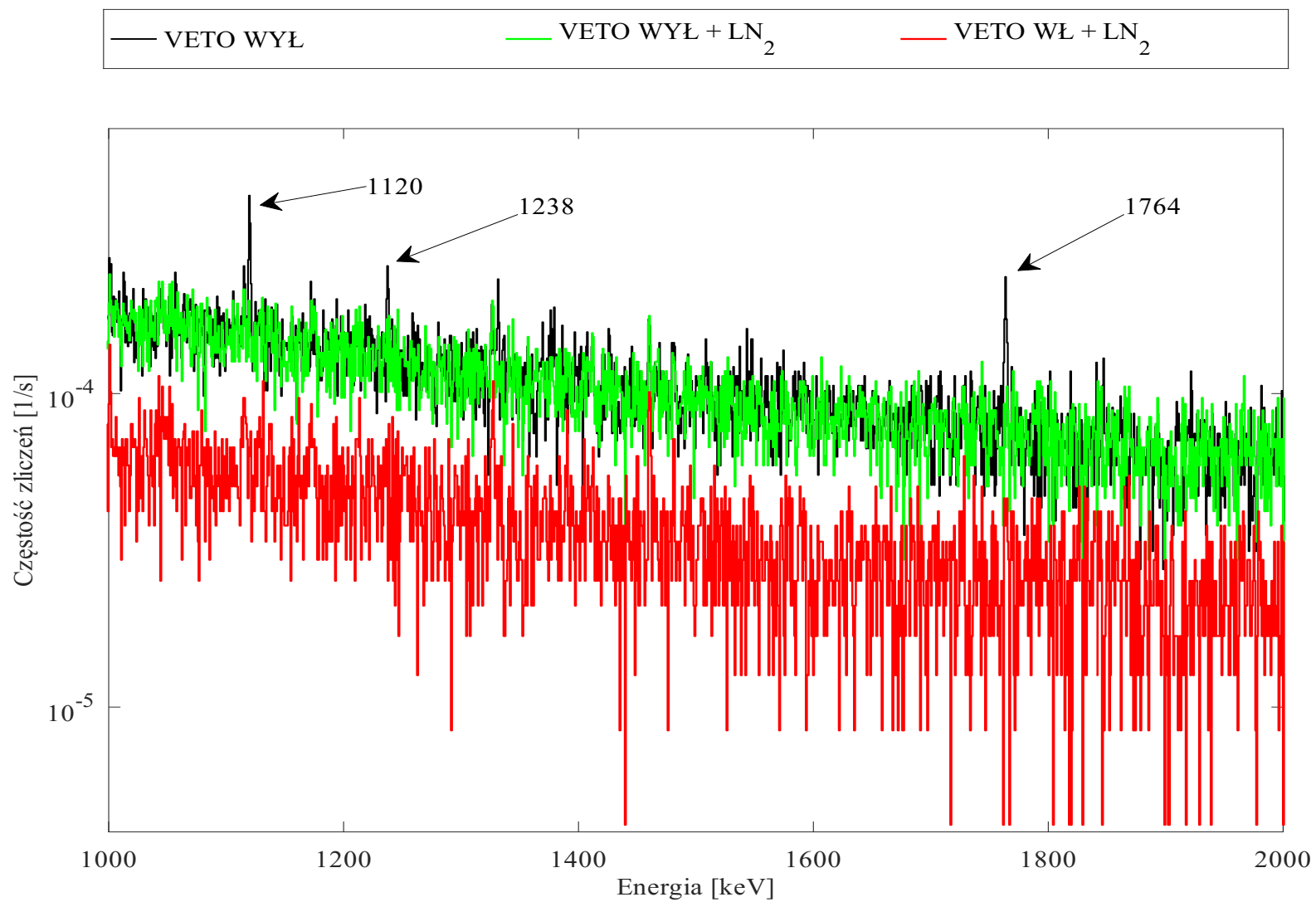
Scyntylator	Redukcja liczby zliczeń [%]	
	Cały zakres widma	Linia 511 keV
REAR	2,9	3,7
TOP	49,6	50,9
BOTTOM	15,0	15,5
FRONT	6,0	5,9
SIDE	5,5	6,6
Wszystkie	58,7	65,1

od nieelastycznego rozpraszania neutronów na jądrach ^{206}Pb prowadzącego do ich wzbudzenia, zaobserwowano wzrost liczby zliczeń netto (współczynnik redukcji jest ujemny i wynosi -22,3%). Efekt ten może być spowodowany zbyt dużą (około 50-cio procentową) niepewnością liczby zliczeń, jak również ogólnym obniżeniem poziomu kontinuum tła, pozwalającym na lepszą definicję samego piku, powodującą wzrost liczby zliczeń netto.

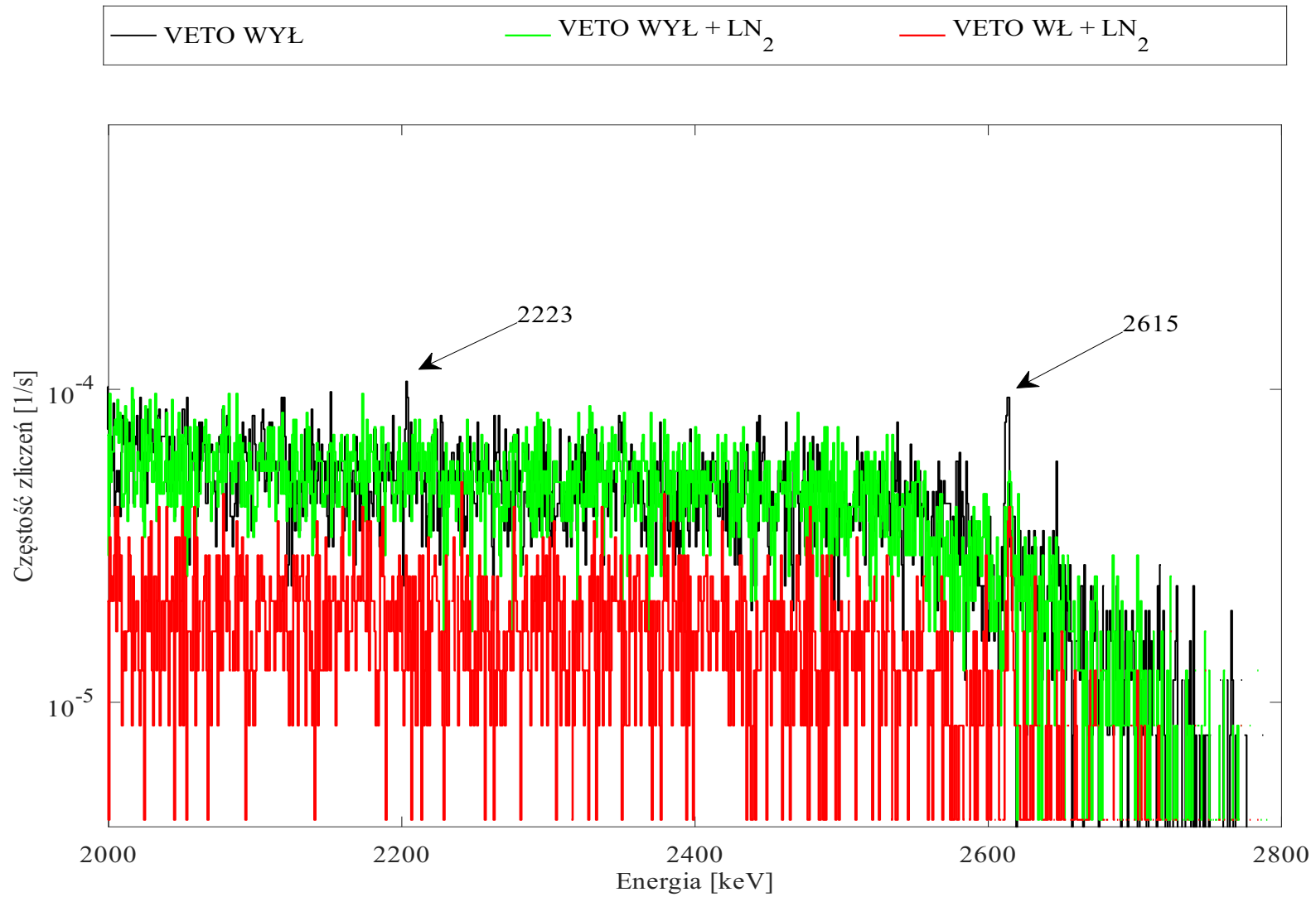
Tabela 6.1 przedstawia udział poszczególnych detektorów scyntylacyjnych w redukcji tła detektora BEGe. Zgodnie z oczekiwaniami, najbardziej efektywnymi w redukcji poziomu tła są scyntylatory zorientowane poziomo: TOP oraz BOTTOM. Są one odpowiedzialne za redukcję odpowiednio 49,3% oraz 15,0% całkowitej liczby zliczeń tła. Stosunek współczynników redukcji wynoszący 3,30 odpowiada stosunkowi pól powierzchni tych detektorów (3,27) co wskazuje na ich jednakową skuteczność względną w zmniejszaniu poziomu tła detektora germanowego. Scyntylatory usytuowane pionowo są około 10 razy mniej wydajne w porównaniu do detektora TOP. Fakt ten można wytłumaczyć wykorzystując to samo zjawisko co przy opisywaniu widm energetycznych scyntylatorów, czyli proporcjonalnością natężenia strumienia mionów do funkcji $\cos^2\theta$ oraz mniejszą (dla kierunku wertykalnego) powierzchnią detektora. Ponadto, scyntylator REAR redukuje jedynie około 3% zliczeń całego widma tła detektora germanowego, co spowodowane jest, ze względów konstrukcyjnych, umieszczeniem go dalej od środka spektrometru niż pozostałe detektory scyntylacyjne. Wartości przedstawione w wierszu „Wszystkie” Tabeli 6.1: 58,7% i 65,1% odpowiednio dla całego widma energetycznego oraz piku anihilacyjnego 511 keV, przedstawiają współczynniki redukcji uzyskane za pomocą oprogramowania VETO, które w części BASIC VETO, nie dokonuje rozróżnienia między koincydencjami pojedynczymi a wielokrotnymi. Zsumowany udział wszystkich scyntylatorów w redukcji tła (49,6% (TOP) + 15,0% (BOTTOM) + 6,0% (FRONT) + 5,5% (SIDE) + 2,9% (REAR)) wynosi 79,0% co, w porównaniu do rzeczywiście osiągniętego stopnia redukcji tła wynoszącego 58,7% pozwala wywnioskować, iż system detektorów veto spektrometru rejestruje 20,3% zdarzeń wielokrotnych, czyli rejestrowanych przez co najmniej dwa scyntylatory.



Rysunek 6.2 Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (0 - 1000 keV), przed i po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego i przepływu oparów azotu przez komorę spektrometru. Mniejszy rysunek przedstawia redukcję zliczeń netto w pikie anihilacyjnym 511 keV. Na wykresie zaznaczono również linie 295 keV, 351 keV, 609 keV oraz 969 keV (w celu zachowania przejrzystości rysunku pominięto jednostkę energii)



Rysunek 6.3 Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (1000 - 2000 keV), przed i po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego i przepływu oparów azotu przez komorę spektrometru. Na wykresie zaznaczono również linie widmowe 1120 keV, 1238 keV i 1764 keV



Rysunek 6.4 Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (2000 - 2800 keV), przed i po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego i przepływu oparów azotu przez komorę spektrometru. Na wykresie zaznaczono również linie widmowe 2223 keV, oraz 2615 keV

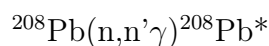
Tabela 6.2 Linie widmowe obecne w tle skonstruowanego spektrometru promieniowania gamma wraz z ich pochodzeniem (na podstawie [6, 17, 32, 74, 78, 103, 159]) oraz redukcją zliczeń netto. W przypadku więcej niż jednej reakcji lub izotopu, kolejne wiersze zawierają izotopy lub reakcje o zbliżonej do podanej energii. U, UA, Th - izotopy pochodzące z szeregu odpowiednio: uranowego (izotop początkowy ^{238}U), torowego (^{232}Th) oraz uranowo-aktynowego (^{235}U), notacja za [17]

Energia [keV]	Reakcja/izotop	Częstość zliczeń [10^3s^{-1}]	Redukcja zliczeń netto [%]
23,4	$^{72}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{73}\text{Ge}$ $^{74}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{73}\text{Ge}$	0,280(94)	77,6
35,5	$^{235}\text{U}(\text{UA})$	0,071(61)	72,3
46,5	$^{210}\text{Pb}(\text{U})$	0,962(68)	33,6
53,2	$^{214}\text{Pb}(\text{U})$ $^{234}\text{U}(\text{U})$ $^{72}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{73}\text{Ge}$ $^{74}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{73}\text{Ge}$	0,563(69)	32,7
63,3	$^{234}\text{Th}(\text{U})$	0,314(59)	58,3
66,7	$^{72}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{73}\text{Ge}$ $^{74}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{73}\text{Ge}$	0,679(71)	28,0
68,7	$^{73}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{73}\text{Ge}^*$	0,141(67)	79,9
75,0	Pb $K\alpha 1$	0,331(57)	75,9
77,1	Bi $K\alpha 1$	0,350(57)	82,2
87,3	Pb $K\alpha 2$	0,087(45)	87,3
89,8	Bi $K\alpha 2$	0,106(55)	68,9
92,6	$^{234}\text{Th}(\text{U})$	1,419(72)	16,9
109,1	$^{235}\text{U}(\text{UA})$? $^{234}\text{Th}(\text{U})$ $^{227}\text{Th}(\text{UA})$	0,424(94)	53,8
139,7	$^{74}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{75}\text{Ge}$ $^{76}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{75}\text{Ge}$	1,050(87)	27,5
143,8	$^{235}\text{U}(\text{UA})$ $^{223}\text{Ra}(\text{UA})$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,430(90)	42,1
159,7	$^{76}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{77\text{m}}\text{Ge}$	0,709(84)	47,4
163,4	$^{235}\text{U}(\text{UA})$	0,201(66)	38,4
175,0	$^{70}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{71}\text{Ge}$ $^{72}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{71}\text{Ge}$	0,095(65)	63,5

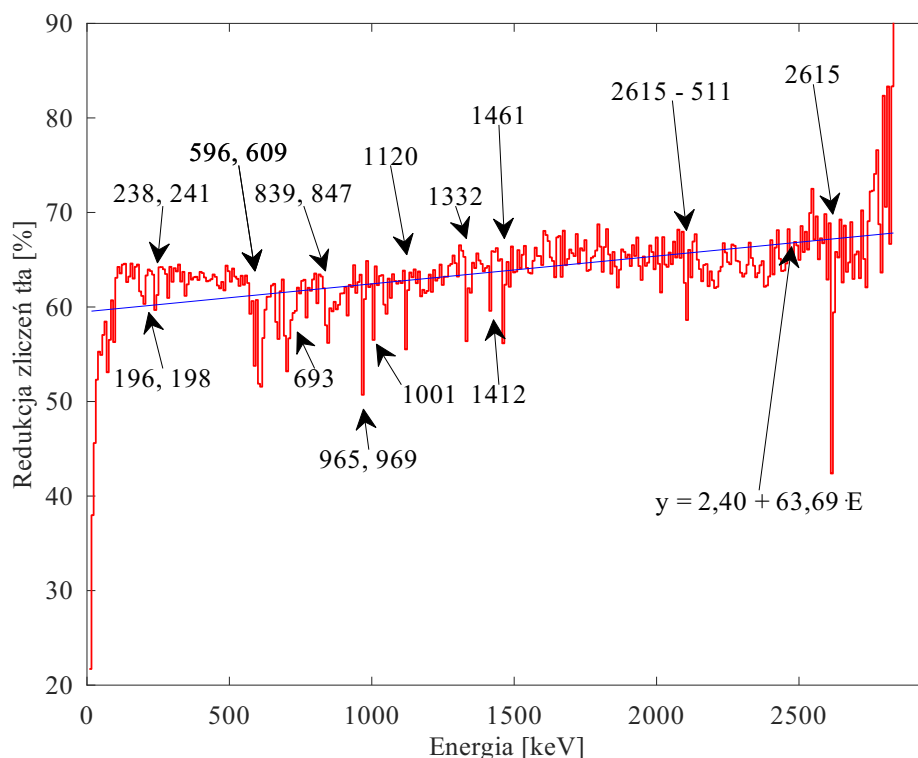
185,9	$^{226}\text{Ra}(\text{U})$ $^{235}\text{U}(\text{UA})$ $^{65}\text{Cu}(\text{n},\gamma)^{66}\text{Cu}$	1,749(81)	17,7
198,3	$^{70}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{71}\text{Ge}$ $^{72}\text{Ge}(\text{n},2\text{n})^{71}\text{Ge}$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	1,039(75)	31,1
202,1	$^{235}\text{U}(\text{UA})$	0,334(76)	19,1
204,1	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$ $^{235}\text{U}(\text{UA})$	0,156(60)	53,4
238,6	$^{212}\text{Pb}(\text{Th})$	1,836(87)	28,8
241,0	$^{224}\text{Ra}(\text{Th})$ $^{214}\text{Pb}(\text{U})$	0,214(68)	81,9
252,6	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$	0,123(60)	46,8
269,4	$^{223}\text{Ra}(\text{UA})$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$ $^{219}\text{Rn}(\text{UA})$	0,088(51)	27,3
277,4	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$ $^{63}\text{Cu}(\text{n},\gamma)^{64}\text{Cu}$ $^{65}\text{Cu}(\text{n},2\text{n})^{64}\text{Cu}$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,598(64)	27,1
295,2	$^{214}\text{Pb}(\text{U})$	0,213(55)	91,2
299,9	$^{227}\text{Th}(\text{UA})$ $^{231}\text{Pa}(\text{UA})$ $^{212}\text{Pb}(\text{Th})$	0,151(59)	60,4
326,8	$^{70}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{71}\text{Ge}$	0,117(57)	27,3
338,3	$^{223}\text{Ra}(\text{UA})$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,187(56)	20,8
345,4	$^{235}\text{U}(\text{UA})$	0,108(44)	69,0
351,0	$^{211}\text{Bi}(\text{UA})$ $^{214}\text{Bi}(\text{U})$ $^{214}\text{Pb}(\text{U})$	0,300(54)	91,0
385,1	$^{211}\text{Bi}(\text{UA})$?	0,103(45)	34,6
409,4	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,028(27)	75,5
477,6	^7Be $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,036(25)	69,4
511	$\text{e}^+ \text{e}^-$	5,749(95)	64,2

562,3	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$ $^{76}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{76}\text{Ge}^*$	0,061(31)	55,9
569,7	$^{207}\text{Pb}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{207}\text{Pb}^*$ $^{76}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{76}\text{Ge}^*$	0,084(33)	49,1
583,1	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$	0,609(44)	41,0
595,8	$^{207}\text{Pb}(\text{n},\gamma)^{208}\text{Pb}$ $^{74}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{74}\text{Ge}^*$ $^{76}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{76}\text{Ge}^*$	0,513(62)	65,5
609,3	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,298(42)	90,6
633	$\text{Ge}(\text{n},\gamma) ?$	0,037(25)	68,6
661,7	^{137}Cs	0,222(36)	46,7
669,6	$^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}^*$	0,438(35)	34,8
693	$^{72}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{72}\text{Ge}^*$	0,429(54)	32,2
727,0	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$ $^{212}\text{Bi}(\text{Th})$	0,068(24)	35,8
763,1	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$	0,031(25)	28,7
766,4	$^{234m}\text{Pa}(\text{U})$ $^{214}\text{Bi}(\text{U}) ?$	0,084(26)	80,0
772,1	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,112(30)	28,7
803,3	$^{206}\text{Pb}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{206}\text{Pb}^*$	0,158(29)	60,3
839,0	$^{214}\text{Pb}(\text{U})$ $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,042(23)	81,9
846,8	$^{56}\text{Fe}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{56}\text{Fe}^*$	0,046(26)	86,3
860,4	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$	0,031(24)	65,8
867,9	$^{73}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{74}\text{Ge}$	0,038(24)	70,6
880,9	$^{206}\text{Pb}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{206}\text{Pb}^*$	0,053(26)	-22,3
899,6	$^{207}\text{Bi} ?$	0,094(28)	51,5
911,1	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,109(23)	30,4
961,1	$^{73}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{74}\text{Ge}$ $^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}^*$	0,598(35)	26,8
964,6	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,036(19)	54,6
968,9	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,082(24)	25,8
1001,0	$^{234m}\text{Pa}(\text{U})$	0,188(32)	17,5

1052,0	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,024(18)	40,0
1063,6	$^{207}\text{Pb}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{207}\text{Pb}^*$ $^{74}\text{Ge}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{74}\text{Ge}^*$	0,052(22)	50,8
1101,3	$^{73}\text{Ge}(\text{n},\gamma)^{74}\text{Ge}$	0,038(16)	19,7
1115,5	$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{65}\text{Cu}^*$ $^{70}\text{Ge}(\text{n},2\text{n}\alpha)^{65}\text{Zn}$	0,251(29)	15,8
1120,3	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,028(19)	95,7
1155,2	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,019(18)	72,6
1173,2	^{60}Co	0,133(28)	48,6
1207,7	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,018(15)	54,4
1226,4	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,052(22)	54,5
1238,1	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,028(18)	89,5
1247,1	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,028(19)	58,5
1253,5	^{214}Bi (1764 keV - 511 keV)	0,023(21)	75,9
1293,5	$^{115}\text{In}(\text{n},\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$	0,024(19)	74,0
1327,0	$^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}^*$	0,164(25)	27,9
1332,5	^{60}Co	0,092(24)	60,2
1392,6	$^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}$	0,018(13)	78,6
1412,1	$^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}^*$	0,096(19)	43,4
1461,0	^{40}K $^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,189(21)	25,0
1481,7	$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{65}\text{Cu}^*$	0,097(21)	62,4
1495,8	$^{228}\text{Ac}(\text{Th})$	0,020(18)	80,7
1512,8	$^{212}\text{Bi}(\text{Th})$	0,018(14)	76,9
1547,0	$^{63}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{63}\text{Cu}^*$	0,045(16)	69,9
1623,4	$^{65}\text{Cu}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{65}\text{Cu}^*$	0,039(16)	52,5
1640,0	$^{54}\text{Fe}(\text{n},\gamma)^{55}\text{Fe}$	0,024(15)	80,3
1764,6	$^{214}\text{Bi}(\text{U})$	0,034(15)	93,7
2092,8	$^{207}\text{Pb}(\text{n},\text{n}'\gamma)^{207}\text{Pb}^*$	0,013(8)	90,2
2103,5	^{208}Tl (2614 keV - 511 keV)	0,063(17)	35,3
2223,0	$^1\text{H}(\text{n},\gamma)^2\text{H}$	0,014(10)	90,1
2614,5	$^{208}\text{Tl}(\text{Th})$	0,205(17)	31,2



Rysunek 6.5 przedstawia wartość współczynnika redukcji liczby zliczeń tła detektora germanowego w funkcji energii promieniowania uzyskaną po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego. Wartość tego współczynnika liczona jest dla każdego kolejnych 10 kanałów widma.



Rysunek 6.5 Redukcja liczby zliczeń tła detektora germanowego w funkcji energii promieniowania, liczona dla każdego kolejnych 10 kanałów widma uzyskana dzięki zastosowaniu detektorów veto. Na rysunku zaznaczono też energie ([w keV]) wybranych linii widmowych. Można zaobserwować spadek wartości współczynnika redukcji dla pików, co jest manifestacją faktu ich dalszej obecności w widmie nawet po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego

Na rysunku zaznaczono wybrane linie widmowe (energije wyrażone w keV). Wraz ze wzrostem energii promieniowania, wartość współczynnika redukcji wzrasta co jest spowodowane mniejszą liczbą linii widmowych tła o energiach powyżej 1000 keV. Linia niebieską zaznaczono liniowy trend wartości współczynnika redukcji (wyznaczony bez uwzględnienia czterech krańcowych kanałów widma), potwierdzający wzrost efektywności eliminacji zliczeń tła. Można również zauważyć, zmniejszenie wartości współczynnika redukcji dla linii widmowych tła co jest manifestacją faktu, iż nawet po zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego, w widmie detektora BEGe, linie te są wciąż obecne. Jest to zgodnie z oczekiwaniami, gdyż oddziaływania mionów promieniowania kosmicznego nie wpływają na liczbę zliczeń linii widmowych izotopów pochodzących z zewnętrznego ziemskiego promieniowania gamma, promieniotwórczości powietrza lub izotopów obecnych w materiałach konstrukcyjnych spektrometru. Ponadto, nie wszystkie reakcje mionów w osłonie

pasywnej spektrometru oraz samym detektorze germanowym są eliminowane przez osłonę aktywną, stąd nawet linie widmowe powstające na skutek nieelastycznego rozpraszania neutronów (emitowanych w skutek wychwytu mionów) są obecne w widmie antykoincydencyjnym. Należy również nadmienić, iż bezpośrednie oddziaływanie mionów promieniowania kosmicznego z detektorem germanowym prowadzi do generacji widma ciągłego (z wyłączeniem pików anihilacyjnego 511 keV) - patrz Rys. 2 w pracy Nitsch et al. [157].

W celu oszacowania ewentualnego wpływu układu antykoincydencyjnego na wydajność detektora BEGe przy pomiarze rzeczywistych materiałów badawczych, wyznaczono znormalizowane względne różnice powierzchni wybranych pików fotoelektrycznych przed i po zastosowaniu detektorów systemu veto według wzoru:

$$R_{veto}(E_\gamma) = \frac{N_{WYŁ}(E_\gamma) - N_{WL}(E_\gamma)}{N_{WYŁ}(E_\gamma)} \quad (6.1)$$

gdzie:

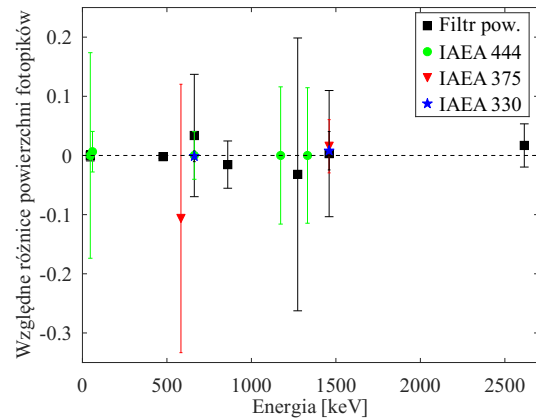
$R_{veto}(E_\gamma)$ - znormalizowana względna różnica powierzchni foto-piku o energii E_γ ,

$N_{WYŁ}(E_\gamma)$ - liczba zliczeń w pikcie fotoelektrycznym o energii E_γ przed zastosowaniem układu antykoincydencyjnego,

$N_{WL}(E_\gamma)$ - liczba zliczeń w pikcie fotoelektrycznym o energii E_γ po zastosowaniu układu antykoincydencyjnego.

Podczas eksperymentu dokonano pomiaru próbki aerozoli atmosferycznych zebranych na filtrze powietrza (po tygodniowej ekspozycji) oraz trzech materiałów referencyjnych: IAEA 444 [123], IAEA 375 [124] oraz IAEA 330 [122]. Wybrane materiały badawcze pozwoliły dokonać analizy dla szerokiego zakresu energii promieniowania gamma emitowanego przez izotopy w nich zawarte, mianowicie od 46,5 keV do 2,6 MeV. Rysunek 6.6 przedstawia otrzymane wyniki, na podstawie których można wyciągnąć wniosek, iż system antykoincydencyjny nie powoduje zmian w wydajności detektora germanowego, co potwierdzone jest tym, że wszystkie wyznaczone względne różnice powierzchni wybranych foto-pików są bliskie zera (w granicach niepewności pomiarowej). Średnia wartość $R_{veto}(E_\gamma)$ wyniosła $-0,0046$. Test t-Studenta dla pojedynczej próby wykazał że wartość ta nie różni się znacząco od zera - p-wartość testu wyniosła 0,5545, co dla poziomu istotności $\alpha_t = 0,05$ nie daje podstaw do odrzucenia hipotezy zerowej.

Po przeprowadzeniu procesów konfiguracji i optymalizacji oraz wykonaniu opisanych testów, układ niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma został wykorzystany w szeregu pomiarów aktywności izotopów gamma - promieniotwórczych obecnych w wybranych materiałach badawczych. Większość badanych próbek charakteryzuje się stężeniami aktywności radioizotopów na tak niskich poziomach, że ilościowe ich ozna-



Rysunek 6.6 Znormalizowane względne różnice powierzchni wybranych foto-pików przed i po zastosowaniu układu antykoincydencyjnego dla wybranych materiałów badawczych - filtru powietrza oraz materiałów referencyjnych IAEA 444, IAEA 375 oraz IAEA 330. Linia przerywana zaznaczono poziom zero, a słupki niepewności przedstawiają niepewność zliczeń w danej linii widmowej

czenie jest niemożliwe za pomocą standardowych spektrometrów promieniowania gamma. W następnej części rozprawy - *Części badawczej*, przedstawiono studium przypadków przeprowadzonych eksperymentów wraz z opisami, otrzymanymi wynikami oraz ich dyskusją.

CZEŚĆ BADAWCZA

Rozdział 7

Monitoring radiologiczny powietrza

Monitoring zanieczyszczeń radioaktywnych powietrza, polega na ciągłym poborze prób aerozoli atmosferycznych za pomocą dedykowanych stacji poboru wyposażonych w odpowiednie filtry, a następnie pomiarach spektrometrycznych tych filtrów, pozwalających wyznaczyć stężenia aktywności zdeponowanych izotopów promieniotwórczych w nich zawartych [15, 170]. Analizy te służą przede wszystkim do wczesnego wykrycia zdarzeń jądrowych, ale również umożliwiają badanie różnorodnych zjawisk fizycznych, takich jak transport i retencja radionuklidów w środowisku. Otrzymane wyniki dają możliwość wyznaczania koncentracji izotopów promieniotwórczych oraz zmian ich stężenia w powietrzu jak również, oszacowania potencjalnej depozycji izotopów w środowisku (a co za tym idzie, ewentualnego skażenia promieniotwórczego) będącej efektem zaistnienia jądrowych i/lub radiologicznych zdarzeń oraz oceny narażenia mieszkańców danego rejonu na działanie promieniowania jonizującego.

W Instytucie Fizyki Jądrowej Polskiej Akademii Nauk w Krakowie, pobór próbek aerozoli atmosferycznych z przygruntowej warstwy powietrza dokonywany jest za pomocą dwóch stacji poboru ASS-500 i MASS-500 (Rysunek 7.1). Pierwsza z nich pracuje w ramach systemu wczesnego wykrywania skażeń promieniotwórczych i otrzymane za jej pomocą wyniki przesyłane są do ich dysponenta czyli Centralnego Laboratorium Ochrony Radiologicznej (CLOR)¹, które koordynuje krajową sieć monitoringu [152, 170]. Z kolei stacja MASS-500 jest własnością IFJ PAN. Rutynowo filtry w obu stacjach zmieniane są w trybie tygodniowym (co poniedziałek) z możliwością zwiększenia częstotliwości zmian w przypadku sytuacji awaryjnej.

Obie stacje - ASS-500 oraz MASS-500 są wysokowydajnymi stacjami poboru aerozoli atmosferycznych o nominalnej szybkości przepływu



Rysunek 7.1 Stacja poboru aerozoli atmosferycznych MASS-500 znajdująca się na terenie IFJ PAN

¹Dane pomiarowe uzyskane za pomocą stacji ASS-500 i analizowane w niniejszej rozprawie wykorzystano za zgodą CLOR

500 m³/h pracującymi w trybie ciągłym. Aerozole gromadzone są na filtrach Petrianova typu FPP - 15 - 1.5 (Postchlorinated Polyvinylchloride PCV Fiber), przystosowanych do zatrzymywania aerozoli o minimalnej średnicy 0,3 μm, przy czym maksymalna efektywność tego procesu, na poziomie 96% - 99%, występuje dla cząstek o średnicach od 0,3 μm do 1,25 μm i szybkości przepływu powietrza w zakresie 0,25 m/s - 0,4 m/s. [105, 152]. Stosowane filtry mają wymiary 44,5 cm x 44,5 cm oraz 44,5 cm x 54,5 cm i instalowane są na wysokości 1,6 m i 1,8 m powyżej powierzchni gruntu odpowiednio dla stacji ASS-500 i MASS-500. Dodatkowo, konstrukcja stacji MASS-500 umożliwia montaż prostopadłościennych, aluminiowych pojemników (kaset) z węglem aktywnym, umożliwiających absorpcję gazowej frakcji powietrza (szczegóły konstrukcji kaset można znaleźć w pracy Mietelski et al. (2014) [146]). Kasety te montowane są we wlocie stacji, poniżej filtra Petrianova.

Po okresie ekspozycji, filtr powietrza przygotowywany jest do pomiaru gamma - spektrometrycznego poprzez sprasowanie w prasie hydraulicznej do postaci krążka o średnicy ok. 5 cm oraz wysokości ok. 4 mm, co stanowi zdefiniowaną geometrię pomiaru dla tego typu próbek (tzw. geometria filtra powietrza, FP). Krzywa wydajności spektrometru dla tej geometrii uzyskiwana jest poprzez pomiar źródła kalibracyjnego w tej samej geometrii. Następnie dokonywany jest pomiar z wykorzystaniem spektrometru promieniowania gamma, a uzyskane w jego wyniku widmo energetyczne pozwala na identyfikację zaabsorbowanych radioizotopów i kwantyfikację ich stężeń aktywności.

Skonstruowany niskotłowy spektrometr promieniowania gamma, od samego początku wykorzystywany jest w rutynowych pomiarach filtrów powietrza na potrzeby monitoringu skażeń radioaktywnych przygruntowej warstwy powietrza. Początkowo, stosowano analogową akwizycję danych, jednak, w celu zapewnienia jak najlepszej jakości uzyskiwanych wyników, po przeprowadzeniu procesów konfiguracji i optymalizacji parametrów pracy digitizera, wykorzystywany jest **cyfrowy układ akwizycji wraz z osłoną aktywną spektrometru**.

Autor niniejszej rozprawy był odpowiedzialny za obsługę obu wyżej wymienionych stacji poboru aerozoli atmosferycznych tj. regularne, minimum cotygodniowe, wymiany filtrów, przygotowanie próbek do badań, przeprowadzanie pomiarów gamma - spektrometrycznych, analiza otrzymanych widm energetycznych oraz sporządzanie raportów dla CLOR od grudnia 2016 r. do lutego 2020 r.

7.1 Detekcja izotopów rutenu w atmosferze w 2017 r.

W niniejszym podrozdziale opisane zostaną badania przeprowadzone w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN związane z obecnością izotopów rutenu w atmosferze jesienią 2017 r. oraz ich wyniki uzyskane za pomocą konstruowanego, niskotłowego spektrometru promieniowania gamma. Należy zaznaczyć, że przedstawione rezultaty badań stanowią jedynie część wszystkich wyników analiz przeprowadzonych w Zakładzie, w celu zbadania zagadnienia incydentalnego uwolnienia radioizotopów. Wyniki przedstawione w tym podrozdziale, jak również uzyskane przy pomocy innych detektorów promieniowania gamma oraz metod spektrometrycznych promieniowania α i β , prezentowane były na międzyna-

rodowych konferencjach oraz są zawarte w cytowanych publikacjach.

Incydentalne uwolnienie izotopów rutenu do atmosfery nastąpiło w czasie kiedy **osłona aktywna spektrometru nie była jeszcze gotowa**, dlatego część pomiarów wykonanych zostało z zastosowaniem jedynie detektora BEGe oraz analogowego toru spektrometrycznego opartego o analizator Tukan 8K USB. Niemniej jednak, ze względu na chronologię procesu budowy i konfiguracji niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma oraz bezpośrednio zaangażowanie autora w opisane badania, podrozdział ten stanowi otwarcie „Części badawczej” niniejszej rozprawy doktorskiej.

7.1.1 Informacje wstępne

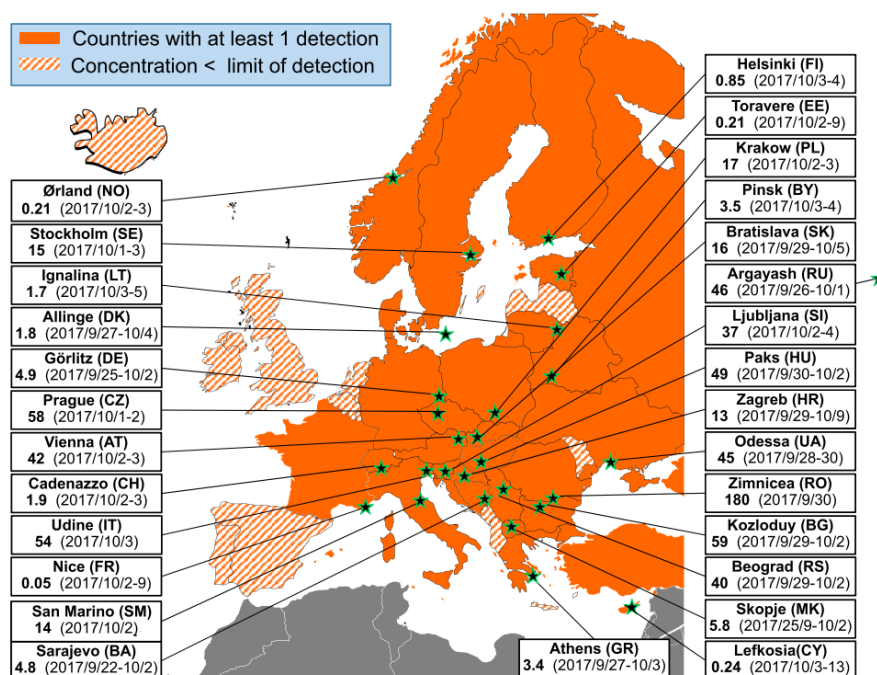
Ruten (Ru) jest pierwiastkiem grupy VIII układu okresowego, jednym z pierwiastków grupy metali przejściowych o relatywnie niskiej zawartości w skorupie ziemskiej - na poziomie 1 ppb (10^{-9}) [79]. Posiada 7 stabilnych oraz 32 niestabilne izotopy spośród których najtrwalsze to ^{106}Ru (czas połowicznego zaniku $T_{1/2} = 373$ dni), ^{103}Ru ($T_{1/2} = 39$ dni) oraz ^{102}Ru ($T_{1/2} = 2,9$ dni) [153]. Radioaktywny ^{106}Ru jest izotopem antropogenicznym pozyskiwanym w procesie przeróbki paliwa jądrowego lub produkowanym w trakcie separacji produktów aktywacji neutronowej z tarcz wysokowzbogaconych np. w ^{235}U [13]. Izotop ten znajduje zastosowanie w brachyterapii nowotworów oka, jak również jako źródło energii w radioizotopowych generatorach termoelektrycznych (RTG) [18].

^{106}Ru jest czystym emitentem β (maksymalna energia cząstki beta 39 keV) i ulega rozpadowi do ^{106}Rh ($T_{1/2} = 30,1$ s) z którym w ciągu kilku minut osiąga trwałą równowagę promieniotwórczą. ^{106}Rh również jest beta emitentem (o średniej energii 1,4 MeV, maksymalnej 3,5 MeV) jednak po jego rozpadzie, do ^{106}Pd następuje również emisja promieniowania gamma (główne linie widmowe to 512 keV (20%), 622 keV (9,9%) oraz 1050 keV (1,56%)) [18]. Ze względu na powyższe własności, identyfikacja ^{106}Ru w badanych próbkach wykonywana była za pomocą spektrometrii promieniowania gamma, poprzez analizę linii widmowych ^{106}Rh .

Chronologia wydarzeń

Pierwsze informacje o detekcji ^{106}Ru za pomocą sieci stacji monitoringu radiologicznego przygruntowej warstwy powietrza, nadeszły 2 października 2017 roku z laboratoriów zlokalizowanych w północnych Włoszech, Czechach, Austrii oraz Norwegii. Następnego dnia, informacje te zostały potwierdzone przez inne kraje, w tym Polskę, a wyznaczone stężenia aktywności zawierały się w przedziale od poniżej jednego do kilkuset mBq/m^3 . Zarówno przedział zmienności stężenia aktywności ^{106}Ru w atmosferze, jak i geograficzny zasięg rozprzestrzeniającego się skażenia (wykrycie izotopów rutenu w atmosferze zostało zgłoszone przez 31 państw [179]), wskazywało na poważne uwolnienie radioizotopów do atmosfery [139]. Rysunek 7.2 przedstawia mapę z oznaczeniem miejsc gdzie zaobserwowano maksymalne stężenia ^{106}Ru , przy czym najwyższe stężenie aktywności w Europie zostało zarejestrowane w Rumunii - $176(18) \text{mBq}/\text{m}^3$ [139].

7 października 2017 roku, Międzynarodowa Agencja Energii Atomowej (ang. *International Atomic Energy Agency*, IAEA) zażądała od 43 europejskich państw członkowskich



Rysunek 7.2 Maksymalne stężenia aktywności ^{106}Ru [w mBq/m^3] w Europie. Najwyższe stężenie aktywności zaobserwowano w Rumunii - 176(18) mBq/m^3 . W nawiasach podano okres ekspozycji filtrów [139]

danych oraz wskazania możliwych źródeł radiorutenu. Dwa dni później, lokalne władze w Czelabińsku i Swierdłowsku (Federacja Rosyjska) wykluczyły możliwość, żeby emisja nastąpiła z ich terytorium. Z kolei 21 listopada 2017 r. Rosyjska Federalna Służba Hydrometeorologii i Monitorowania Środowiska Rosji (Roshydromet) ogłosiła identyfikację ^{106}Ru w próbkach aerozoli atmosferycznych w okolicach południowego Uralu pod koniec września 2017 r [173]. Najbardziej prawdopodobnym źródłem emisji w tamtym regionie są Zakłady Majak zajmujące się między innymi przeróbką paliwa jądowego, których przedstawiciele jednak zaprzeczyli tym podejrzeniom [139, 156]. 8 grudnia 2017 r. rosyjskie władze ponownie zadeklarowały, że Zakłady Majak nie były źródłem uwolnionych izotopów rutenu [139]. Dwa tygodnie później, 22 stycznia 2018 r., Instytut Bezpieczeństwa Jądowego Rosyjskiej Akademii Nauk zaprosił ekspertów z Niemiec, Francji, Finlandii, Szwecji, Wielkiej Brytanii oraz Rosji do pomocy w celu wyjaśnienia przyczyn emisji rutenu do atmosfery. Odbyły się dwie komisje eksperckie: 31 stycznia oraz 11 kwietnia 2018 r., których spotkania zakończyły się stwierdzeniem, że brak jest wystarczającej ilości danych, aby jednoznacznie wskazać źródło uwolnionego do atmosfery ^{106}Ru [154].

W oparciu o symulacje przeprowadzone na podstawie wyników pomiarów stężeń aktywności ^{106}Ru w atmosferze w Europie oszacowano, że całkowita aktywność tego izotopu uwolnionego do atmosfery waha się w granicach od 100 TBq [18] do 250 TBq [139]. Ponadto, oprócz ^{106}Ru , w 4 krajach w Europie (m.in. w Polsce) wykryto śladowe ilości ^{103}Ru . Identyfikacja wyselekcjonowanych izotopów antropogenicznych w atmosferze - w tym przypadku izotopów rutenu, jednoznacznie zaprzecza hipotezie, o niezgłoszonej awarii reaktora jądowego [18].

Na podstawie szeregów czasowych detekcji rutenu w różnych częściach Europy Środkowej, zdarzenie zostało scharakteryzowane jako krótkotrwałe uwolnienie, nie trwające

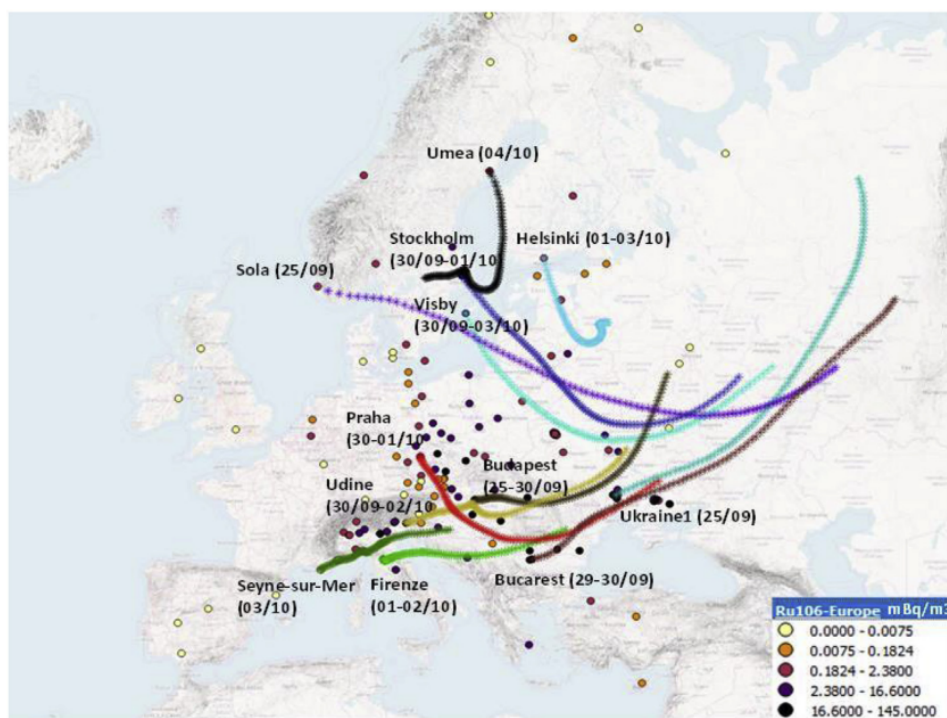
dłużej niż jeden dzień [139]. Kolejne analizy pozwoliły na wykluczenie, jako źródła uwolnienia, spopielenie lub stopienie źródeł medycznych przeznaczonych do terapii nowotworów oczu. Źródła tego typu mają aktywność rzędu od kilku do kilkudziesięciu megabekereli [2] i emisja do atmosfery aktywności odpowiadającej nawet kilku tysiącom takich źródeł, nie spowodowałoby uwolnienia na taką skalę, jaka była obserwowana w 2017 r. [99].

Kolejną hipotezą pojawienia się radiorutenu w powietrzu, było zejście z orbity i spalenie się w górnych warstwach atmosfery satelity wyposażonego w radioizotopowy generator termoelektryczny (RTG) ze źródłem ^{106}Ru . Zdarzenie takie jest jednak mało prawdopodobne z powodu krótkiego czasu połowicznego zaniku ^{106}Ru , w porównaniu z oczekiwanym czasem pracy satelity, jak również, agencje kosmiczne oficjalnie nie stwierdziły straty żadnego z satelitów jesienią 2017 r. [139]. Ponadto zdarzenie takie charakteryzowałoby się wertykalnym rozkładem stężenia aktywności izotopów rutenu w atmosferze - im wyższa byłaby wysokość, tym wyższe powinno być stężenie. Jednakże koncentracja ^{106}Ru w stacjach zlokalizowanych na dużych wysokościach, była poniżej limitów detekcji lub stężenia były znacznie niższe niż na mniejszych wysokościach. Ta obserwacja wskazuje, że do uwolnienia doszło w niższych warstwach troposfery. Co więcej, jednoczesne wykrycie śladów ^{103}Ru w niektórych lokalizacjach zdecydowanie obala hipotezę zniszczenia satelity w górnych warstwach atmosfery ze względu na krótki okres półtrwania tego izotopu rutenu [139].

Za najbardziej prawdopodobną hipotezę, przyjęto uwolnienie izotopów rutenu w czasie przeróbki paliwa jądrowego w Zakładach Majak w Federacji Rosyjskiej [139]. Zakłady te były zaangażowane w wytworzenie silnego źródła ^{144}Ce na potrzeby eksperymentu Short Baseline Neutrino Oscillations with Borexino (jego pierwszą fazę nazwaną CeSOX) [203] mającego sprawdzić istnienie neutrina sterylnego, cząstki niewystępującej w Modelu Standardowym i traktowanej jako czwarta generacja neutrin [18, 139]. W tym celu konieczne było wykorzystanie stabilnego źródła antyneutrin i właśnie źródło ^{144}Ce było uważane za najbardziej odpowiednie. Izotop ten pozyskiwany jest w trakcie przeróbki paliwa jądrowego, przy czym prawdopodobieństwo produkcji izotopu o masie 144, w wyniku rozpadu ^{235}U wynosi 3,76% i jest zbliżone do prawdopodobieństwa produkcji izotopu o masie 106 - 4,20% [145]. Stąd, jednym z etapów produkcji źródła cerowego jest radiochemiczna separacja rutenu i możliwym jest, iż zarówno ^{144}Ce jak i ^{106}Ru zostały uzyskane w tym samym procesie [145].

Cały proces produkcji źródła ^{144}Ce został wstrzymany w grudniu 2017 r. Powodem tego, według oficjalnych doniesień, miał być brak możliwości uzyskania źródła o pożądanej aktywności (około 3,5 do 5 PBq ^{144}Ce [139]), natomiast cały eksperyment anulowano w lutym 2018 r. [18, 158]. Wyznaczone trajektorie wsteczne (Rysunek 7.3), analizy szeregów czasowych przypadków detekcji, jak również badania formy chemicznej rutenu, stanowią uzasadnienie opisanej powyżej hipotezy, wskazując, iż źródło emisji znajdowało się w okolicach południowego Uralu [18, 88, 139, 179].

Nie mniej jednak, w pracy Mietelski i Povinec (2020) [145], autorzy zwracają uwagę na dodatkowe okoliczności takie jak fakt, iż szacowana całkowita uwolniona aktywność na poziomie 0,3 PBq jest bardzo mała w porównaniu ze spodziewaną aktywnością źródła cerowego dochodzącą do 5 PBq. Wartym zainteresowania jest również fakt, iż doszło



Rysunek 7.3 Trajektorie wsteczne wskazujące lokalizację potencjalnego źródła ^{106}Ru , których początki stanowią położenia wybranych stacji monitoringu powietrza na terenie Europy [18]

do uwolnienia właśnie ^{106}Ru , podczas gdy na potrzeby eksperymentu CeSOX, powstać miało źródło ^{144}Ce . Hipotezą stawianą przez autorów jest uwolnienie rutenu (który mógł zostać uzyskany w trakcie tego samego procesu przeróbki paliwa jądowego co ^{144}Ce) z silnika odrzutowego, w którym źródłem ciepła jest izotopowy generator wykorzystujący relatywnie wysoką energię cząstek β emitowanych w wyniku rozpadu ^{106}Rh , a uzyskiwana moc wynosiłaby 100 kW na każde 500 PBq. Według szacunków, silnik taki mógłby służyć jako napęd w niewielkich pociskach lub dronach, a uwolnienie radioizotopów do atmosfery, mogło mieć miejsce w czasie przygotowań silnika, testów lub nawet w czasie lotu, który mógł mieć miejsce na oddalonym o 100 km na zachód od Zakładów Majak poligonie raketowym [145].

Należy nadmienić, iż żaden kraj nie wziął oficjalnej odpowiedzialności za uwolnienie radioizotopów rutenu do atmosfery, co podważa wiarygodność międzynarodowej wymiany danych i komunikacji w sprawach ochrony radiologicznej, pomimo istnienia przeznaczonych do tego baz danych i rozwiniętej sieci monitoringu [18].

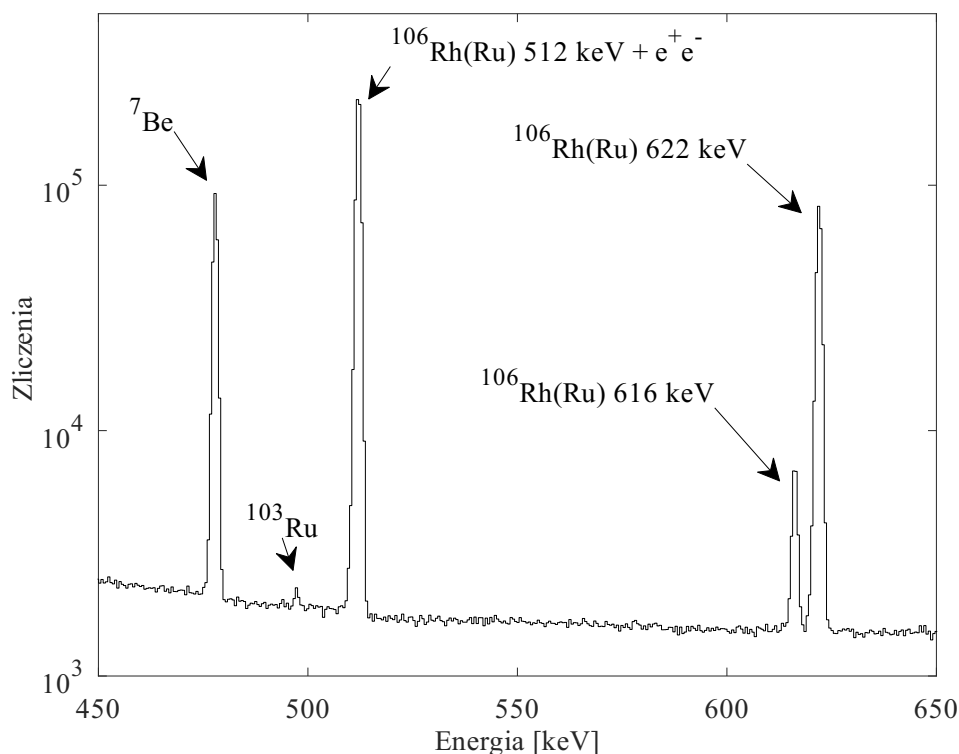
Emisja izotopów rutenu do atmosfery nie stanowiła ryzyka radiologicznego dla ogółu populacji w Europie. Szacowana dawka wchłonięta drogą oddechową, wyniosła maksymalnie $0,3 \mu\text{Sv}$, a dawka kolektywna dla Europy około 23 Sv [18].

7.1.2 Badania wykonane w IFJ PAN

Próbki aerozoli atmosferycznych

Z chwilą wykrycia skażenia radiologicznego powietrza izotopami rutenu, w IFJ PAN podjęto decyzję o zwiększeniu częstotliwości zmian filtrów w stacji MASS-500 z jednego tygodnia do jednego dnia, w celu poprawy rozdzielczości czasowej wyników. W tym sa-

mym czasie, stacja ASS-500 nadal pracowała w trybie tygodniowym. Fragment widma energetycznego dwóch filtrów powietrza (mierzonych jednocześnie), zawierającego linie widmowe ^{106}Ru i ^{103}Ru , przedstawia Rysunek 7.4.



Rysunek 7.4 Fragment widma energetycznego dwóch filtrów powietrza ze stacji MASS-500, eksponowanych w czasie obecności izotopów rutenu w atmosferze (okres ekspozycji filtrów 25.09 - 03.10.2017 r.). Zaznaczono linie widmowe $^{106}\text{Rh}(\text{Ru})$ i ^{103}Ru oraz izotopu kosmogenicznego ^7Be

Tabela 7.1 przedstawia wyznaczone stężenia aktywności ^{106}Ru w aerozolu zaabsorbowanych na filtrach powietrza jesienią 2017 r. Metodologię wyznaczania aktywności i stężeń aktywności izotopów gamma-promieniotwórczych obecnych w badanych próbkach, w oparciu o analizę ich widm energetycznych, przedstawiono w Dodatku D, natomiast kalibracja spektrometru została wykonana przy użyciu źródła kalibracyjnego zawierającego mieszaninę izotopów gamma-promieniotwórczych (tzw. mix-gamma). W tym miejscu należy wspomnieć, iż w badaniach prowadzonych na potrzeby monitoringu radiologicznego powietrza, za granicę oznaczalności przyjmuje się wartość MDC wyznaczoną dla przedziału ufności zawężonego z 95% do 70% (MDC 70).

Najwyższą wartość stężenia aktywności ^{106}Ru zaobserwowano w filtrze eksponowanym w okresie od 02.10.2017 do 03.10.2017 roku, i wynosiła ona $16700(1200) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (co jest o jeden rząd wielkości mniej niż najwyższa wartość zanotowana w Europie). Następnego dnia, stężenie to znacznie spadło do $2,4(2) \text{mBq}/\text{m}^3$. Czwartego października 2017 r. nad Europę Środkową dotarł orkan Ksawery (niż wtórny), który 5.10.2017 r. na terytorium Polski spowodował silny wiatr z kierunku zachodniego (lokalnie szybkość wiatru dochodziła do $120 \text{km}/\text{h}$) oraz obfite opadu deszczu [44]. Konsekwencją pojawienia się tego niżu był znaczny spadek stężenia aktywności ^{106}Ru , poniżej limitów detekcji ($10 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$).

Tabela 7.1 Stężenia ^{106}Ru w filtrach powietrza eksponowanych w stacji MASS-500. Kolumny MDC i MDC 70 prezentują minimalną mierzalną koncentrację izotopu dla przedziałów ufności odpowiednio 95% oraz 70%

Nr filtru	Okres ekspozycji	Objętość powietrza [m ³]	C [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	MDC [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	MDC 70 [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]
MB1738	18.09 - 25.09.2017	73976	<MDC 70	1,1	0,3
MB1739	25.09 - 02.10.2017	83973	3040(230)	243	77
MB1740	02.10 - 03.10.2017	13640	16700(1200)	199	63
MB17401	03.10 - 04.10.2017	11658	2440(170)	53	17
MB17402	04.10 - 05.10.2017	4884	<MDC 70	33	10
MB17403	05.10 - 06.10.2017	4632	<MDC 70	23	7,2
MB17404	06.10 - 09.10.2017	14525	4,5(30)	9,8	3,0
MB1741	09.10 - 16.10.2017	87032	0,8(4)	1,4	0,4
MB1742	16.10 - 23.10.2017	67082	1,4(6)	1,8	0,6
MB1743	23.10 - 30.10.2017	90060	0,3(2)	0,8	0,2
MB1746	13.11 - 20.11.2017	67271	1,2(6)	2,0	0,6

Niemniej jednak, w kolejnych tygodniach, ^{106}Ru był nadal wykrywany w powietrzu, co świadczyć mogło o jego ciągłej obecności w atmosferze, jak również możliwej, choć mało prawdopodobnej resuspensji z powierzchni gruntu (filtr MB1746).

Na podstawie pomiaru dwóch filtrów powietrza charakteryzujących się najwyższymi zarejestrowanymi stężeniami ^{106}Ru - MB1739 oraz MB1740, oszacowano stosunek aktywności uwolnionych izotopów rutenu $^{106}\text{Ru}/^{103}\text{Ru}$ na poziomie $3,6(8) \cdot 10^3$ (aktywności wyznaczone na dzień 10.10.2017 r.). Informację tę wykorzystano m.in. do oceny czasu studzenia paliwa jądrowego, które służyło za materiał wyjściowy do otrzymania frakcji zawierającej izotopy rutenu [18]. Dzięki wykorzystaniu wysokowydajnej stacji MASS-500 oraz detektora BEGe, IFJ PAN był jedną z piętnastu lokalizacji w Europie (przy ponad 330 lokalizacjach prowadzących monitoring radiologiczny środowiska), gdzie zidentyfikowano ślady ^{103}Ru oraz wyznaczono powyższy stosunek.

Należy wspomnieć, iż w czasie przechodzenia nad Polską chmury czarnobylskiej, stężenie aktywności ^{106}Ru w powietrzu w Krakowie 29 kwietnia 1986 r. wyniosło $3,6 \text{ Bq}/\text{m}^3$ [144], czyli było ponad 200 razy wyższe niż najwyższe stężenie tego izotopu zarejestrowane jesienią 2017 r. Ponadto stosunek aktywności $^{106}\text{Ru}/^{103}\text{Ru}$ (wyznaczony na dzień 29.04.1986 r.) wyniósł około 0,2 (na podstawie Mietelski et al. (1988) [144]) czyli był znacząco różny od zidentyfikowanego w 2017 r. potwierdzając całkowicie różny charakter obu uwolnień.

Próbki środowiskowe

W celu oceny ewentualnego skażenia środowiska izotopami rutenu uwolnionymi do atmosfery, zbadano zbiór wyselekcjonowanych próbek środowiskowych, takich jak: główka kapusty z miejscowości Zastów (ok. 15 km na północny wschód od IFJ PAN, data poboru: 14.11.2017 r.), liście malin z miejscowości Mników (ok. 15 km na zachód od IFJ PAN, data

poboru: 06.10.2017 r.) oraz mech z terenu IFJ PAN (data poboru: 12.10.2017 r.). Próbki zostały przygotowywane do pomiaru gamma - spektrometrycznego poprzez ich rozdrobienie oraz suszone w 70°C. Ponadto na terenie IFJ PAN, pobrano również wierzchnią warstwę gleby do głębokości od 0,5 cm - 1 cm i powierzchni ok. 400 cm². Ten materiał badawczy został przesiany przez 2 mm sito i wysuszony w temperaturze 105°C.

Przeprowadzone pomiary nie pozwoliły na wyznaczenie stężenia aktywności ¹⁰⁶Ru w badanych próbkach, gdyż otrzymane wyniki były poniżej osiągniętych limitów detekcji co oznacza, iż depozycja izotopów rutenu w środowisku była, z punktu widzenia zastosowanych metod pomiarowych, nieidentyfikowalna. Szczegółowe wyniki wykonanych analiz przedstawia Tabela 7.2.

W niniejszej rozprawie nie przedstawiono wyników pomiarów próbek traw (z powierzchni 5 i 11 m²) oraz całkowitego opadu atmosferycznego, wykorzystanych do wyznaczenia depozycji ¹⁰⁶Ru oraz zidentyfikowania formy chemicznej uwolnionego rutenu, gdyż nie podlegały one pomiarom za pomocą skonstruowanego spektrometru. Ponadto w czasie prac, nie stwierdzono obecności rutenu oraz ¹³¹I w frakcji gazowej (do czego wykorzystana została kasetta z węglem aktywnym).

Należy jednak nadmienić, iż między innymi na podstawie przedstawionych powyżej wyników stężeń aktywności izotopów rutenu w przygruntowej warstwie powietrza, w pracach Masson et al. (2019) [139] oraz Bossew et al. (2019) [18] (których autor rozprawy jest współautorem) przeprowadzono analizę możliwych lokalizacji źródła emisji, jej charakteru oraz rozkładu dawek pochłoniętych przez mieszkańców Europy.

7.2 Szeregi czasowe stężenia ²²Na

W niniejszym podrozdziale przedstawione zostaną szeregi czasowe stężenia aktywności ²²Na w przygruntowej warstwie powietrza. Zaprezentowane wyniki zostały uzyskane poprzez pomiary filtrów powietrza (eksponowanych w stacji ASS-500) wykonane za pomocą budowanego spektrometru. Celem tej części rozdziału jest zobrazowanie wpływu cyfrowego systemu akwizycji na osiągnięte limity detekcji ²²Na, których wartości, ze względu na niskie aktywności tego radioizotopu, grają kluczową rolę w ilościowej analizie jego stężenia w powietrzu.

7.2.1 Informacje wstępne

²²Na jest β^+ emitentem o czasie połowicznego zaniku równym $T_{1/2} = 2,6$ lat i ulegającym rozpadowi do jądra ²²Ne. W wyniku rozpadu emitowany jest też kwant gamma o energii

Tabela 7.2 Wyniki pomiarów gamma - spektrometrycznych próbek środowiskowych badanych w związku z obecnością radiorutenu w atmosferze. Wszystkie uzyskane wyniki są poniżej przyjętych limitów detekcji

Próbka	Data poboru	C [Bq/kg]	MDC [Bq/kg]
Kapusta z Zastowa	14.11.2017	<MDC	4,1
Liście malin	06.10.2017	<MDC	13
Mech	12.10.2017	<MDC	12
Gleba	05.10.2017	<MDC	1,6

$E_\gamma = 1274,5 \text{ keV}$ [15].

Spośród izotopów identyfikowanych w atmosferze, ^{22}Na należy do grupy izotopów kosmogenicznych czyli produkowanych w wyniku oddziaływania promieniowania kosmicznego (zarówno pierwotnego jak i wtórnego) z atomami atmosfery [152]. Głównym kanałem produkcji tego izotopu jest proces spalacji jąder argonu [129, 198], a najwyższe tempo produkcji obserwowane jest na wysokości około 20 km nad poziomem gruntu [15]. Ponadto, antropogenicznym źródłem tego izotopu są testy broni jądrowej. Wzmoczone przeprowadzanie testów atmosferycznych spowodowało, iż mierzone w latach 60. i 70. XX wieku stężenia tego izotopu miały głównie nie-kosmogeniczne pochodzenie [15, 198]. Obserwowane ówczesnie stężenia aktywności ^{22}Na przewyższały 10-cio krotnie poziomy osiągnięte w wyniku naturalnej produkcji [152]. Obecnie stężenia te powróciły do poziomów naturalnych.

Na stężenia aktywności izotopów kosmogenicznych na poziomie gruntu, oprócz zmian intensywności strumienia cząstek promieniowania kosmicznego, wpływ ma również wymiana powietrza jaka zachodzi między stratosferą i troposferą. Dodatkowym efektem wpływającym na wartości stężeń aktywności ^{22}Na są tzw. *wiosenne wstrzyknięcia* powietrza stratosferycznego do niższych warstw atmosfery. Dodatkowy wkład mają zarówno poziome (powodujące przemieszczanie powietrza z niższych do wyższych szerokości geograficznych) jak i pionowe ruchy mas powietrza, które z kolei są wzmacniane poprzez większy wertykalny gradient temperatury w okresach wiosenno-letnich [15, 57, 198]. Skutkiem tych zjawisk są sezonowe zmiany koncentracji izotopów kosmogenicznych z maksimami stężeń aktywności w okresach letnich i minimami w okresach zimowych [57, 152].

Izotopy kosmogeniczne obecne w atmosferze, m.in. ^7Be i ^{22}Na , znajdują zastosowanie w badaniach m.in. zmian klimatycznych, paleoklimatologii, zmian aktywności słonecznej oraz mechanizmów transportu aerozoli i radionuklidów w atmosferze [129]. O ile jednak, spośród rozpatrywanych izotopów kosmogenicznych, średnie stężenie izotopu berylu jest na poziomie kilku milibekereli na metr sześcienny i jego wyznaczenie nie przysparza większych trudności, to stężenie aktywności ^{22}Na jest cztery rzędy wielkości mniejsze i kształtuje się na poziomie poniżej $1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

W Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN, monitoring radiacyjny przygruntowej warstwy powietrza prowadzony jest od początku lat dziewięćdziesiątych. Początkowo, stosowane spektrometry promieniowania gamma pozwalały na wyznaczenie stężenia ^{22}Na na podstawie jednoczesnych pomiarów wszystkich filtrów zebranych w danym roku. Wyniki analiz dla lat 1990 - 1995, przedstawiono w rozprawie doktorskiej dr hab. Krzysztofa Kozaka, prof. IFJ PAN. Maksymalna oraz minimalna wartość koncentracji tego izotopu wyniosła odpowiednio $0,37(5) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ oraz $0,10(5) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ [117].

Następne badania, których wyniki przedstawiono w pracy Grabowska et al. (2003) [69] skupiły się m.in. na analizie sezonowych zmian stężenia ^{22}Na na podstawie pomiarów półrocznych próbek aerozoli atmosferycznych zdeponowanych na filtrach powietrza w latach 1996 - 2002. Badania potwierdziły sezonowe zmiany koncentracji ^{22}Na z maksymalną i minimalną wartością odpowiednio $0,46(3) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (lato 2002 r.) oraz $0,09(2) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (zima przełomu lat 1996/1997). Ponadto wyznaczono stosunek aktywności $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$ na poziomie $0,95 \cdot 10^{-4}$, co potwierdziło wcześniejsze wyniki [117].

W pracy Błażej et al. (2014) [15] (opartej na pracy doktorskiej dr Sylwii Błażej [14]

(z domu Grabowskiej)) przedstawiono zmiany stężeń izotopów: ^{22}Na , ^7Be , ^{137}Cs oraz ^{40}K z rozdzielczością czasową jednego tygodnia. Tak znaczy wzrost jakości uzyskiwanych wyników, możliwy był dzięki jednoczesnemu pomiarowi dwóch filtrów powietrza pochodzących z obu stacji poboru aerozoli atmosferycznych znajdujących się na terenie IFJ PAN (ASS-500 oraz MASS-500) oraz wykorzystaniu spektrometru promieniowania gamma z koaksjalnym detektorem HPGe oraz osłoną aktywną w postaci wielodrutowej komory proporcjonalnej (pracującego do roku 2010) [147]. W wyniku analiz otrzymanych danych, wyznaczono średnie koncentracje ww. izotopów dla 4 pór roku na przestrzeni lat 2003 - 2006. Ponownie, potwierdzono zmienność sezonową stężenia aktywności ^{22}Na , z maksymalnymi wartościami w porach ciepłych (najwyższa zanotowana wartość to $0,75 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$) i minimalnymi podczas zimowych miesięcy każdego roku (wyniki kształtowały się wówczas na poziomie $0,1 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$). Ponadto w pracy wyznaczono współczynniki korelacji między aktywnościami badanych izotopów oraz, na podstawie stosunku aktywności $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$, czas retencji aerozoli w atmosferze.

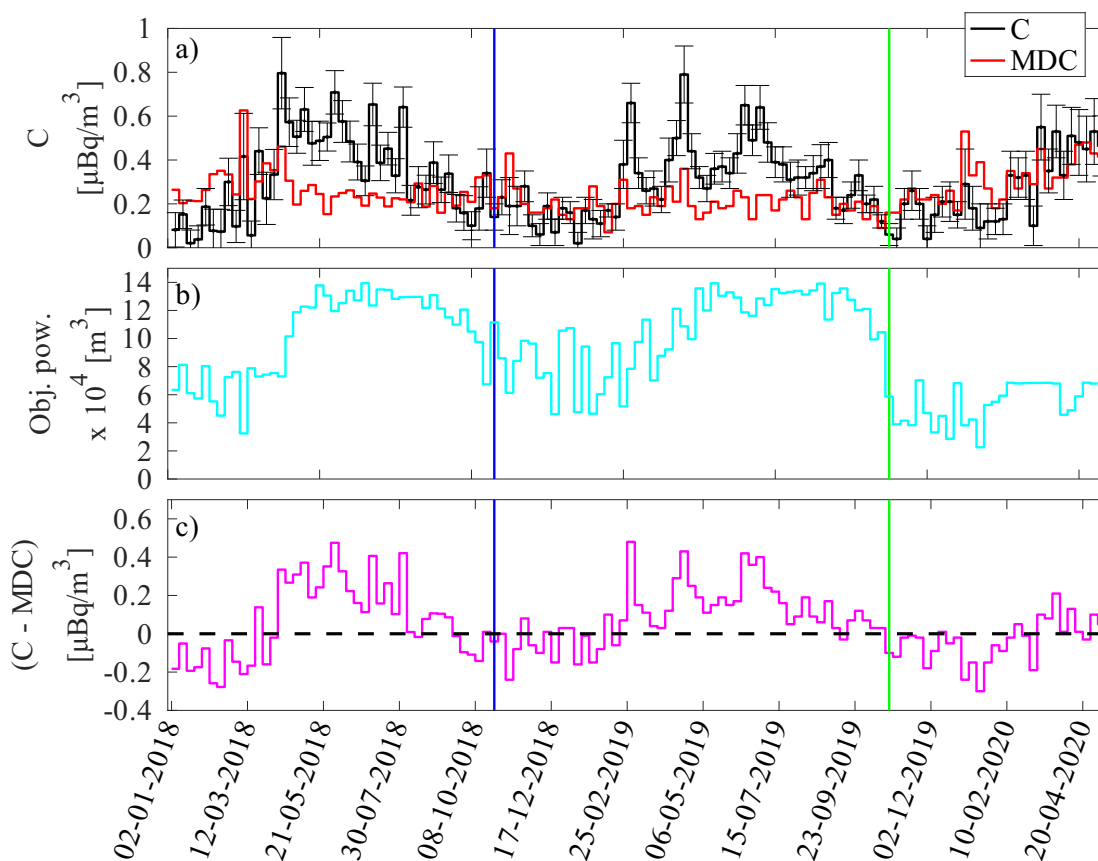
W rozprawie doktorskiej dr inż. E. Nalichowskiej (2019) [152], na podstawie wyników pomiarów ponad 600 tygodniowych próbek aerozoli zdeponowanych na filtrach powietrza, w okresie od 2005 do 2016 roku, przeprowadzono dokładną analizę dynamiki zmian aktywności m.in. ^{22}Na za pomocą metod eksploracji danych. Autorka zauważyła, iż w przypadku izotopu sodu, 74% wyników było poniżej przyjętych limitów detekcji [152].

Między innymi z powodu wyżej przytoczonych faktów i problemów z jakimi spotkali się autorzy ww. prac, regularne, rutynowe pomiary próbek aerozoli atmosferycznych (zwykle trwające około 24 godziny) przeprowadzane za pomocą standardowych spektrometrów promieniowania gamma (m.in. niewyposażonych w aktywne systemy redukcji tła), często nie pozwalają na wyznaczenie stężenia ^{22}Na powyżej limitów detekcji. Stąd, skonstruowany niskotłowy, cyfrowy spektrometr promieniowania gamma został przeznaczony również do pomiarów filtrów powietrza, które za jego pomocą wykonywane są od 15.10.2018 r.

7.2.2 Badania i analiza wyników

Rysunek 7.5 a) przedstawia zmienność stężenia aktywności (C) oraz minimalnej mierzalnej aktywności (MDC) ^{22}Na w przygruntowej warstwie powietrza w okresie od 02.01.2018 r. do 04.05.2020 r. Prezentowanych zbiorów danych został przygotowany na podstawie pomiarów 124 próbek aerozoli atmosferycznych eksponowanych w stacji poboru aerozoli ASS-500. Pomiary wykonywane były za pomocą detektora BEGe oraz analogowego (w okresie do 15.10.2018 r, linia niebieska) oraz cyfrowego systemu akwizycji wraz z osłoną aktywną. Na podstawie uzyskanych danych, zgodnie z oczekiwaniami i wcześniejszymi, cytowanymi obserwacjami można zauważyć wzrost aktywności ^{22}Na w okresie wiosenno-letnim.

Rysunek 7.5 b) demonstruje objętość powietrza przepompowaną przez stację, przypadającą na jeden okres ekspozycji filtru powietrza. Wielkość ta, jest jedną z kluczowych dla możliwości wyznaczenia stężenia izotopów promieniotwórczych w atmosferze, zwłaszcza tych, charakteryzujących się bardzo niskimi wartościami koncentracji, jak ^{22}Na . Można zauważyć, iż wraz z chwilą wymiany stacji ASS-500 na nowszy model (14.10.2019 r., linia zielona, decyzja podjęta przez CLOR), nastąpił gwałtowny spadek objętości przepom-



Rysunek 7.5 a) Stężenie aktywności C oraz minimalna mierzalna aktywność MDC ^{22}Na w przygruntowej warstwie powietrza w okresie od 02.01.2018 r. do 04.05.2020 r., b) Objętość powietrza przepompowana przez stację przypadająca na jeden okres ekspozycji filtra powietrza, c) różnica stężenia aktywności i minimalnej mierzalnej aktywności. Linia niebieska - 15.10.2018 r. - początek pomiarów z wykorzystaniem cyfrowej akwizycji danych, linia zielona - 14.10.2019 r. - wymiana stacji ASS-500

powywanego powietrza. Spowodowane było to zastosowanymi zabezpieczeniami układów stacji, które w sytuacji braku możliwości ustabilizowania szybkości przepływu na poziomie $500 \text{ m}^3/\text{h}$ powodują zatrzymanie jej pracy. Zmniejszenie szybkości przepływu powietrza do $400 \text{ m}^3/\text{h}$ pozwoliło ograniczyć częstość występowania przypadków samoczynnego wyłączenia stacji, jednak spowodowało również obserwowany, znaczący wzrost wartości MDC.

Z kolei Rysunek 7.5 c) przedstawia różnice stężenia aktywności i minimalnej mierzalnej aktywności dla poszczególnych wyników. Przerwana linia czarna reprezentuje poziom 0 czyli filtr powietrza, w którym stężenie aktywności jest równe minimalnemu mierzalnemu stężeniu izotopu.

Wykonywanie pomiarów filtrów powietrza za pomocą detektora BEGe pozwoliło na uzyskanie 56% wyników powyżej wartości MDC (w porównaniu do historycznych pomiarów wykonywanych za pomocą koaksjalnych detektorów HPGe, gdzie jedynie 26% wyników było powyżej limitów detekcji [152]). Od momentu rozpoczęcia pomiarów z wykorzystaniem cyfrowego systemu akwizycji wraz z osłoną aktywną liczba wyników stężeń ^{22}Na powyżej limitów detekcji wzrosła do 63%, a z wyłączeniem okresu po wymianie stacji, aż do 75%.

Kolejna korzyść wynikająca z zastosowania cyfrowego systemu akwizycji oraz osłony

aktywnej to zmniejszenie różnicy między wartościami C i MDC dla pierwszego kwartału roku 2019. Dla systemu analogowego stosowanego w I kwartale 2018 r., średnia wartość tej różnicy wyniosła $-0,13 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ i była znacząco różna od 0 (co zostało potwierdzone testem t-Studenta, którego p-wartość wyniosła 0,0007). W przypadku I kwartału roku 2019, średnia wartość tej różnicy wyniosła $0,05 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, a p-wartość testu t-Studenta (0,28) nie pozwoliła na odrzucenie hipotezy zerowej o równości tej średniej z wartością 0. Ponadto, obie uzyskane średnie różnice są istotnie od siebie różne. Należy zaznaczyć, iż nawet przy zastosowaniu systemu antykoincydencyjnego, stężenia aktywności ^{22}Na często były poniżej limitów detekcji, jednak średnia różnica wartości C i MDC oscylowała wokół zera. Fakt ten pozwala wyciągnąć wniosek, iż wydłużając czasy pomiarów filtrów powietrza w okresie zimowym ok. dwukrotnie (zakładając nadal obniżoną objętość przepompowywanego powietrza), możliwym będzie osiąganie wartości stężeń aktywności tego izotopu powyżej limitów detekcji, dzięki zmniejszeniu względnej niepewności liczby zliczeń w foto-piku oraz względnego poziomu tła promieniowania spektrometru.

Ponadto można zauważyć, iż okresy w których stężenie aktywności ^{22}Na było powyżej limitów detekcji (z wyłączeniem pojedynczych fluktuacji) wynosiły 23 (od 09.04.2018 r. do 10.09.2018 r.) i 34 (od 18.02.2019 r. do 14.10.2019 r.) tygodnie odpowiednio dla analogowego i cyfrowego systemu akwizycji. Zastosowanie digitizera oraz osłony aktywnej pozwoliło wydłużyć okres obserwacji aktywności izotopu sodu powyżej limitów detekcji o 11 tygodni. Należy zauważyć, iż ów okres mógł być jeszcze dłuższy, jednak został przerwany przez wymianę stacji i spadek objętości przepompowywanego powietrza, co skutkowało znaczącym pogorszeniem limitów detekcji.

7.3 Zmiany stężenia ^{137}Cs spowodowane pożarami lasów w pobliżu elektrowni czarnobylskiej

Na koniec niniejszego rozdziału, przedstawione zostaną wyniki rutynowych pomiarów koncentracji ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza, ale z okresu zawężonego do czasu trwania intensywnych pożarów lasów w pobliżu Elektrowni Jądrowej w Czarnobylu wiosną 2020 r. Podobnie jak w poprzednim podrozdziale, przedstawione wyniki pomiarów zostały uzyskane poprzez pomiary filtrów eksponowanych w stacji ASS-500 i poddanych pomiarowi z wykorzystaniem niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma.

7.3.1 Informacje wstępne

W połowie kwietnia 2020 r. w mediach społecznościowych pojawiły się niepokojące informacje dotyczące zagrożenia zdrowia i życia mieszkańców Polski w związku z trwającymi w tym czasie pożarami lasów w strefie wyłączzonej wokół Elektrowni Jądrowej (EJ) w Czarnobylu. Wiadomości te wzbudziły ogromne zaniepokojenie wśród społeczeństwa, a na ich podstawie, tworzone były również wiadomości w serwisach internetowych. Jednostki naukowe związane z badaniami z dziedziny fizyki jądrowej, takie jak Narodowe Centrum Badań Jądrowych oraz Instytut Fizyki Jądrowej PAN, opublikowały oparte

na wynikach badań notatki o niewystąpieniu anomalii w poziomie promieniowania tła i związanego z tym braku zagrożenia radiologicznego [108, 109]. Stosowne oświadczenia wydała również Polska Agencja Atomistyki [110] oraz Międzynarodowa Agencja Energii Atomowej [93].

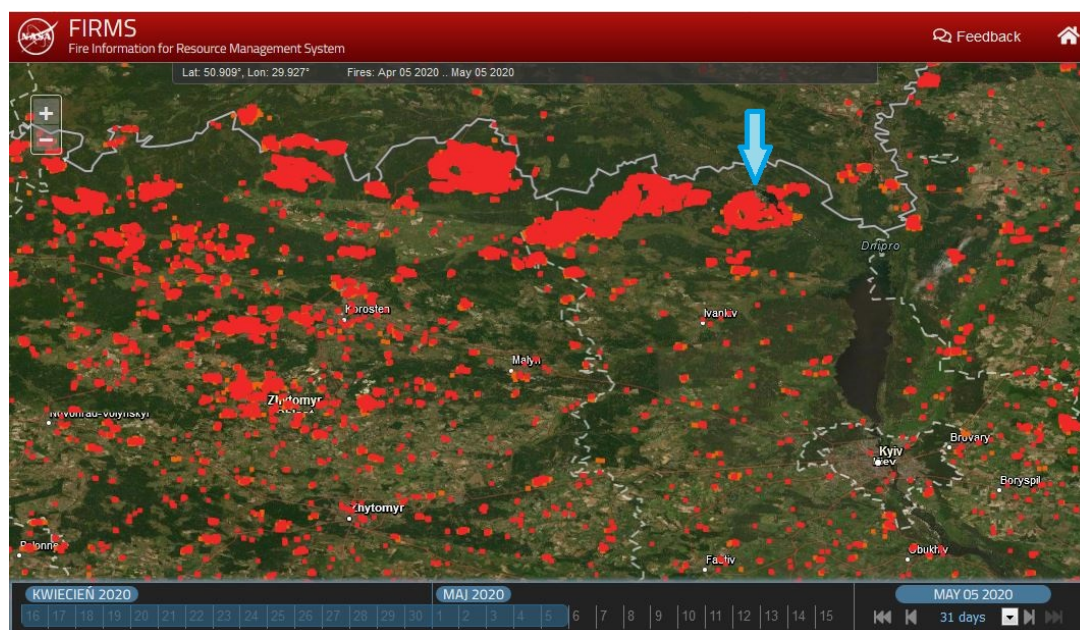
Chronologia zdarzeń

Pierwsze informacje o pożarach w pobliżu, jak również samej strefie wyłączenia wokół czarnobylskiej elektrowni jądrowej, pojawiły się ok. 5 kwietnia 2020 r. [95]. 8 kwietnia pożary zbliżyły się na odległość ok. 1 km od elektrowni, w związku z czym do walki z żywiołem zmobilizowano prawie 400 strażaków oraz 90 pojazdów (w tym strażackie wozy bojowe, śmigłowce oraz samoloty pożarnicze) [95]. 14 kwietnia, przedstawiciele władz ukraińskich oświadczyli, iż sytuacja pożarowa jest pod kontrolą [111]. Najwyższe stężenie ^{137}Cs w Kijowie zanotowano między 10 a 11 kwietnia i wyniosło ono $700 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ [95]. Zdjęcia satelitarne z 17 kwietnia pozwoliły na zidentyfikowanie dużych pożarów w odległości 70 km (o powierzchni ok. 220 km^2) i 30 km na zachód oraz pomniejszych pożarów w odległości ok. 2 km od elektrowni, a zachodni kierunek wiatru, w tym okresie, zwiększał prawdopodobieństwo zbliżenia kolejnych ognisk pożarów do strefy wyłączenia [96]. Tydzień później, 24 kwietnia, zaobserwowano znaczny spadek liczby pożarów, a ogniska najbliższej EJ Czarnobyl znajdowały się w odległości 16 i 37 km na wschód oraz 20 i 110 km na zachód. Nadal jednak utrzymywał się zachodni kierunek wiatru [60]. Na skutek działania zaangażowanych służb oraz opadu deszczu, który miał miejsce 2 maja, udało się ugasić pożary wokół Czarnobyla, co potwierdziły zdjęcia satelitarne [61]. Rysunek 7.6 przedstawia skumulowaną mapę pożarów wokół EJ Czarnobyl w okresie 01.04.2020 - 05.05.2020 r. Niebieską strzałką zaznaczono położenie elektrowni, natomiast punkty czerwone reprezentują zidentyfikowane pożary. Należy nadmienić, iż właśnie na wypadek pożarów, obszar w promieniu kilkuset metrów wokół elektrowni jądrowych jest niezalesiany, w celu ich ochrony przed skutkami pożarów lasów (dotyczy to również Elektrowni Jądrowej w Czarnobylu) [96].

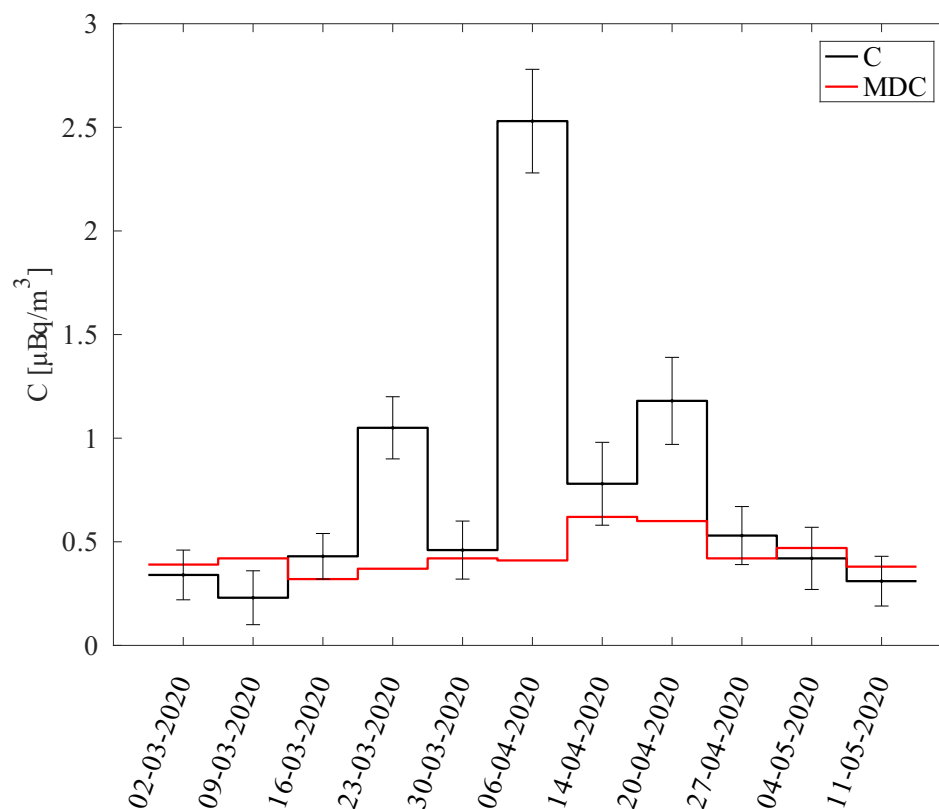
Przeprowadzone przez francuski *Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire* symulacje, bazujące na wynikach pomiarów frakcji aerozolowej powietrza w Europie, pozwoliły na oszacowanie całkowitej aktywności ^{137}Cs uwolnionej do atmosfery w wyniku pożarów na około 700 GBq, przy czym ok. 90% aktywności zostało uwolnione w okresie od 2 do 24 kwietnia 2020 r., w czasie najbardziej intensywnych pożarów [61].

7.3.2 Badania i analiza wyników

W okresie występowania pożarów lasów w pobliżu Elektrowni Jądrowej w Czarnobylu, stacje monitoringu radiologicznego przygruntowej warstwy powietrza pracowały w trybie rutynowym czyli okresy ekspozycji wynosiły 7 dni, a filtry zmieniane były co poniedziałek. Rysunek 7.7 przedstawia stężenia aktywności ^{137}Cs zarejestrowane przez stację ASS-500 w okresie od 02.03.2020 r. do 18.05.2020 r. Daty na wykresie oznaczają początek okresu ekspozycji. Linia czarna reprezentuje stężenia aktywności cezu (w $[\mu\text{Bq}/\text{m}^3]$), a linia czerwona to osiągnięte minimalne mierzalne stężenia aktywności.



Rysunek 7.6 Skumulowana mapa pożarów (czerwone punkty) wokół EJ w Czarnobylu w okresie 01.04.2020 - 05.05.2020 r. Niebieską strzałką zaznaczono położenie elektrowni. Na podst. Fire Information for Resource Management System (FIRMS) [59]



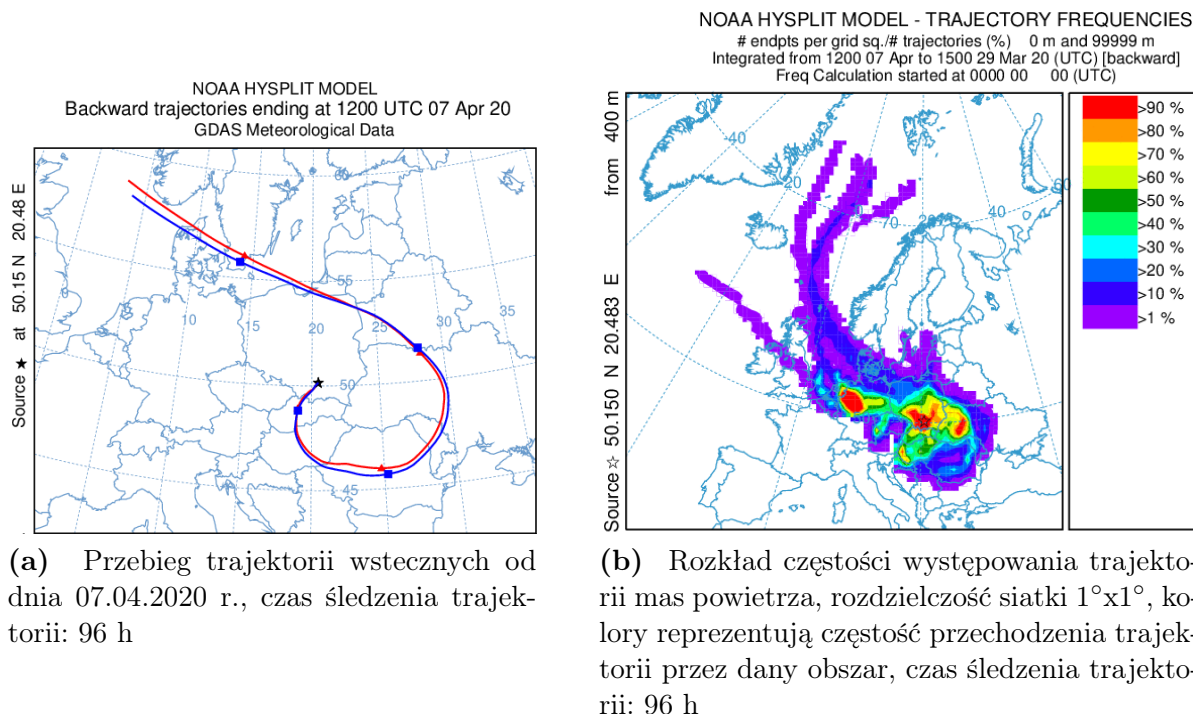
Rysunek 7.7 Stężenie ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie w okresie od 02.03 do 18.05.2020 r. Daty na wykresie wskazują początek okresu ekspozycji danego filtru

Maksymalne stężenie aktywności ^{137}Cs wyniosło $2,53(25) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ i zarejestrowano je w okresie 06.04 - 14.04.2020 r. Średnia wartość koncentracji cezu w Krakowie w tym okresie (bez filtru powietrza ekspozowanego od 06.04) wynosi $0,57 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. W związku z tym, zaobserwowane, niemal pięciokrotne podwyższenie poziomu cezu jest jednoznacz-

nie skorelowane z pożarami lasów na terenie Ukrainy. W tym miejscu należy nadmienić, iż w czasie przechodzenia przez terytorium Polski radioaktywnej chmury czarnobylskiej stężenia aktywności ^{137}Cs w powietrzu w Krakowie sięgały poziomu ok. 7 Bq/m^3 [144] (filtr powietrza eksponowany 29.04.1986 r.), a więc były prawie 3 miliony razy wyższe.

Najwyższe zarejestrowane wiosną 2020 r. stężenia aktywności cezu w innych krajach europejskich kształtowały się następująco: Holešov (Czechy, okres ekspozycji filtru powietrza: 06.04 - 13.04.2020 r.) - $3,75 \mu\text{Bq/m}^3$, Saloniki (Grecja, 11.04 - 13.04.2020 r.) - $20 \mu\text{Bq/m}^3$, Viksjöfjell (Norwegia, 12.04 - 19.04.2020 r.) - $0,5 \mu\text{Bq/m}^3$, Centrum Badawcze Cadarache (60 km na północny-wschód od Marsylii, 06.04 - 14.04.2020 r.) - $1,31(24) \mu\text{Bq/m}^3$ [61]. Wiele pomiarów wykonanych zostało również na terytorium Ukrainy i wyniki wahały się w granicach poniżej 1 mBq/m^3 w okolicach Kijowa, do ok. $0,2 \text{ Bq/m}^3$ w rejonie elektrowni czarnobylskiej [61].

Na podstawie powyższych danych, przeprowadzono symulację trajektorii wstecznych mas powietrza dla wybranych stacji poboru w celu zobrazowania transportu aerozoli w czasie trwania pożarów na terenie Ukrainy (wyniki symulacji uzyskane dzięki uprzejmości dr hab. inż. Renaty Kierepko). Symulacje zostały wykonane za pomocą modelu HYSPLIT (ang. *Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory*) przeznaczanego do wyznaczania trajektorii mas powietrza oraz depozycji i dyspersji zanieczyszczeń atmosferycznych [172]. Model ten rozwijany jest przez Narodową Służbę Oceaniczną i Atmosferyczną Stanów Zjednoczonych (ang. *National Oceanic and Atmospheric Administration*)

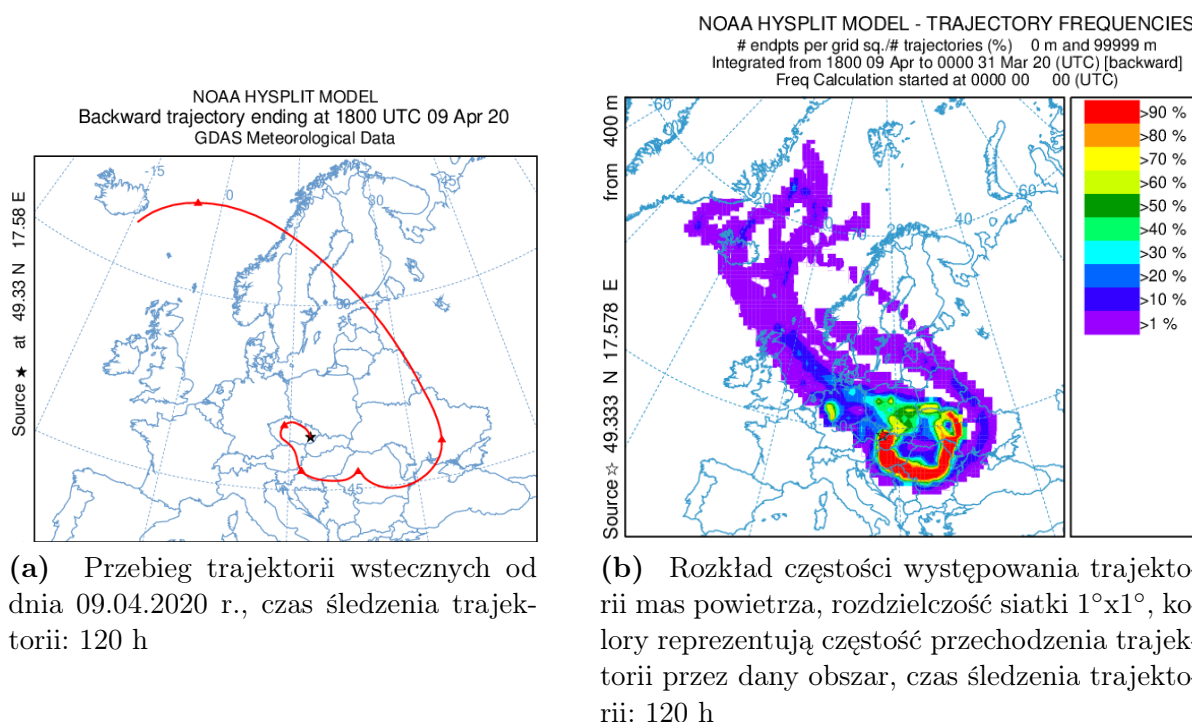


Rysunek 7.8 Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Kraków. Okres symulacji 04.04 - 07.04.2020 r. Model: HYSPLIT [172], dane meteorologiczne: GDAS (ang. *Global Data Assimilation System*)

Wyniki symulacji przeprowadzonej dla stacji poboru aerozoli ASS-500 znajdującej się w IFJ PAN, dla okresu 04.04 - 07.04.2020 r. przedstawia Rysunek 7.8. Liniami czerwoną

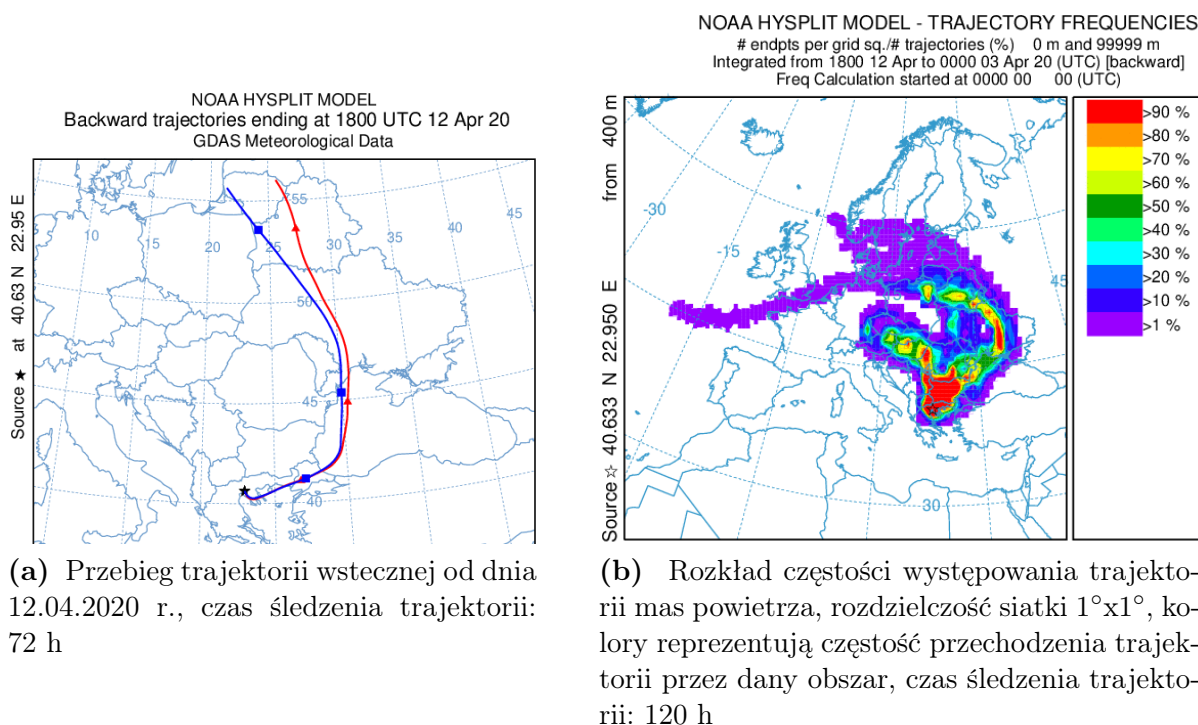
i niebieską zaznaczono najbardziej prawdopodobne trajektorie (z uwzględnieniem rzeźby terenu) mogące spowodować obserwowany wzrost stężenia ^{137}Cs w powietrzu. Można zauważyć, iż masy powietrza przemieszczały się nad terytorium Ukrainy, a następnie dotarły do Krakowa od strony Słowacji przez Tatry. Rozkład częstości występowania trajektorii (Rys. 7.8 b) potwierdza, że ponad 90% trajektorii mas powietrza przechodzących przez Kraków, znajdowało się również nad terytorium Ukrainy, jednak nie przechodziły one bezpośrednio w okolicach Elektrowni Jądrowej w Czarnobylu. Ponadto, ze zbliżonym prawdopodobieństwem, obecne w Krakowie masy powietrza pochodziły z terenów zachodniej Europy.

Analogiczne symulacje, przeprowadzone dla stacji poboru aerozoli zlokalizowanej w Holešovie przedstawia Rysunek 7.9. Potwierdzają one, iż masy powietrza które dotarły nad terytorium Czech w okresie ekspozycji filtra powietrza, przemieszczały się wcześniej nad terytorium Ukrainy, w pobliżu Elektrowni Jądrowej w Czarnobylu. Rozkład częstości występowania trajektorii (Rys. 7.9 b) potwierdza fakt, iż ponad 90% z nich dotarło w okolice Holešova z nad terytorium Ukrainy. Należy jednak zauważyć, iż wyznaczone trajektorie wskazują na fakt, że masy powietrza dotarły około 2 dni później niż te, których trajektorie rozpatrywane były dla Krakowa. Wraz z innym przebiegiem prawdopodobnych torów ruchu mas powietrza, może to świadczyć o tym, że zarejestrowane zanieczyszczenia powietrza cezem pochodzą z różnych ognisk pożarów.



Rysunek 7.9 Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Holešov. Okres symulacji 04.04 - 09.04.2020 r. Model: HYSPLIT [172], dane meteorologiczne: GDAS (ang. *Global Data Assimilation System*)

Symulacje przeprowadzono dla stacji poboru aerozoli w Salonikach przedstawia Rysunek 7.10. W tym przypadku zauważono, iż najbardziej prawdopodobne trajektorie również przechodzą nad terytorium Ukrainy, nad obszarem objętym pożarami. Rozkład częstości występowania trajektorii wykazał dużą (ponad 90%) częstość przechodzenia tra-



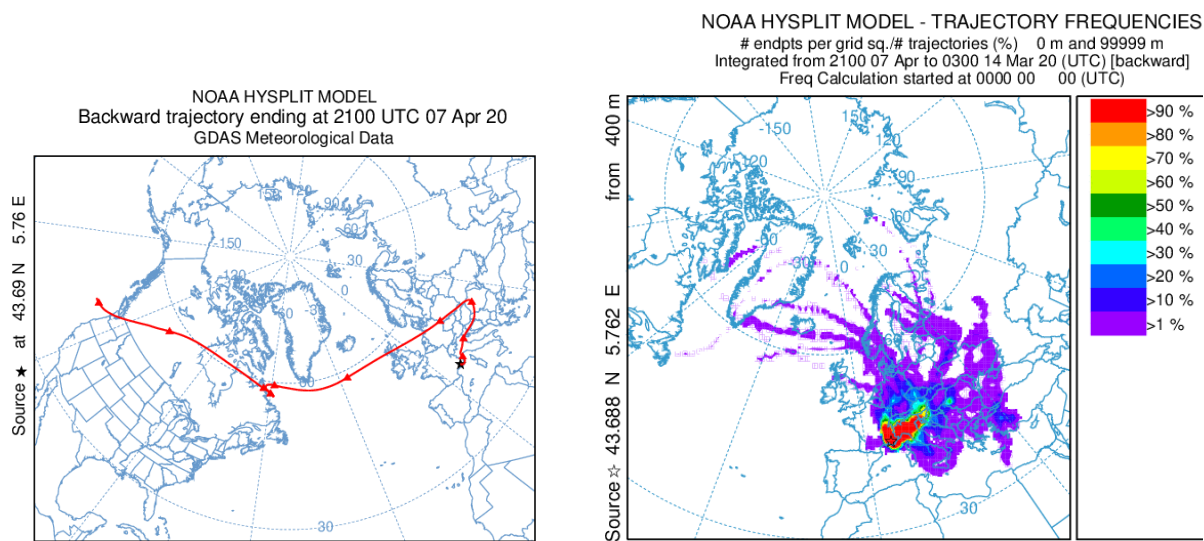
Rysunek 7.10 Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Saloniki. Okres symulacji 10.04 - 12.04.2020 r. Model: HYSPLIT [172], dane meteorologiczne: GDAS (ang. *Global Data Assimilation System*)

trajektorii mas powietrza nad Ukrainą oraz krajami bałkańskimi (w tym Grecją). Tłumaczy to niemal 8-krotnie wyższe stężenie ^{137}Cs zarejestrowane w Salonikach w porównaniu z Krakowem.

W przypadku danych dla Centrum Badawczego Cadarache (Rys. 7.11), symulacja wykazała istnienie trajektorii wstecznej mas powietrza przechodzącej przez terytorium Ukrainy, jednak częstość występowania takiej trajektorii, a tym samym jej prawdopodobieństwo, jest mniejsze niż 10% co sugeruje, iż zarejestrowane stężenie ^{137}Cs w tamtym rejonie ma prawdopodobnie charakter lokalny, niezwiązany z pożarami lasów wokół EJ Czarnobyl.

Na podstawie przedstawionych wyników można stwierdzić, iż pożary lasów na Ukrainie nie stanowiły poważnego zagrożenia radiologicznego dla mieszkańców Europy. Przyjmując konserwatywne założenia, oraz to że dorosła osoba oddychałaby przez rok powietrzem w którym stężenie aktywności ^{137}Cs wynosiłoby $2,53(25) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, zaabsorbowana drogą oddechową dawka wyniosłaby $1,3 \text{ nSv}$ co stanowi $5,2 \cdot 10^{-5}\%$ dawki od tła promieniotwórczego w Polsce.

Należy jednak zauważyć, iż zdarzenie to miało o wiele większy wydźwięk w społeczeństwie (m.in. poprzez wiadomości i informacje (często nieprawdziwe) rozsyłane za pomocą mediów społecznościowych) w porównaniu do podobnego incydentu jakim było uwolnienie izotopów rutenu do atmosfery jesienią 2017 r., które cechowało się stężeniami aktywności o cztery rzędy wielkości wyższymi.



(a) Przebieg trajektorii wstecznej od dnia 07.04.2020 r., czas śledzenia trajektorii: 240 h

(b) Rozkład częstości występowania trajektorii mas powietrza, rozdzielczość siatki $1^{\circ} \times 1^{\circ}$, kolory reprezentują częstość przechodzenia trajektorii przez dany obszar, czas śledzenia trajektorii: 120 h

Rysunek 7.11 Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez tereny Centrum Badawczego Cadarache. Okres symulacji 29.03 - 07.04.2020 r. Model: HYSPLIT [172], dane meteorologiczne: GDAS (ang. *Global Data Assimilation System*)

Rozdział 8

Izotopy γ -promieniotwórcze w przyziemnej warstwie powietrza wyspy Seymour (Antarktyda)

W niniejszym rozdziale przedstawione zostaną wyniki badań przeprowadzonych w celu wyznaczenia aktywności naturalnych i sztucznych izotopów gamma-promieniotwórczych obecnych w próbach aerozoli atmosferycznych zebranych na terenie Bazy Marambio, znajdującej się na wyspie Seymour u wybrzeży Półwyspu Antarktycznego. Próbki uzyskano dzięki współpracy z dr Jussi Paatero y Fińskiego Instytutu Meteorologii. Planowane badania, w skład których wchodzi pomiar gamma-spektrometryczny, pozwolą określić koncentrację zanieczyszczeń radioaktywnych powietrza okolic Półwyspu Antarktycznego, jak również określić czystość radiologiczną tego obszaru, a w konsekwencji wyznaczyć poziom referencyjny dla możliwych przyszłych kontaminacji.

8.1 Informacje wstępne

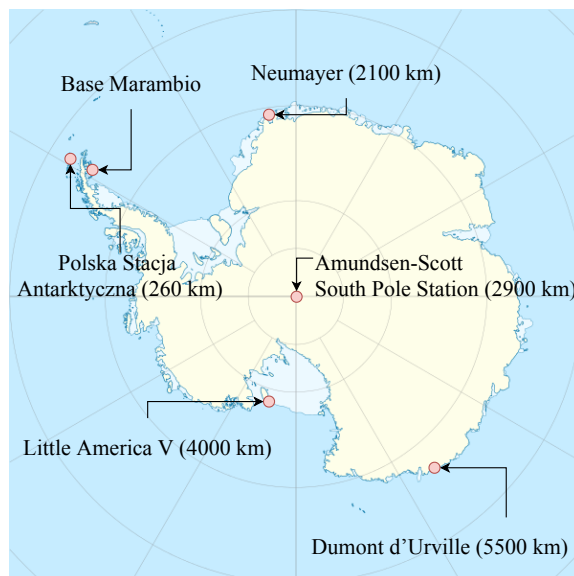
Antarktyda uważana jest za najmniej zanieczyszczony region na świecie, ze względu na lokalizację i separację tego kontynentu, a także niską aktywność ludzką [76]. Dodatkowo, zgodnie z postanowieniami Układu Antarktycznego [199], zabronionym jest przeprowadzanie jakichkolwiek działań z materiałami jądrowymi w tym testów broni jądrowej czy przechowywanie materiałów radioaktywnych. Niemniej jednak Antarktyda nie jest wolna od zanieczyszczeń radioaktywnych powstałych w innych częściach świata (próby nuklearne lub wypadki jądrowe) i radioaktywne ślady takich zdarzeń są wykrywalne w regionie Bieguna Południowego. Transport radioizotopów wynikający z ruchów mas powietrza jest jednym z głównych czynników powodujących zanieczyszczenie biosfery tego regionu. Strefy przybrzeżne narażone są ponadto na zjawisko *sea spray* polegające na emisji aerozoli morskich, mogących zawierać izotopy promieniotwórcze, bezpośrednio z wód (np. oceanicznych) do atmosfery.

Pomiary stężeń aktywności izotopów promieniotwórczych w środowisku antarktycznym były przedmiotem stosunkowo nielicznych badań prowadzonych od lat pięćdziesiątych XX wieku. Pomiary koncentrowały się na określeniu stężeń aktywności zarówno

naturalnych jak i sztucznych radionuklidów, ale głównym ich celem była ocena skażenia powstałego przede wszystkim podczas przeprowadzanych atmosferycznych i podwodnych testów broni jądrowej. Rysunek 8.1 przedstawia lokalizacje wybranych stacji polarnych, w których prowadzono badania skażeń radioaktywnych środowiska antarktycznego.

Pierwsze informacje o radioaktywności powietrza w regionie Antarktydy uzyskano dzięki pomiarom przeprowadzonym w Bazie Little America V (Lockhart (1960) [133]). Stacja monitoringu radiologicznego powietrza była obsługiwana przez personel biorący udział w projekcie Polar Operations prowadzonym przez United States Weather Bureau (obecnie National Weather Service). Aparatura badawcza była używana przez prawie trzy lata (1956–1958) w Bazie Little America V, a następnie została przeniesiona do Stacji Amundsena-Scotta znajdującej się na Biegunie Południowym [134]. Przeprowadzane badania dotyczyły wyznaczenia stężenia radonu, toronu i aktywności beta produktów rozszczepienia. W Bazie Little America zaobserwowano silną zmienność stężenia aktywności radonu, co zostało wyjaśnione radioaktywnością materiałów dostarczonych na stację. W drugiej Bazie, Amundsena-Scotta, koncentracja radonu była poniżej spodziewanego poziomu, podczas gdy stężenia toronu były poniżej osiągniętych limitów detekcji. Stężenia aktywności sztucznych izotopów określano na podstawie pomiarów całkowitej aktywności beta. Zaobserwowano wyraźną zmienność sezonową rejestrowanych stężeń aktywności z wartościami maksymalnymi podczas antarktycznej późnej wiosny i latem oraz minima w trakcie antarktycznej zimy. Zmiany w poziomie naturalnej radioaktywności, zostały powiązane z warunkami meteorologicznymi takimi jak kierunek wiatru, rodzaj i ilość opadów oraz zawartością uranu i toru w glebie. Z kolei fluktuacje stężeń aktywności izotopów antropogenicznych były skorelowane z sezonowymi zmianami w wielkości mieszania się mas powietrza z troposfery i stratosfery. Badania wykazały, iż z powodu niskich poziomów naturalnej promieniotwórczości (co było skutkiem zalegania na 90% powierzchni kontynentu pokrywy lodowej) produkty rozszczepienia były główną składową radioaktywności powietrza regionu antarktycznego. Obecność izotopów sztucznych została wyjaśniona jako skutek amerykańskich testów broni jądrowej przeprowadzanych na Wyspach Marshalla (tzw. Pacific Proving Grounds) w okresie od 1946 do 1958 roku (włączając w to m.in. pierwszy test bomby termojądrowej Ivy Mike [183]).

Podobne badania prowadzone były na stacji Amundsena-Scotta w okresach od 1973



Rysunek 8.1 Położenie wybranych antarktycznych polarnych stacji badawczych, w których prowadzone były badania nad promieniotwórczością powietrza. W nawiasach podano przybliżoną odległość od Bazy Marambio. Zaznaczono również położenie Polskiej Stacji Antarktycznej im. H. Arctowskiego. Mapa wykonana na podstawie bazy Wikimedia Commons [58]

- 1974 roku oraz od 1974 - 1975 roku (Maenhaut et al. (1979) [136]). Pomiarzy potwierdziły bardzo niskie stężenia ^{222}Rn (około 11 – 15 mBq/m^3). Z powodu przeprowadzanych w tamtym okresie testów broni jądrowej, aktywność produktów rozpadu w funkcji czasu wzrosła. Najwyższe stężenia ^{137}Cs wynoszące 0,041 mBq/m^3 zostały zaobserwowane w lutym 1975 roku. Ponadto, po znormalizowaniu aktywności innych sztucznych izotopów promieniotwórczych do aktywności ^{137}Cs , nie zaobserwowano znacznych zmian w stosunkach koncentracji, co wskazywało na bardzo dobre wymieszanie się w atmosferze pozostałości po eksplozjach ładunków jądrowych. Na podstawie wyznaczonych stosunków aktywności zidentyfikowanych izotopów, możliwym było określenie, że eksplozja, skutkiem której doszło do uwolnienia badanych izotopów do atmosfery, miała miejsce w 1971 roku. Oznaczało to, że głównym źródłem radioaktywnych zanieczyszczeń wykrytych podczas badań był francuski test broni jądrowej przeprowadzony 15 sierpnia 1971 r. na atolu Mururoa [136].

Analizy danych uzyskanych w trakcie długookresowych pomiarów przeprowadzanych od 1960 roku na francuskiej stacji polarnej Dumont d'Urville położonej na Antarktydzie Wschodniej pozwoliły na wyznaczanie sezonowych zmian stężeń aktywności zarówno naturalnych (^{222}Rn i ^{210}Pb) jak i sztucznych radioizotopów [125]. Uzyskane szeregi czasowe potwierdziły wcześniejsze obserwacje występowania maksimów i minimów stężeń aktywności odpowiednio podczas antarktycznego lata (grudzień - styczeń) oraz antarktycznej zimy (czerwiec - lipiec). Fakt ten został wytłumaczony adwekcją mas powietrza napływających z kierunku północnego podczas antarktycznej wiosny (październik) [125].

Badania obejmujące ciągle długookresowe obserwacje aerozoli atmosferycznych przeprowadzone na niemieckiej stacji antarktycznej Neumayer rozpoczęto w 1983 r [53]. Wykorzystując dane zebrane w okresie od 1983 r. do 2008 r. zbadano zmienność stężeń ^7Be , ^{10}Be i ^{210}Pb . Zaobserwowano występowanie maksimów aktywności w okresach letnich (najwyższa koncentracja ^{210}Pb wyniosła 0,064 mBq/m^3). Co więcej, analizy uzyskanych szeregów czasowych wykazały 4 - 6 letnią okresowość stężeń ^{210}Pb . W przypadku ^7Be i ^{10}Be , ich stężenia wyraźnie odzwierciedlały fakt, iż produkcja tych izotopów jest modulowana aktywnością słoneczną [53].

Należy nadmienić, iż rejon Antarktydy już wcześniej był w kręgu zainteresowań naukowych Zakładu Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN. Przeprowadzone badania dostarczyły szerokiej wiedzy na temat stężeń aktywności radioizotopów w różnych ekosystemach Antarktyki (zarówno lądowych jak i morskich) [194, 195]. W przypadku próbek pochodzenia lądowego (mchy, porosty, trawy) wyznaczone stosunki izotopowe $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ oraz $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ odpowiadały stosunkom izotopowym charakterystycznym dla globalnego opadu promieniotwórczego, podczas gdy analogiczne stosunki dla próbek pochodzenia morskiego (części ciał ptaków morskich, takich jak pingwin białoki czy petrel śnieżny oraz glony), okazały się niższe niż dla opadu globalnego, co zostało wyjaśnione poprzez różne stosunki izotopowe występujące w różnych masach wody oraz kontakt organizmów morskich z izotopami promieniotwórczymi (np. plutonu, charakteryzującymi się różnymi stosunkami izotopowymi) z innych części świata. Dalsze analizy pozwoliły ocenić narażenie przedstawicieli danych ekosystemów na promieniowanie jonizujące, emitowane przez izotopy antropogeniczne.

8.2 Charakterystyka materiału badawczego

Materiał badawczy stanowiło ponad 170 prób aerozoli atmosferycznych pobranych w okresie od 26.01.2005 r. do 19.05.2006 r. na terenie Bazy Marambio ($64^{\circ} 14'S$, $56^{\circ} 37'W$) zlokalizowanej na wyspie Seymour, leżącej u wybrzeży Półwyspu Antarktycznego w archipelagu wysp Jamesa Rossa. Baza zarządzana jest przez Siły Powietrzne Argentyny [9].

Pobór prób aerozoli wykonywany był za pomocą okrągłych filtrów z włókna szklanego o średnicy 240 mm, a czas ekspozycji pojedynczego filtra trwał od dwóch do pięciu dni ze średnią szybkością przepływu wynoszącą ok. $225 \text{ m}^3/\text{h}$. Niewielka powierzchnia filtrów, w połączeniu z wydajnością stacji poboru i niskim poziomem zanieczyszczenia powietrza na terenie Bazy (i Antarktyki w ogóle) spowodowała, iż masa materiału zdeponowanego na filtrach wynosi ok. 0,5 g na pojedynczym filtrze (dla porównania, jest to około 2 - 5 razy mniej niż dla pojedynczego filtra ekspozowanego w Krakowie przez zbliżony okres w stacji MASS-500). Dodatkowo należy zaznaczyć, iż udostępniony materiał badawczy zawierał filtry z wyciętą 1/4 powierzchni, co zostało uwzględnione podczas analizy, odpowiednio pomniejszając sumaryczny przepływ powietrza. Biorąc pod uwagę powyższe fakty, filtry pogrupowano w zestawy (o numerach od FM123 do FM18 oraz dwie próbki ślepe tzw. blanki, w sumie 18 próbek), których całkowity czas ekspozycji wynosił około jednego miesiąca dla każdej próbki. Tabela 8.1 zawiera podstawowe dane próbek filtrów, natomiast w Dodatku E przedstawiono szczegółowe dane dotyczące materiału badawczego.

8.3 Procedura przygotowania próbek do pomiarów γ - spektrometrycznych

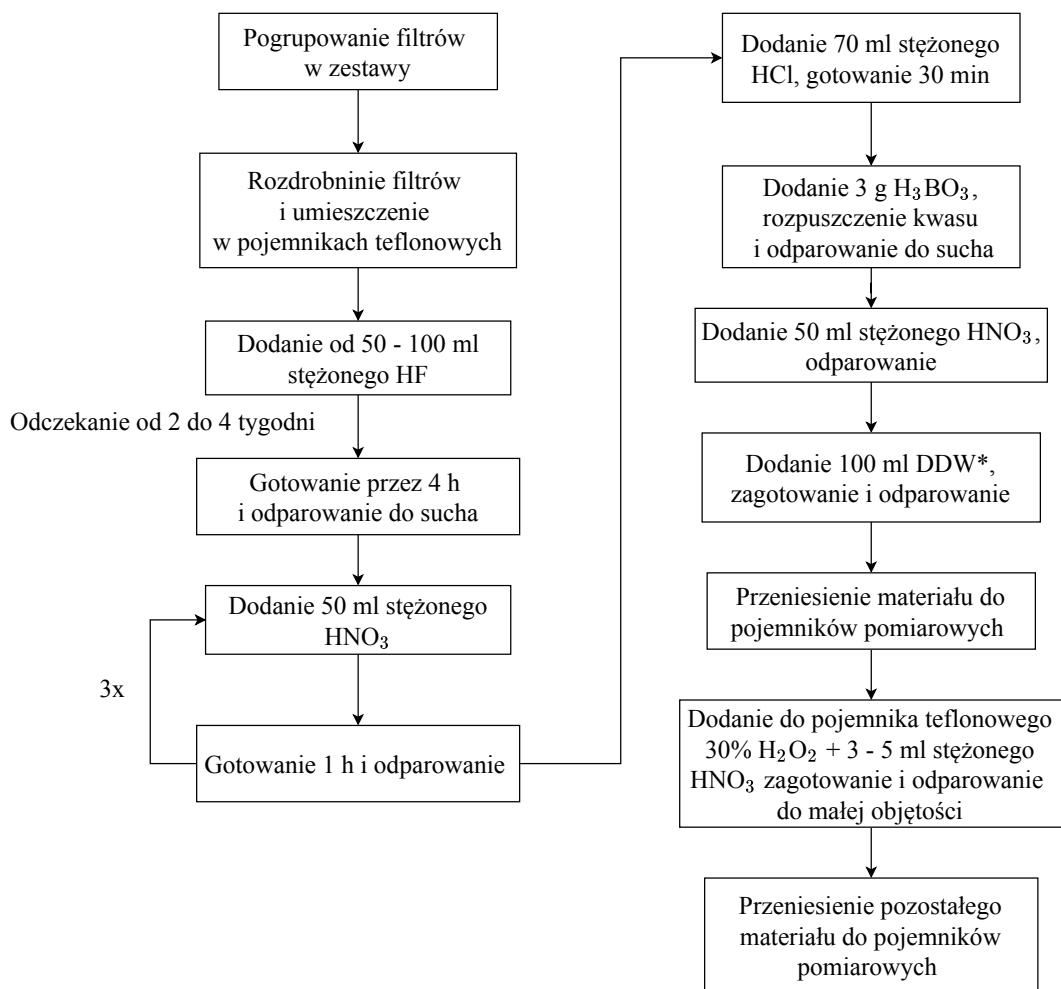
Przed przystąpieniem do pomiarów gamma - spektrometrycznych przeprowadzono procedurę chemicznej mineralizacji próbek, która pozwoliła na zmniejszenie ich objętości, tym samym umożliwiając przygotowanie próbek w odpowiedniej geometrii pomiarowej. Rysunek 8.2 przedstawia schemat zastosowanej procedury mineralizacji. Warunki jej przeprowadzania (np. warunki temperaturowe) gwarantowały brak strat aktywności rozpatrywanych w pracy izotopów. Jednocześnie procedurze, która trwała od trzech do pięciu tygodni, poddawano sześć zestawów próbek.

W pierwszej kolejności, poszczególne filtry rozdrabniano (z zachowaniem środków ostrożności, w celu zniwelowania możliwości utraty zdeponowanych na filtrach aerozoli), umieszczano w naczyniach teflonowych (jedno naczynie na jeden zestaw filtrów) oraz dodawano od 50 do 100 ml kwasu fluorowodorowego (w zależności od masy danej próbki). Próbki pozostawiano na okres od 2 do 4 tygodni. Po upływie tego czasu, próbki gotowano na maszynie elektrycznej (przy ustawieniu temperatury płyty grzewczej na 255°C) przez 4 godziny i odparowywano. Następnie, 3-krotnie dodawano po 50 ml stężonego kwasu azotowego i odparowywano próbki. Kolejnym krokiem było dodanie 70 ml stężonego kwasu solnego, gotowanie przez ok. 30 min. oraz dodanie 3 g kwasu borowego i ponowne gotowanie próbek. Następnie, próbki odparowywano do sucha. W kolejnych krokach dodawano 50 ml stężonego HNO_3 , próbki gotowano i odparowywano oraz doda-

Tabela 8.1 Podstawowe dane próbek filtrów powietrza eksponowanych na terenie Bazy Marambio

Nazwa próbki	Okres ekspozycji		Przepływ sumaryczny [m ³]	Masa [g]	Liczba filtrów w próbce
	Od	Do			
FM123	26.01.05	02.03.05	184104	24,56	12
FM4	02.03.05	04.04.05	160355	17,75	9
FM5	04.04.05	02.05.05	136721	15,47	8
FM6	02.05.05	30.05.05	127042	13,41	7
FM7	30.05.05	04.07.05	114471	15,22	7
FM8	04.07.05	01.08.05	142118	23,10	12
FM9	01.08.05	05.09.05	191903	28,78	15
FM10	05.09.05	03.10.05	160688	23,02	12
FM11	03.10.05	31.10.05	152664	23,41	12
FM12	31.10.05	05.12.05	188435	28,75	15
FM13	05.12.05	02.01.06	153703	23,32	12
FM14	02.01.06	30.01.06	151961	23,70	12
FM15	30.01.06	27.02.06	150976	23,38	12
FM16	27.02.06	03.04.06	182037	26,89	14
FM17	03.04.06	01.05.06	89036	15,29	7
FM18	01.05.06	19.05.06	100697	15,14	8
FMBL1	próbka blank bez filtrów			-	
FMBL2	próbka blank z nieekspozowanymi filtrami			13,21	8

wano 100 ml wody dejonizowanej (DDW). Po 1 h gotowania, zredukowano objętość próbek przez odparowanie (do ok. 2,5 ml), po czym przenoszono je do pojemników pomiarowych. Do zlewek teflonowych ze śladami próbek dodawano perhydrol (w objętości niezbędnej do przykrycia pozostałego materiału w naczyniach) wraz z stężonym kwasem azotowym (od 3 do 5 ml). Następnie, próbki odparowywano do małej objętości (ok. 2,5 ml) oraz przenoszono do pojemników pomiarowych. Po przeniesieniu, próbki odparowywano do sucha za pomocą promiennika podczerwieni. W ten sposób próbkom nadawano określoną geometrię FP (geometria filtru powietrza) lub 2FP (geometria filtru powietrza o podwojonej wysokości). Rysunek 8.3 przedstawia próbki podczas kolejnych etapów procesu mineralizacji.



*DDW - woda dejonizowana

Rysunek 8.2 Schemat procedury przygotowania próbek filtrów powietrza do pomiarów γ - spektrometrycznych



(a) Pojedynczy filtr powietrza, z widoczną odciętą częścią użytą do innych badań (stan filtru w jakim dotarł on do IFJ PAN)



(b) Rozdrobiony zestaw filtrów



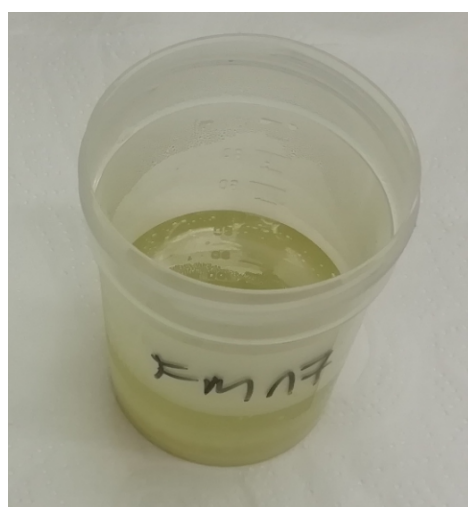
(c) Porównanie próbek filtrów ekspozycyjnych (po lewej) i filtrów nieekspozycyjnych (tzw. blank, po prawej) po 2 tygodniach działania kwasu HF



(d) Jedna z próbek w trakcie procesu mineralizacji



(e) Grupa sześciu próbek poddawanych jednocześnie procesowi mineralizacji



(f) Próbką po przeniesieniu od pojemnika pomiarowego

Rysunek 8.3 Wybrane etapy procedury przygotowania próbek do pomiarów γ - spektrometrycznych

8.4 Pomiar γ - spektrometryczne

8.4.1 Kalibracja wydajnościowa i jej walidacja

W celu wyznaczenia stężenia aktywności izotopów gamma-promieniotwórczych w przygotowanych próbkach, konieczne było określenie wydajności spektrometru dla odpowiednich geometrii. W zależności od ilości materiału, geometrię próbek określono jako FP czyli pojedynczego filtra powietrza (około 51 mm średnicy, 4 mm wysokości) oraz 2FP czyli filtr powietrza z podwojoną wysokością (około 8 mm). Dla geometrii FP zastosowano 3 metody wyznaczenia wydajności:

- metodę eksperymentalną polegającą na pomiarze wzorca kalibracyjnego BW24/19 (wyprodukowany w Ośrodku radioizotopów POLATOM, numer świadectwa wzorcowania BW/Z-62/24/19) wykonanego z filtra Petrianova w formie walca o średnicy około 5 cm i wysokości 4 mm, zawierającego mieszaninę nuklidów gamma-promieniotwórczych (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{57}Cr , ^{113}Sn , ^{83}Sr , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{65}Zn oraz ^{60}Co) i umieszczonego w odpowiednim uchwycie (takim samym we wszystkich pomiarach opisywanych w tym rozdziale). W przypadku izotopów podatnych na zjawisko koincydencyjnego sumowania emitowanych kwantów gamma (np. ^{60}Co), wyznaczono odpowiednie poprawki za pomocą oprogramowania EFFTRAN [52].
- Symulację FP czyli symulację komputerową wydajności przeprowadzoną za pomocą oprogramowania ISOCSTM Calibration Software (zastosowanego we wszystkich symulacjach wydajności). W tym przypadku próbka została zdefiniowana jako walec o średnicy 51 mm i wysokości 4 mm, a jej skład atomowy to (wartość przedstawia procentowy masowy udział danego pierwiastka w próbce): Cl - 37,87%, C - 29,41%, O - 16,33%, Si - 9,63%, H - 3,70%, Ca - 1,79%, Al - 1,27%. Wartości te odpowiadają zawartości wymienionych pierwiastków w filtrach Petrianova.
- Symulację wykorzystywanego pojemnika pomiarowego zbliżonego do geometrii FP (Symulacja pojemnik FP) - w tym przypadku geometria została zdefiniowana jako pojemnik w kształcie walca o wysokości 60 mm i średnicy 47,4 mm wykonany z polipropylenu. Grubość ścianek i denka to 0,5 mm. Materiał w pojemniku miał wysokość 4 mm a jego skład atomowy był następujący: O - 51,28%, Si - 30,25%, Ca - 5,53%, C - 4,72%, Al - 4,00%, Fe - 2,33%, H - 1,79%. Wartości te odpowiadają zawartości wymienionych pierwiastków glebie.

W przypadku geometrii 2FP zastosowano 2 metody wyznaczenia wydajności:

- metodę eksperymentalną polegającą na przeprowadzeniu dwóch pomiarów wzorca BW24/19 i sprasowanego do geometrii FP czystego filtra Petrianova (tak aby ich sumaryczna wysokość wyniosła 8 mm) umieszczonego w czasie jednego pomiaru powyżej oraz w czasie drugiego pomiaru, poniżej wzorca. Sumaryczne widmo pozwala określić wydajność dla podwojonej wysokości geometrii FP.
- Symulację 2FP - symulacja komputerowa analogiczna do Symulacji FP z wysokością próbki wynoszącą 8 mm.

Tabela 8.2 Współczynniki krzywych kalibracji wydajnościowej dla geometrii FP i 2FP. Rozpatrywane są wielomiany 3. i 4. stopnia według wzoru 3.9 oraz krzywe łączone - funkcja kwadratowa (2. stopnia) dla energii poniżej ok. 200 keV oraz funkcja liniowa (1. stopnia) dla energii powyżej 200 keV

		Wzorzec BW24/19 FP	Symulacja FP	Symulacja pojemnik FP	Wzorzec BW24/19 2FP	Symulacja 2FP	
3 st.	a ₃	0.087	0.075	0.070	0.117	0.092	
	a ₂	-1.608	-1.460	-1.367	-2.137	-1.779	
	a ₁	8.981	8.373	7.813	12.066	10.311	
	a ₀	-17.177	-16.529	-15.486	-23.156	-20.459	
4 st.	a ₄	0.030	-0.012	-0.010	0.029	-0.020	
	a ₃	-0.592	0.350	0.289	-0.541	0.530	
	a ₂	4.046	-3.650	-3.115	3.340	-5.271	
	a ₁	-11.680	15.844	13.775	-7.952	22.226	
	a ₀	10.758	-25.692	-22.798	3.909	-35.071	
Krzywa łączona	2 st.	a ₂	-0.268	-0.476	-0.446	-0.356	-0.576
	a ₁	2.168	4.204	3.904	3.096	5.235	
	a ₀	-5.767	-10.802	-10.109	-8.272	-13.503	
1 st.	a ₁	-0.917	-0.905	-0.906	-0.944	-0.900	
a ₀	3.081	2.774	2.720	3.149	2.645		

Wykonanie symulacji komputerowych wydajności dla zdefiniowanych geometrii było możliwe dzięki uprzejmości p. mgr. inż. Dariusza Kołaty (CANBERRA PACKARD Sp. z o.o.).

Dla wszystkich wymienionych metod, do otrzymanych wydajności spektrometru w fotopikach dopasowano, zgodnie z wzorem 3.9, wielomiany 3. i 4. stopnia oraz krzywe łączone składające się z funkcji kwadratowej (2. stopnia) dla energii poniżej ok. 200 keV oraz funkcji liniowej (1. stopnia) dla energii powyżej 200 keV (również w skali logarytmiczno-logarytmicznej). Tabela 8.2 przedstawiają otrzymane współczynniki dopasowanych krzywych do rozpatrywanych geometrii.

W celu walidacji otrzymanych krzywych wydajności, przeprowadzono pomiary materiału referencyjnego IAEA 444 [123] w geometrii FP i 2FP, a otrzymane wyniki stężeń aktywności izotopów ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{241}Am oraz ^{60}Co porównano z wartościami referencyjnymi zamieszczonymi w certyfikacie. Ponadto, aby zweryfikować czułość metod kalibracji na nieidealnie odtworzoną domyślną wysokość danej geometrii, przeprowadzono pomiary materiału referencyjnego z zaniżoną oraz zawyżoną wysokością danej geometrii (odpowiednio 3 mm i 5 mm dla FP oraz 7 mm i 9 mm dla 2FP). Otrzymane wyniki przedstawiają Tabele 8.3 oraz 8.4. Wartości stężenia aktywności danego izotopu C dla danej geometrii pomiarowej, przy zastosowaniu danej metody kalibracji i dopasowania krzywej uznawano za poprawny (zaznaczone w tabelach na zielono) jeśli był on zgodny z wartością referencyjną C_{ref} w granicach niepewności, czyli jeśli zachodziła nierówność:

$$|C - C_{ref}| < k \cdot \sqrt{(u(C))^2 + u(C_{ref})^2}, \quad (8.1)$$

gdzie $u(C)$ oraz $u(C_{ref})$ to niepewności stężeń C i C_{ref} . Współczynnik rozszerzenia k przy-

jęto równy 1. W tabelach zawarto również względne odchylenie różnicy $|C - C_{ref}|$ od wartości referencyjnej oznaczone jako Bias.

Dla geometrii pojedynczego filtra powietrza, kalibracja wyznaczona za pomocą metody eksperymentalnej, dla wszystkich metod dopasowania krzywych i wysokości próbek, poprawnie odtworzyła referencyjne stężenia aktywności. Z kolei Symulacja FP dała najlepsze wyniki w przypadku krzywej 4. stopnia, przy czym można zauważyć, iż wynik odpowiadający stężeniu aktywności ^{137}Cs jest systematycznie zawyżony o około 20% co świadczy o zbyt niskiej wydajności. Najmniej zgodnie wyniki otrzymano dla Symulacji pojemnika FP, gdzie rozbieżności między obliczonymi i referencyjnymi wartościami sięgają nawet 30%. W związku z powyższym, w przypadku próbek o geometrii FP stosowana będzie krzywa 4. stopnia wyznaczona metodą eksperymentalną, gdyż ma ona najmniejsze odchylenie standardowe wartości Bias.

W przypadku geometrii podwójnego filtra powietrza, wyniki są podobne jak dla geometrii FP, mianowicie krzywe wyznaczone za pomocą źródła kalibracyjnego poprawnie odtworzyły wszystkie stężenia aktywności rozpatrywanych izotopów dla wszystkich wysokości próbek. W przypadku Symulacji FP, ponownie najlepsze wyniki uzyskano za pomocą krzywej 4. stopnia, z wyjątkiem koncentracji cezu. Również w przypadku tej geometrii stosowana będzie krzywa doświadczalna 4. stopnia, gdyż ponownie ma najmniejsze odchylenie standardowe wartości Bias.

Błędne wyniki uzyskiwane systematycznie za pomocą krzywych kalibracji wyznaczonych metodami symulacji komputerowej świadczyć mogą o zbyt małej, jak na używaną metodę symulacji, dokładności wyznaczenia i zdefiniowania geometrii próbek, zarówno pod względem wymiarów jak i składu pierwiastkowego. Przeprowadzone doświadczenie dobitnie pokazało, iż metody te należy traktować z ostrożnością i każdorazowo należy przeprowadzić walidację otrzymanych wydajności w celu ich weryfikacji. Opracowanie bardziej szczegółowych geometrii pomiarowych i parametrów wejściowych symulacji poprawi otrzymane krzywe wydajności, a tym samym uzyskiwane za ich pomocą wyniki pomiarów.

Tabela 8.3 Walidacja kalibracji wydajnościowej za pomocą pomiarów materiału referencyjnego IAEA 444 [123] w geometrii FP (4 mm wysokości). Zastosowane metody kalibracji to: metoda doświadczalna za pomocą wzorca kalibracyjnego **BW24/19 FP**, symulacji komputerowej (za pomocą oprogramowania ISOCSTM Calibration Software) dla **geometrii FP** (krążek o średnicy 51 mm i wysokości 4 mm) oraz geometrii **pojemnika FP** o wymiarach zbliżonych do filtru powietrza. Wyniki stężenia aktywności C zgodne z wartością referencyjną C_{ref} w granicach niepewności pomiarowej zaznaczono na zielono. Bias to różnica wyznaczonych stężeń aktywności i stężenia referencyjnego w odniesieniu do stężenia referencyjnego

	E [keV]	C_{ref} [Bq/kg]	Wzorec BW24/19 FP				Symulacja FP						Symulacja pojemnik FP								
			3 st.	4 st.	Krzywa łączona		3 st.	4 st.	Krzywa łączona		3 st.	4 st.	Krzywa łączona								
			C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	
FP 4 mm																					
¹³⁷ Cs	662	68,5(14)	67,5(39)	-1,5	68,7(40)	0,2	65,8(38)	-4,0	80,8(54)	17,9	81,8(55)	19,4	82,5(55)	20,5	85,6(57)	25,0	86,4(58)	26,2	87,6(59)	27,9	
²¹⁰ Pb	46,5	48,0(16)	48,1(101)	0,1	43,6(91)	-9,2	43,9(92)	-8,6	55,9(164)	16,4	52,8(154)	10,0	58,2(170)	21,3	57,4(168)	19,6	54,8(160)	14,1	59,7(175)	24,4	
²⁴¹ Am	60	55,6(16)	54,8(30)	-1,4	53,8(30)	-3,3	53,7(30)	-3,5	62,6(64)	12,6	60,0(62)	8,0	64,7(67)	16,3	65,3(67)	17,4	63,1(65)	13,4	67,4(69)	21,3	
⁶⁰ Co	1173	82,6(20)	75,0(74)	-9,2	75,1(75)	-9,1	76,0(75)	-8,0	77,2(74)	-6,5	74,3(71)	-10,1	94,6(89)	14,6	81,5(78)	-1,3	79,0(75)	-4,3	100,5(95)	21,7	
	1332	82,6(20)	79,5(74)	-3,8	77,7(73)	-6,0	82,6(77)	0,0	83,5(74)	1,1	80,0(71)	-3,2	102,7(91)	24,3	88,2(79)	6,8	85,2(76)	3,1	109,1(96)	32,0	
FP 3 mm																					
¹³⁷ Cs	662	68,5(14)	66,5(44)	-2,9	67,7(45)	-1,2	64,8(43)	-5,4	79,6(59)	16,2	80,6(60)	17,7	81,3(60)	18,7	84,4(63)	23,2	85,2(63)	24,3	86,3(64)	26,0	
²¹⁰ Pb	46,5	48,0(16)	49,7(150)	3,5	45,1(136)	-6,1	45,3(137)	-5,5	57,8(231)	20,4	54,6(218)	13,7	60,2(241)	25,3	59,3(238)	23,6	56,7(227)	18,0	61,7(247)	28,5	
²⁴¹ Am	60	55,6(16)	56,6(34)	1,7	55,5(33)	-0,3	55,4(33)	-0,4	64,8(68)	16,5	62,1(65)	11,7	66,7(70)	20,0	67,6(71)	21,5	65,3(69)	17,4	69,6(73)	25,1	
⁶⁰ Co	1173	82,6(20)	81,6(95)	-1,2	81,7(96)	-1,1	82,6(97)	0,0	85,4(98)	3,3	82,2(94)	-0,5	102,9(116)	24,6	90,1(103)	9,1	87,4(100)	5,8	109,3(123)	32,3	
	1332	82,6(20)	78,0(92)	-5,6	76,2(90)	-7,8	81,0(96)	-1,9	83,4(97)	1,0	79,9(93)	-3,3	100,7(115)	21,9	88,1(102)	6,6	85,1(99)	3,0	107,0(122)	29,5	
FP 5 mm																					
¹³⁷ Cs	662	68,5(14)	68,9(39)	0,6	70,1(39)	2,3	67,2(38)	-1,9	82,5(54)	20,4	83,5(55)	21,9	84,3(55)	23,0	87,4(57)	27,6	88,2(5,8)	28,8	89,4(58)	30,6	
²¹⁰ Pb	46,5	48,0(16)	51,8(88)	8,0	47,0(80)	-2,1	47,3(80)	-1,4	60,3(151)	25,6	56,9(143)	18,6	62,8(158)	30,8	61,9(155)	28,9	59,1(148)	23,0	64,4(162)	34,1	
²⁴¹ Am	60	55,6(16)	56,0(30)	0,6	54,9(29)	-1,3	54,8(29)	-1,5	64,1(65)	15,3	61,5(63)	10,5	66,0(67)	18,7	66,8(68)	20,2	64,6(66)	16,1	68,8(70)	23,8	
⁶⁰ Co	1173	82,6(20)	77,4(63)	-6,3	77,5(63)	-6,2	78,4(64)	-5,1	81,6(62)	-1,2	78,5(60)	-5,0	97,6(74)	18,2	86,1(66)	4,3	83,5(64)	1,1	103,7(78)	25,5	
	1332	82,6(20)	84,4(66)	2,2	82,5(65)	-0,1	87,7(69)	6,2	91,0(66)	10,1	87,1(63)	5,5	109,1(79)	32,1	96,1(70)	16,3	92,8(67)	12,3	115,9(83)	40,3	

Tabela 8.4 Walidacja kalibracji wydajnościowej za pomocą pomiarów materiału referencyjnego IAEA 444 [123] w geometrii 2FP (8 mm wysokości). Zastosowane metody kalibracji to: metoda doświadczalna za pomocą wzorca kalibracyjnego **BW24/19 2FP** oraz symulacji komputerowej (za pomocą oprogramowania ISOCS™ Calibration Software) dla **geometrii 2FP** (kružek o średnicy 51 mm i wysokości 8 mm). Wyniki stężenia aktywności C zgodne z wartością referencyjną C_{ref} w granicach niepewności pomiarowej zaznaczono na zielono. Bias to różnica wyznaczonych stężeń aktywności i stężenia referencyjnego w odniesieniu do stężenia referencyjnego

	Wzorzec BW24/19 2FP						Symulacja 2FP							
	3 st.		4 st.		Krzywa łączona		3 st.		4 st.		Krzywa łączona			
E [keV]	C_{ref} [Bq/kg]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	C [Bq/kg]	Bias [%]	
2FP 8 mm														
^{137}Cs	662	68,5(14)	70,4(38)	2,8	72,4(39)	5,8	67,5(37)	-1,5	82,3(53)	20,2	83,7(53)	22,2	83,6(53)	22,0
^{210}Pb	46,5	48,0(16)	51,1(80)	6,5	46,5(73)	-3,0	45,9(72)	-4,4	57,3(136)	19,4	52,2(124)	8,8	60,0(142)	25,1
^{241}Am	60	55,6(16)	55,9(30)	0,6	55,0(29)	-1,2	54,6(29)	-1,7	63,1(64)	13,5	58,9(60)	5,9	64,9(66)	16,7
^{60}Co	1173	82,6(20)	84,1(61)	1,8	85,6(62)	3,6	85,6(62)	3,7	90,5(59)	9,6	84,9(56)	2,7	103,4(68)	25,2
	1332	82,6(20)	82,8(66)	0,3	82,4(65)	-0,2	87,7(69)	6,1	91,9(67)	11,2	85,5(63)	3,5	105,2(77)	27,4
2FP 7 mm														
^{137}Cs	662	68,5(14)	69,6(38)	1,6	71,6(39)	4,5	66,7(36)	-2,6	81,4(52)	18,8	82,7(53)	20,8	82,6(53)	20,6
^{210}Pb	46,5	48,0(16)	52,2(80)	8,8	47,6(73)	-0,9	46,9(72)	-2,3	58,6(139)	22,0	53,4(126)	11,2	61,4(145)	27,9
^{241}Am	60	55,6(16)	58,6(31)	5,5	57,6(30)	3,7	57,3(30)	3,1	66,2(67)	19,0	61,7(63)	11,0	68,1(69)	22,4
^{60}Co	1173	82,6(20)	83,6(60)	1,2	85,1(61)	3,0	85,1(61)	3,1	90,0(59)	8,9	84,3(55)	2,1	102,8(67)	24,4
	1332	82,6(20)	79,1(58)	-4,3	78,7(58)	-4,7	83,7(62)	1,3	87,7(59)	6,2	81,6(55)	-1,3	100,5(67)	21,7
2FP 9 mm														
^{137}Cs	662	68,5(14)	68,6(37)	0,1	70,6(38)	3,0	65,8(35)	-4,0	80,2(51)	17,1	81,5(52)	19,0	81,4(52)	18,9
^{210}Pb	46,5	48,0(16)	55,1(72)	14,8	50,2(65)	4,5	49,4(64)	3,0	61,8(133)	28,7	56,3(121)	17,2	64,7(139)	34,8
^{241}Am	60	55,6(16)	57,2(30)	2,8	56,2(30)	1,1	55,9(29)	0,5	64,5(65)	16,0	60,2(61)	8,2	66,4(67)	19,4
^{60}Co	1173	82,6(20)	83,7(59)	1,3	83,8(59)	1,4	83,8(59)	1,4	88,5(57)	7,2	83,0(53)	0,5	101,1(65)	22,4
	1332	82,6(20)	77,0(53)	-6,8	81,9(57)	-0,9	81,9(57)	-0,9	85,8(54)	3,9	79,8(50)	-3,4	98,3(61)	19,0

8.4.2 Wyniki pomiarów próbek

Po przeprowadzeniu procesu mineralizacji, próbki zostały poddane pomiarom gamma-spektrometrycznym, z wykorzystaniem skonstruowanego spektrometru, trwającym około 6 dni. Próbka ślepa FMBL2 (zawierająca nieekspozowane filtry powietrza) została wykorzystana do wyznaczenia tła spektrometru dla badanego materiału (z uwzględnieniem geometrii pomiarowej), natomiast próbka FMBL1 (próbka blank bez filtrów) posłużyła do sprawdzenia czystości procedury chemicznej, której wyniki analizy przedstawia Tabela 8.5. Weryfikacji poddano linie widmowe wykorzystywane do wyznaczenia stężeń aktywności interesujących radionuklidów. Można zauważyć, iż różnica liczby zliczeń w odpowiednich pikach widma tła (pomiar z pustą komorą wewnętrzną spektrometru, czas pomiaru 610798 s) oraz znormalizowanej na czas pomiaru tła liczby zliczeń w pikach widma próbki ślepej FMBL2, zgadzają się w granicach niepewności pomiarowej (analogicznie, zgodnie z warunkiem przedstawionym we wzorze 8.1, współczynnik rozszerzenia $k = 1$), co świadczy o braku kontaminacji próbek podczas procedury ich chemicznej mineralizacji.

Tabela 8.5 Wyniki analizy czystości procedury przygotowania próbek do pomiarów gamma-spektrometrycznych. Tło N_1 - liczba zliczeń w pikach wyznaczona w widmie tła spektrometru, FMBL1 N_2 - liczba zliczeń w pikach wyznaczona w widmie próbki ślepej FMBL1

E [keV]	Tło N_1	FMBL1 N_2	$ N_1 - N_2 $	$\sqrt{(u(N_1))^2 + (u(N_2))^2}$
46,5 (^{210}Pb)	597(66)	594(73)	3	98
351 (^{214}Pb)	130(35)	166(54)	36	65
583 (^{208}Tl)	291(45)	266(42)	25	62
609 (^{214}Bi)	202(47)	180(39)	22	61
662 (^{137}Cs)	174(35)	206(37)	32	51
911 (^{228}Ac)	104(26)	95(28)	9	38
1460 (^{40}K)	125(24)	146(24)	21	34

W wyniku przeprowadzonych badań próbek FM123 - FM18, wyznaczono stężenia aktywności następujących izotopów: ^{210}Pb (z wykorzystaniem linii widmowej o energii $E_\gamma = 46,5$ keV), ^{137}Cs (linia widmowa 662 keV), ^{40}K (linia widmowa 1460 keV) oraz zakładając istnienie równowagi promieniotwórczej izotopów pochodnych - ^{226}Ra (jako średnia arytmetyczna stężeń ^{214}Pb (352 keV) i ^{214}Bi (609 keV)). Ponadto, ze względu na czas jaki upłynął od zakończenia poboru próbek, około 15 lat, i zakładając istnienie równowagi promieniotwórczej między ^{228}Th a ^{228}Ra , wyznaczono stężenie aktywności ^{228}Ra (jako średnia arytmetyczna stężeń ^{228}Ac (911 keV) i ^{208}Tl (583 keV)). Wyznaczone niepewności pomiarowe uwzględniają niepewności liczby zliczeń w foto-pikach, niepewność czasu pomiaru (1 s), 5-cio procentową niepewność wyznaczenia wydajności, niepewność przepompowanej objętości powietrza (1 m³) oraz niepewność wyznaczenia masy próbek (0,1 g). Głównym czynnikiem warunkującym niepewność pomiaru, na poziomie ponad 90%, były niepewności liczby zliczeń. Nie mniej jednak, zastosowana stosunkowo duża niepewność wyznaczenia masy próbek odzwierciedla fakt, iż liczba zliczeń widma próbki ślepej FMBL2 (wykorzystywanego jako tło dla badanych próbek), normalizowana była na liczbę poszczególnych filtrów w danej próbce, a nie ich masę. Czynność ta została

wykonana ze względu na brak dostarczonej informacji o masach filtrów przed ich ekspozycją.

Otrzymane wyniki, uwzględniające poprawki na czas poboru próbek, czas od zakończenia poboru do rozpoczęcia pomiaru oraz poprawki na czas pomiaru, zawiera Tabela 8.6. W tabeli, oprócz wartości minimalnego mierzalnego stężenia aktywności (dla przedziału ufności 95%) podano MDC 70 dla przedziału ufności 70% (podobnie jak ma to miejsce dla rutynowo wykonywanych pomiarów na potrzeby monitoringu radiologicznego powietrza). U dołu tabeli zamieszczono wiersz „SUMA”, który zawiera wyniki analiz dla zsumowanych widm energetycznych (dodane do siebie pliki formatu {.tka}) wszystkich pojedynczych pomiarów, po ich uprzednim znormalizowaniu do średniego przepływu osiągniętego w okresie ekspozycji filtrów powietrza. Celem tego zabiegu było zwiększenie liczby zliczeń w foto-pikach, a tym samym poprawienie statystyki pomiaru, co pozwoliło na około czterokrotne obniżenie poziomów minimalnych mierzalnych stężeń aktywności (MDC oraz MDC 70).

Tabela 8.6 Wyniki pomiarów gamma - spektrometrycznych próbek filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio. Kolumny MDC i MDC 70 prezentują minimalną mierzalną koncentrację izotopu dla przedziałów ufności odpowiednio 95% oraz 70%, T - czas pomiaru danej próbki. W przypadku ^{226}Ra i ^{228}Ra , podane wartości MDC i MDC 70 wyznaczone zostały dla linii widmowych o energiach odpowiednio 352 keV i 583 keV.

Próbka	T [s]	Izotop	C [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	MDC [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]	MDC 70 [$\mu\text{Bq}/\text{m}^3$]
FM123	425917	^{210}Pb	1,64(36)	1,17	0,37
		^{226}Ra	0,257(56)	0,149	0,047
		^{228}Ra	0,83(48)	1,24	0,39
		^{137}Cs	<MDC 70	0,099	0,031
		^{40}K	28,8(10)	3,1	1,0
FM4	511493	^{210}Pb	2,69(33)	1,04	0,33
		^{226}Ra	0,511(51)	0,128	0,041
		^{228}Ra	2,68(44)	1,16	0,37
		^{137}Cs	<MDC 70	0,087	0,027
		^{40}K	29,53(90)	2,61	0,83
FM5	418382	^{210}Pb	1,97(37)	1,20	0,38
		^{226}Ra	0,287(54)	0,156	0,049
		^{228}Ra	1,32(55)	1,39	0,44
		^{137}Cs	<MDC 70	0,120	0,038
		^{40}K	29,3(11)	3,1	1,0
FM6	504168	^{210}Pb	4,35(35)	1,07	0,34
		^{226}Ra	0,391(52)	0,157	0,050
		^{228}Ra	1,39(46)	1,13	0,36
		^{137}Cs	0,052(31)	0,103	0,032
		^{40}K	32,3(10)	2,8	0,9

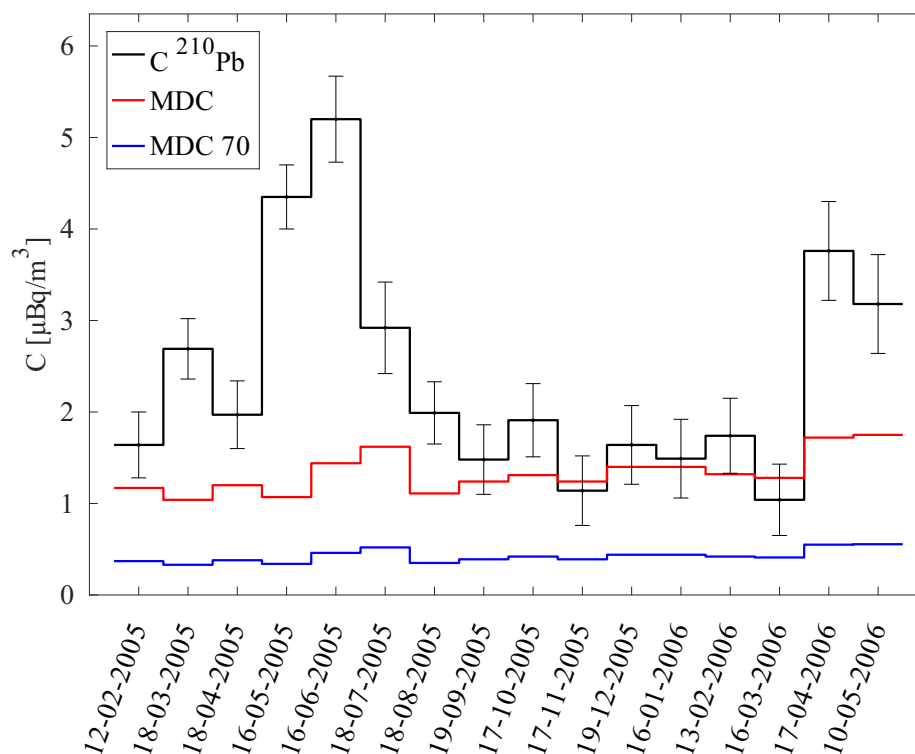
FM7	431323	^{210}Pb	5,20(47)	1,44	0,46
		^{226}Ra	0,391(61)	0,168	0,053
		^{228}Ra	1,57(58)	1,40	0,44
		^{137}Cs	0,049(41)	0,134	0,042
		^{40}K	44,0(12)	3,4	1,1
FM8	422020	^{210}Pb	2,92(50)	1,62	0,52
		^{226}Ra	0,391(69)	0,195	0,062
		^{228}Ra	1,26(59)	1,54	0,49
		^{137}Cs	<MDC 70	0,137	0,043
		^{40}K	49,0(14)	4,0	1,3
FM9	507839	^{210}Pb	1,99(34)	1,11	0,35
		^{226}Ra	0,207(52)	0,145	0,046
		^{228}Ra	1,14(49)	1,24	0,39
		^{137}Cs	<MDC 70	0,112	0,035
		^{40}K	39,7(11)	3,2	1,0
FM10	429392	^{210}Pb	1,48(38)	1,24	0,39
		^{226}Ra	0,300(62)	0,176	0,056
		^{228}Ra	1,00(53)	1,38	0,44
		^{137}Cs	<MDC 70	0,119	0,037
		^{40}K	34,0(12)	3,5	1,1
FM11	511301	^{210}Pb	1,91(40)	1,31	0,42
		^{226}Ra	0,419(56)	0,150	0,047
		^{228}Ra	1,81(52)	1,33	0,42
		^{137}Cs	<MDC 70	0,120	0,038
		^{40}K	47,2(12)	3,4	1,1
FM12	510794	^{210}Pb	1,14(38)	1,24	0,39
		^{226}Ra	0,258(53)	0,149	0,047
		^{228}Ra	1,22(50)	1,33	0,42
		^{137}Cs	0,037(35)	0,115	0,036
		^{40}K	37,8(11)	3,3	1,0
FM13	508385	^{210}Pb	1,64(43)	1,40	0,44
		^{226}Ra	0,411(55)	0,151	0,048
		^{228}Ra	1,38(48)	1,27	0,40
		^{137}Cs	<MDC 70	0,117	0,037
		^{40}K	35,1(11)	3,4	1,1
FM14	478847	^{210}Pb	1,49(43)	1,40	0,44

		^{226}Ra	0,437(58)	0,159	0,050
		^{228}Ra	1,95(52)	1,34	0,42
		^{137}Cs	<MDC 70	0,130	0,041
		^{40}K	41,4(12)	3,5	1,1
		^{210}Pb	1,74(41)	1,32	0,42
FM15	510160	^{226}Ra	0,477(56)	0,161	0,051
		^{228}Ra	1,40(50)	1,32	0,42
		^{137}Cs	<MDC 70	0,107	0,034
		^{40}K	42,7(12)	3,4	1,1
		^{210}Pb	1,04(39)	1,28	0,41
		^{226}Ra	0,250(55)	0,150	0,047
FM16	504074	^{228}Ra	0,72(45)	1,16	0,37
		^{137}Cs	<MDC 70	0,110	0,035
		^{40}K	34,5(11)	3,2	1,0
		^{210}Pb	3,76(54)	1,72	0,55
		^{226}Ra	0,548(73)	0,198	0,063
FM17	518723	^{228}Ra	2,99(70)	1,98	0,63
		^{137}Cs	0,088(52)	0,171	0,054
		^{40}K	69,0(15)	3,9	1,3
		^{210}Pb	3,18(54)	1,75	0,55
		^{226}Ra	0,399(67)	0,182	0,058
FM18	521693	^{228}Ra	2,12(60)	1,64	0,52
		^{137}Cs	0,103(47)	0,154	0,049
		^{40}K	43,7(13)	3,8	1,2
		^{210}Pb	2,35(16)	0,32	0,10
		^{226}Ra	0,387(25)	0,042	0,013
SUMA	7714511	^{228}Ra	1,54(16)	0,38	0,12
		^{137}Cs	<MDC 70	0,032	0,010
		^{40}K	40,3(21)	0,8	0,3

^{210}Pb

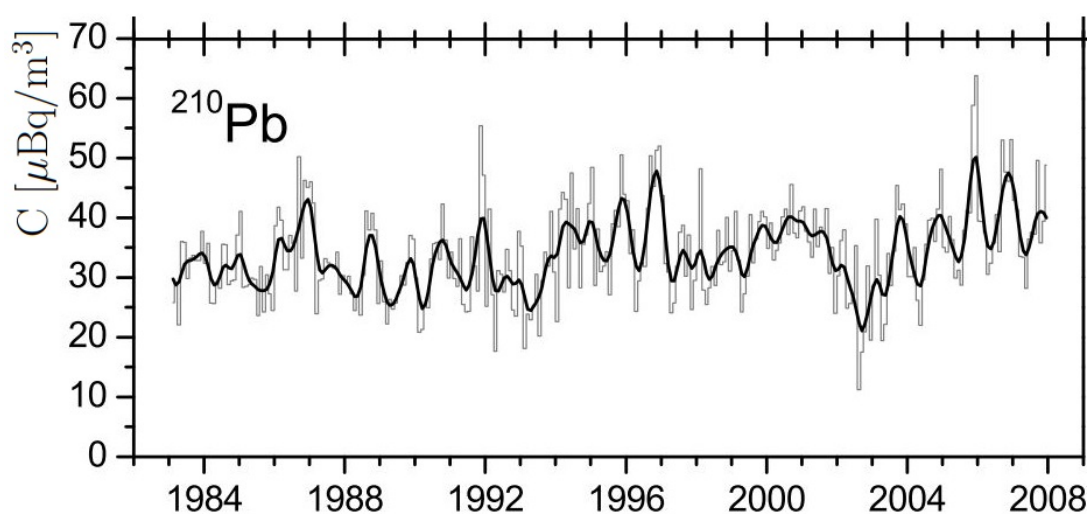
Rysunek 8.4 przedstawia zestawienie wyników pomiarów stężenia aktywności dla ^{210}Pb , które zawierały się w przedziale od 1,48(38) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ do 5,20(47) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Wartość średnia koncentracji wyniosła 2,6(12) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ (wartości minimalne, maksymalne oraz średnie wyznaczone zostały jedynie dla wyników powyżej poziomu MDC). Ponadto, można zauważyć wzrost stężenia izotopu w czasie antarktycznej jesieni (kwiecień - czerwiec).

W pracy Maenhaut et al. (1979) [136] autorzy wyznaczyli stężenia ^{210}Pb w latach 1973 - 1974 r. oraz 1974 - 1975 r., w okresach antarktycznego lata, w pobliżu stacji



Rysunek 8.4 Wyniki stężenia ^{210}Pb dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio, daty reprezentują środek okresu ekspozycji danego filtra

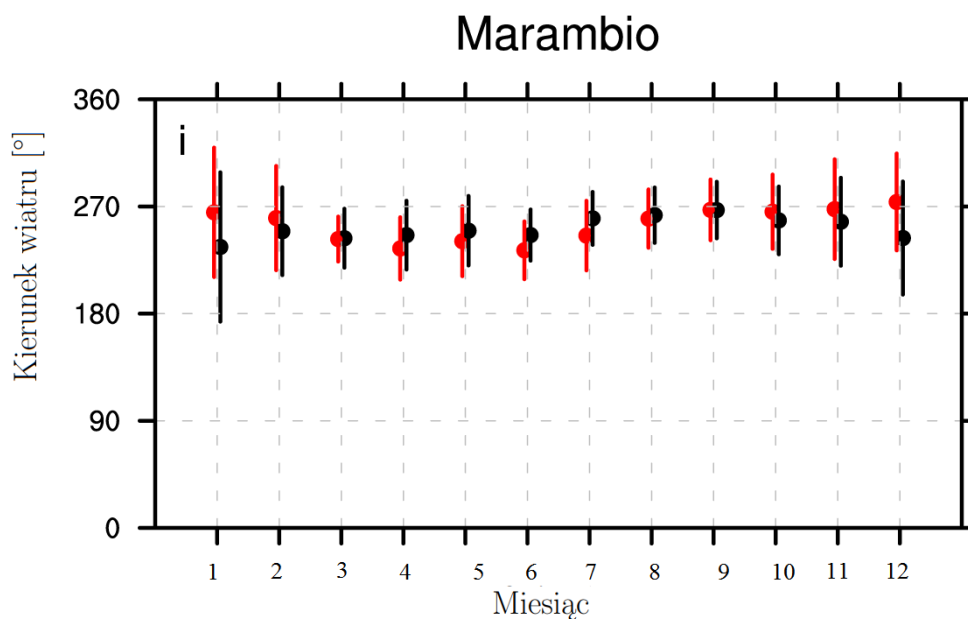
Amundsena-Scotta. Zarejestrowane stężenia zawierały się w przedziale $0,036 - 3,1 \text{ fCi}/\text{m}^3$ ($1,3 - 115 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$), czyli najmniejsze zarejestrowane stężenia były w zgodzie z otrzymanymi w niniejszej rozprawie. Niemniej jednak, wartości maksymalne były nawet kilkusetkrotnie wyższe.



Rysunek 8.5 Wyniki stężenia ^{210}Pb zarejestrowane w stacji Neumayer. Kolor szary reprezentuje średnie miesięczne, kolor czarny to dane wygładzone, wyznaczające cykle sezonowe. Na podst. [53]

Z kolei praca Elsässer et al. (2011) [53], zawiera wyniki 25-cio letnich, ciągłych pomiarów stężeń m.in. ^{210}Pb uzyskanych w stacji Neumayer w latach 1983 do 2008. Rysunek 8.5 przedstawia zarejestrowane wyniki stężenia ^{210}Pb . Minimalne i maksymalne koncentracje wyniosły odpowiednio 11 i $64 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$, natomiast wartość średnia wyniosła $34(23\%) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Ponadto wykazano sezonowe zmiany stężenia ^{210}Pb w przeciągu roku, i tak statystycznie najniższe stężenia odnotowywano w kwietniu, a najwyższe w listopadzie.

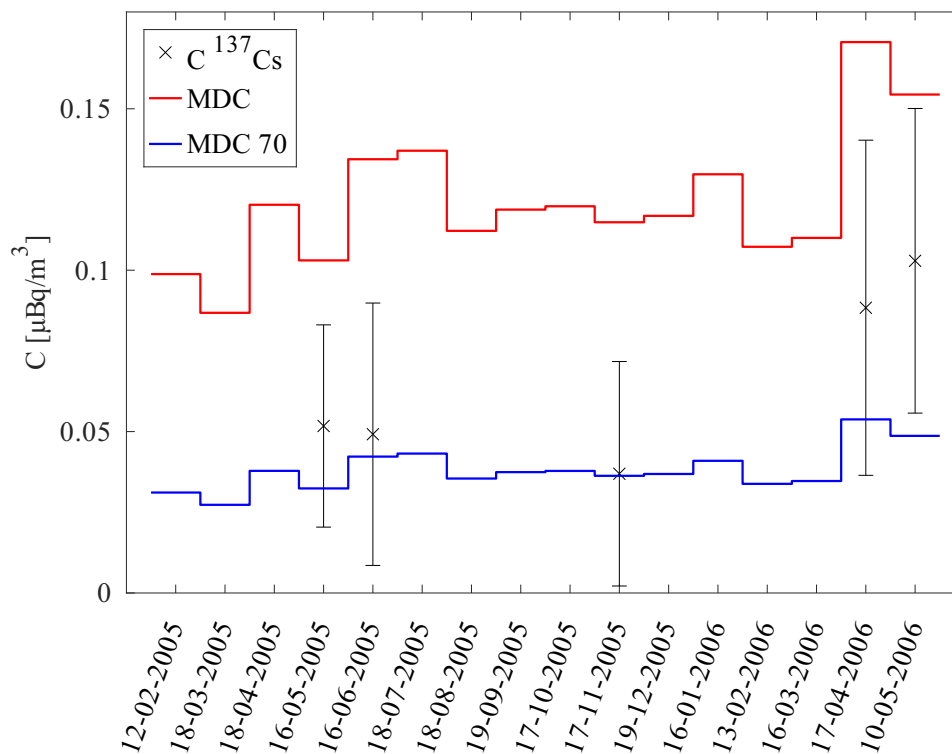
Rozbieżności uzyskanych danych w porównaniu z danymi literaturowymi, zarówno pod kątem stężeń ^{210}Pb jak również ich sezonowej zmienności, najprawdopodobniej spowodowane są oddaleniem Bazy Marambio od centrum kontynentu (a tym samym od stacji w których przeprowadzono poprzednie badania), otoczeniem Półwyspu Antarktycznego przez wody Oceanu Południowego oraz głównym kierunkiem wiatru. Rysunek 8.6 przedstawia zmierzony (czarne markery) oraz wyznaczony za pomocą modelu RACMO2.3 (ang. *Regional Atmospheric Climate Model*) kierunek wiatru dla Bazy Marambio wyznaczony w pracy Wessem et al. (2015) [210]. Można zauważyć, iż średni miesięczny kierunek wiatru wynosi około 270° [210] co sugeruje nacieranie mas powietrza znad wód Oceanu Południowego. Wyższe stężenia rejestrowane w stacji Neumayer mogą być skutkiem wiatrów katabatycznych wiejących od centrum kontynentu w kierunku jego brzegów [163].



Rysunek 8.6 Średni miesięczny kierunek wiatru w Bazie Marambio. Na podst. [210]

^{137}Cs

W przypadku izotopu antropogenicznego - ^{137}Cs , zastosowana technika pomiarowa nie pozwoliła na wyznaczenie stężenia aktywności powyżej wartości MDC. Wartości średnie MDC i MDC 70 dla badanego zestawu próbek wyniosły odpowiednio $0,121(21)$ oraz $0,0381(66) \mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Nie mniej jednak w przypadku 5 próbek, FM6, FM7, FM12, FM17 oraz FM18 stężenie rozpatrywanego izotopu było powyżej wartości MDC 70 - czarne znaczniki na Rysunku 8.7. Dodatkowo, należy zaznaczyć, iż dzięki zsumowaniu zareje-



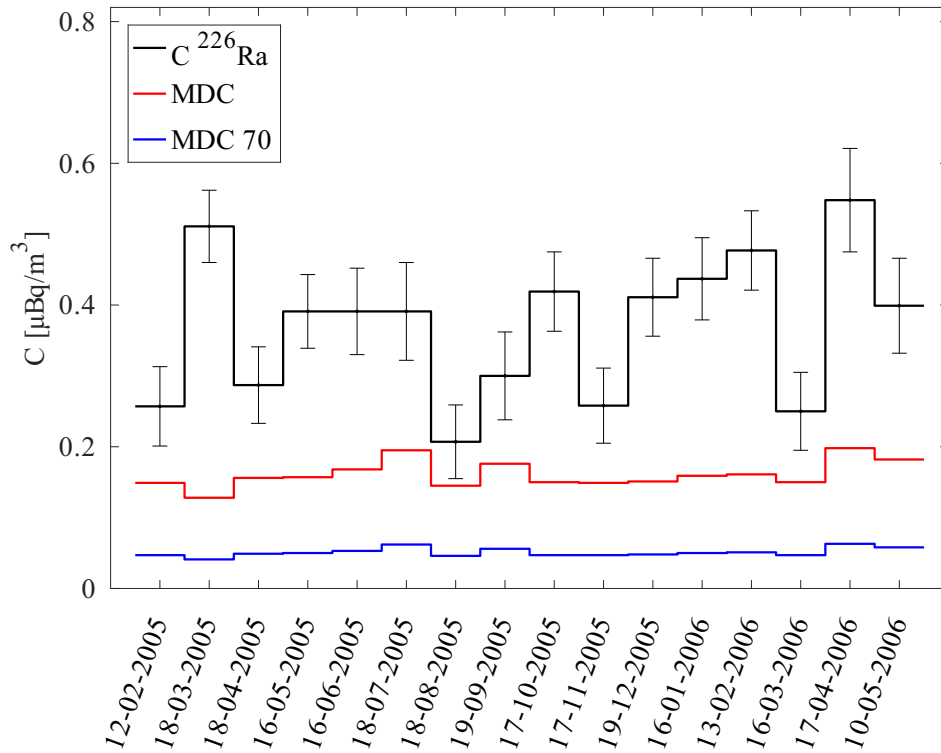
Rysunek 8.7 Wyniki stężenia ^{137}Cs dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio, daty reprezentują środek okresu ekspozycji danego filtra, zaznaczono jedynie koncentracje powyżej poziomu MDC 70

strowanych widm możliwym stało się osiągnięcie minimalnych mierzalnych koncentracji, MDC i MDC 70 na poziomie odpowiednio $0,033 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$ oraz $0,010 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$.

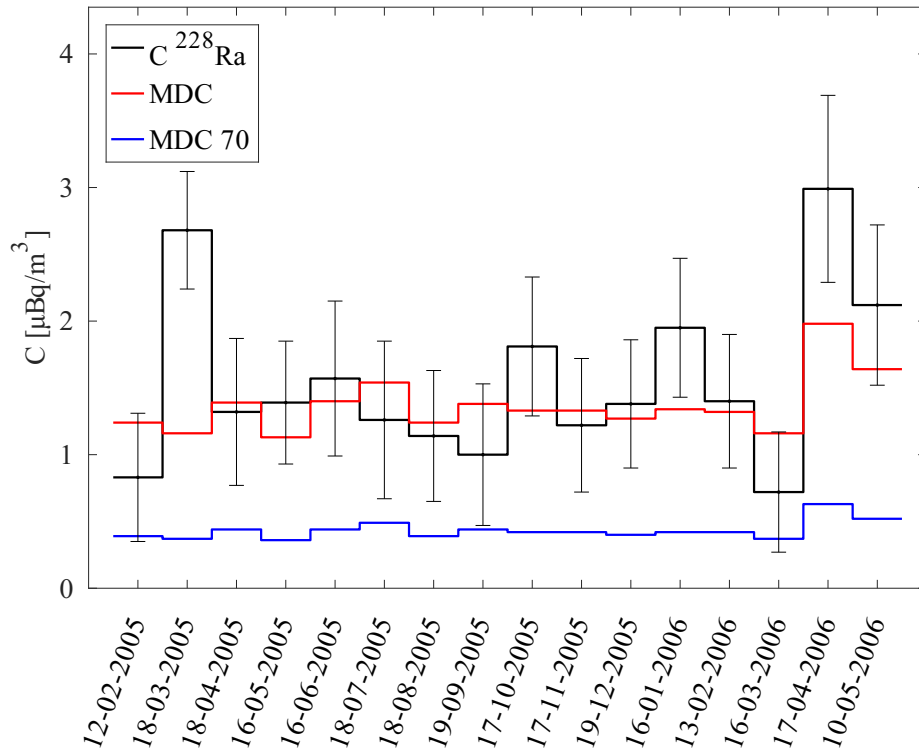
Podobnie jak w przypadku ołowiu, zauważono wzrost stężeń ^{137}Cs w okresie kwiecień - czerwiec, jednak biorąc pod uwagę niskie stężenia radionuklidów w materiale badawczym, należy przeprowadzić pomiary dla dłuższego okresu monitoringu radioaktywnego powietrza, w celu potwierdzenia lub odrzucenia stwierdzenia o sezonowej zmienności stężenia ^{137}Cs .

W dostępnej literaturze przedmiotu, stężenia cezu zostały odnotowane w pracy Maenhaut et al. (1979) [136] (badania przeprowadzone w latach 1973 - 1974 r. i 1974 - 1975 r. w pobliżu stacji Amundsena-Scotta). Zarejestrowane ówczesnie koncentracje ^{137}Cs zawierały się w przedziale $0,19 - 0,96 \text{ fCi}/\text{m}^3$ ($7,0 - 35,5 \mu\text{Bq}/\text{m}^3$), czyli były od kilku- do kilkusetkrotnie wyższe niż przedstawione w niniejszej pracy.

Otrzymane wyniki stężenia ^{137}Cs , nawet 2 rzędy wielkości niższe od tych zarejestrowanych w latach 70-tych XX w., wskazują na wysoką czystość powietrza Półwyspu Antarktycznego. Wpływ na zmniejszenie kontaminacji tego regionu miało przede wszystkim zaprzestanie przeprowadzania atmosferycznych i podwodnych testów broni jądrowej i stopniowe zmniejszanie się koncentracji izotopów antropogenicznych w atmosferze, m.in. na skutek rozpadów promieniotwórczych, depozycji oraz niewielkiej resuspensji. Należy przyjąć, iż uzyskane minimalne mierzalne stężenia aktywności mogą pełnić rolę poziomów referencyjnych (poziomów 0) dla przyszłych, ewentualnych skażeń promieniotwórczych obszaru antarktycznego.

^{226}Ra , ^{228}Ra 

Rysunek 8.8 Wyniki stężenia ^{226}Ra dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio, daty reprezentują środek okresu ekspozycji danego filtra

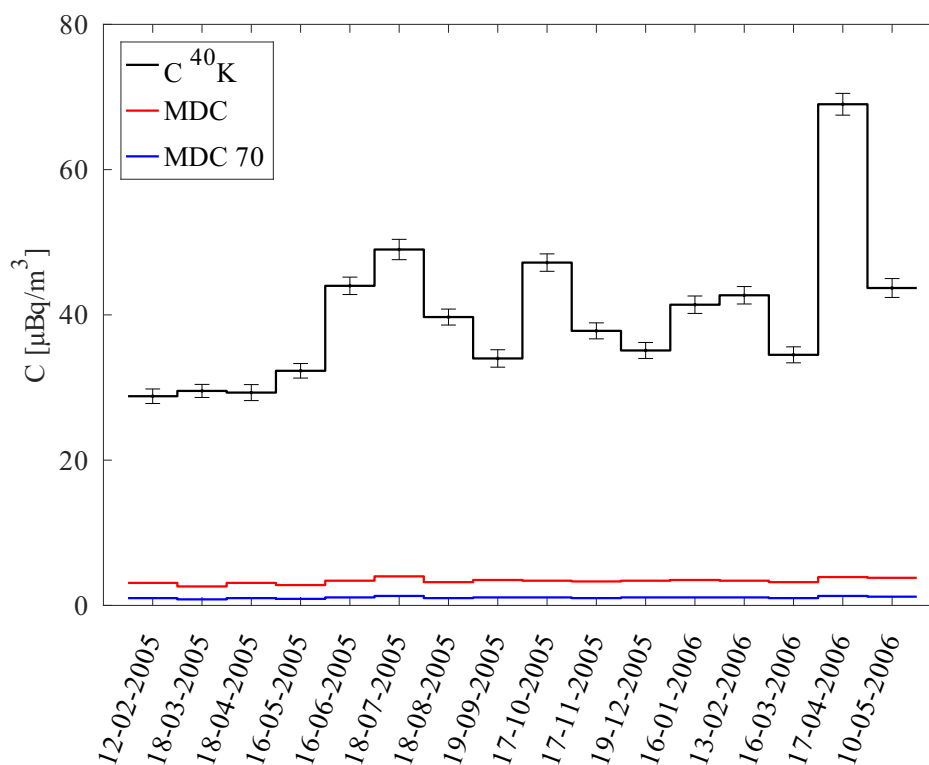


Rysunek 8.9 Wyniki stężenia ^{228}Ra dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio, daty reprezentują środek okresu ekspozycji danego filtra

Koncentracja ^{226}Ra , w badanym materiale zawierała się w przedziale od 0,207(52) do 0,548(71) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ ze średnią wartością 0,37(10) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Natomiast, w przypadku stężeń ^{228}Ra , wartości stężenia aktywności - minimalna i maksymalna wyniosły odpowiednio 1,38(48) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$ oraz 2,99(70) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, a wartość średnia - 1,92(59) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. Uzyskane wyniki przedstawiają Rysunki 8.8 oraz 8.9. Można zauważyć, analogiczny jak w przypadku ^{210}Pb (choć mniej wyraźny) wzrost stężenia ^{226}Ra i ^{228}Ra w okresach jesiennych - marzec 2005 r. oraz kwiecień 2006 r. Ponadto, wyznaczone wyższe stężenia ^{210}Pb w porównaniu do stężeń ^{226}Ra , wskazują iż część aktywności ^{210}Pb pochodzi z rozpadów atmosferycznego radonu. Brak dostępnych danych literaturowych na temat stężenia aktywności ^{226}Ra i ^{228}Ra , uniemożliwił porównanie otrzymanych wyników badań.

^{40}K

Rysunek 8.10 przedstawia wyniki pomiarów dla ^{40}K . Wyznaczone stężenie aktywności było w zakresie 28,8(10) - 69(15) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$, a wartość średnia wyniosła 40(10) $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$. W przeciwieństwie do wyżej opisanych radioizotopów, nie stwierdzono wzrostu stężenia tego izotopu na przełomie marca/kwietnia 2005 r., co być może spowodowane było mniejszą resuspensją. Niemniej jednak, wzrost taki zanotowano w filtrach powietrza, które były eksponowane rok później.



Rysunek 8.10 Wyniki stężenia ^{40}K dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio, daty reprezentują środek okresu ekspozycji danego filtra

Podsumowując przeprowadzone badania i ich wyniki, należy stwierdzić, iż poziom zanieczyszczeń radioaktywnych powietrza rejonu Półwyspu Antarktycznego jest bardzo niski. Ponadto porównując otrzymane wyniki z danymi literaturowymi można zaobser-

wować zmniejszenie się koncentracji radioizotopów gamma - promieniotwórczych, nawet kilkusetkrotne, w przeciągu kilku dekad. Należy jednak zauważyć, że przesunięcie w czasie sezonowych wahań koncentracji radioizotopów pokazuje, iż pomiary przeprowadzane w stacjach oddalonych o kilka tysięcy kilometrów mogą się znacząco różnić, na co wpływ ma również poziom skomplikowania procesów wpływających na ruch mas powietrza w rejonie Bieguna Południowego.

Rozdział 9

Izotopy γ -promieniotwórcze obecne we fragmentach meteorytów

W tym rozdziale zostaną opisane badania aktywności izotopów gamma - promieniotwórczych obecnych w próbkach meteorytów. Pomiarom zostały poddane fragmenty dwóch okazów meteorytów - Meteoryt Sikhote-Alin oraz Meteoryt Pułtusk (nazwy meteorytów za Stępisiewicz (2012) [191]). Zastosowanie technik nieniszczących, takich jak niskotłowa spektrometria promieniowania gamma, jest kluczowe w przypadku próbek materii meteorytowej, ze względu na ich dużą wartość naukową oraz kolekcjonerską.

9.1 Informacje wstępne

Meteoroidy to niewielkie obiekty skalne lub metaliczne pochodzące z przestrzeni kosmicznej [11, 176]. W większości są to fragmenty komet i asteroid, jak również odłamki powstałe w wyniku wyrzutów materii spowodowanych kolizjami ciał niebieskich. Gdy meteoroid wchodzi w ziemską atmosferę (lub ogólniej w atmosferę planety lub księżyca), w wyniku takich czynników jak tarcie, ciśnienie oraz reakcje chemiczne rozgrzewa się, wytraca energię oraz dochodzi do jego topnienia i parowania (ablacja). Często również procesy te skutkują fragmentacją pierwotnego meteoroidu. Taki obiekt (oraz towarzyszące procesowi przejścia przez atmosferę zjawisko świetlne), nazywany jest **meteorem** [16, 148, 186]. Z kolei **meteoryt** to każdy stały obiekt, który przetrwał fazę meteoru w gazowej atmosferze, nie uległ całkowitemu wyparowaniu i dotarł do powierzchni planety [16, 176]. Często w wyniku fragmentacji, meteoryty spadają na większe ciała niebieskie, w postaci tzw. „deszczu meteorytowego”, a powierzchnię spadku określa się „elipsą rozsiania”.

Szacowany, roczny strumień meteorów wchodzących w ziemską atmosferę waha się w przedziale od 2 000 do 200 000 ton ze średnią szybkością mieszczącą się w przedziale od 10 do 60 km/s [48]. Rozpiętość masy meteorów jest olbrzymia i określana na ponad 30 rzędów wielkości - od 10^{-16} g aż do 10^{15} g, przy czym ponad 80% masy jest skupione w obiektach o masach rzędu od 10^{-7} do 10^{-3} g [204]. Badanie strumienia meteorytów pozwoliły oszacować całkowitą masę obiektów o masach od 10 g do 10^6 g, docierających do powierzchni Ziemi na $5,4 \cdot 10^4$ kg/rok [48].

Podstawowa klasyfikacja dzieli meteoryty na meteoryty kamienne, żelazne i żelazno-kamienne, jednak podział ten uważany jest za zbyt zgubny i niedokładny [142, 208]. Nowsze klasyfikacje dzielą meteoryty na chondryty i achondryty, biorąc pod uwagę sposób formowania się skały meteorytu. Chondryty mają skład podobny do ciał niebieskich Układu Słonecznego i powstają w wyniku osiadania materii na planetoidzie. Z kolei achondryty to skały powstające w wyniku krystalizacji magmy. Wyróżnia się achondryty pierwotne powstające w przypadku szybkiego stygnięcia magmy bez jej dyferencjacji oraz achondryty kamienne, żelazno-kamienne i żelazne, które powstały, gdy przed krystalizacją nastąpiła faza dyferencjacji magmy. Badanie kolejnych cech meteorytów takich jak skład chemiczny, mineralny, izotopowy oraz właściwości petrologiczne pozwoliły na dużo bardziej szczegółowe sklasyfikowanie meteorytów [142, 208].

9.1.1 Radioaktywność meteorytów

Skład izotopowy materii meteorytowej zależy od jej rodzaju, pochodzenia, składu chemicznego i historii, przy czym obecne w niej izotopy można podzielić na izotopy pierwotne (takie jak ^{40}K , ^{238}U czy ^{232}Th) oraz izotopy kosmogeniczne (np. ^7Be , ^{22}Na , ^{26}Al , ^{54}Mn , ^{60}Co) [127, 167, 169].

Koncentracja izotopów pierwszej grupy jest wynikiem procesów, jakim podlegał meteoryt w trakcie jego formowania, co mogło mieć miejsce np. w czasie powstawania Układu Słonecznego. Stosunki izotopowe K/U pozwalają na identyfikację typu meteorytu [193], a także, na rozróżnienie skał (np. w przypadku meteorytów księżycowych) oraz ocenę stopnia dyferencjacji tworzącej je magmy, która prowadzi do zróżnicowania składu chemicznego i własności fizycznych tworzących się skał [167].

Izotopy kosmogeniczne produkowane są w wyniku reakcji jądrowych indukowanych zarówno przez galaktyczne jak i słoneczne promieniowanie kosmiczne i zachodzących w materii meteoroidów w trakcie ich obecności w przestrzeni kosmicznej [169]. Produkcja nuklidów kosmogenicznych przez protony pochodzenia słonecznego ograniczona jest jedynie do wierzchniej warstwy meteoroidu, podczas gdy galaktyczne promieniowanie kosmiczne może penetrować obiekty znacznie głębiej [127]. Ponadto reakcje te, mogą być źródłem neutronów, prowadzących do dalszych reakcji aktywacji [127], a w wyniku oddziaływań materii meteoroidów z wysokoenergetycznymi protonami, dochodzić może do reakcji spalacji cięższych jąder. Tempo produkcji radioizotopów kosmogenicznych zależy od takich czynników jak: skład meteoroidu (dany izotop może być wytworzony w wyniku oddziaływania promieniowania kosmicznego z określonymi izotopami składowymi meteoroidu - tzw. izotopy „tarczowe”), abundancji nuklidów „tarczowych” (np. Mg, Al oraz Si biorą udział w produkcji ^{22}Na) oraz rozmiaru meteoroidu (dla meteoroidów o średnicach mniejszych od ok. 80 cm, tempo produkcji wzrasta wraz z głębokością, podczas gdy dla większych obiektów, następuje ekranowanie wewnętrznych warstw przez warstwy zewnętrzne, co skutkuje spadkiem tempa produkcji w centrum meteoroidu [127]. Ponadto, w przypadku izotopów krótkożyciowych, na szybkość ich produkcji wpływ mają fluktuacje natężenia strumienia promieniowania kosmicznego (zarówno pochodzenia galaktycznego jak i słonecznego). Produkcja izotopów zostaje zatrzymana, gdy meteoryt spadnie na Ziemię, gdzie atmosfera powoduje znaczną redukcję strumienia promieniowa-

nia kosmicznego [169].

9.1.2 Materiał badawczy

Materiałem poddanym badaniom były fragmenty dwóch okazów meteorytów - Meteoryt Sikhote-Alin oraz Meteoryt Pułtusk. Rysunek 9.1 przedstawia badane fragmenty meteorytów.



Rysunek 9.1 Fragmenty meteorytów poddanych badaniom w ramach niniejszej rozprawy. Masy okazów wynosiły 4,97 g oraz 5,61 g odpowiednio fragmentu meteorytu Pułtusk oraz meteorytu Sikhote-Alin

Meteoryt Sikhote-Alin

Meteoryt Sikhote-Alin jest meteorytem żelaznym, który spadł w górach Sichote-Aliń w południowo-wschodniej Rosji (ówczesnym Związku Socjalistycznych Republik Radzieckich) dnia 12 lutego 1947 roku. Elipsa rozsiania meteorytu miała wymiary 4 km na 12 km, a oś wielka elipsy przebiegała z kierunku NNW na SSE [118]. W obszarze tym, zebrano w sumie 26 ton materiału meteorytowego [118] (tzw. całkowita znana masa meteorytów z danego spadku, ang. *Total Known Weight, TKW* [20]), przy czym całkowita masa deszczu meteorytowego jaka spadła na Ziemię szacowana jest na około 70 ton [118, 119].

W czasie przechodzenia przez atmosferę, meteoryt uległ rozpadowi, a kawałki uległy rozproszeniu jako żelazny deszcz meteorytowy. Większe fragmenty utworzyły ponad 100 kraterów [56, 118]. Według relacji świadków, upadkowi meteorytów towarzyszyła olśniewająca, jaśniejsza od światła dziennego kula ognia, która przeleciała z północy na południe (zdarzenie miało miejsce o godzinie 10:38 czasu lokalnego). Wzdłuż trajektorii przelotu meteorytu, powstał ślad w postaci smugi, który pozostawał widoczny przez kilka kolejnych godzin. Po zniknięciu kuli ognistej, słyszalne były głośne detonacje. Niemniej jednak, nawet w najbliższej stacji sejsmicznej zlokalizowanej we Władywostoku, około 400 km od miejsca upadku meteorytu, nie zarejestrowano żadnych fal sejsmicznych przypisywanych temu zjawisku [56].

W wyniku przeprowadzonych ekspedycji naukowych oraz opierając się na relacjach naocznych świadków, określono tor ruchu meteorytu oraz jego pochodzenie. Obiekt ten poruszał się po orbicie eliptycznej [56] i najprawdopodobniej pochodził z pasa planetoid znajdującego się pomiędzy orbitami Marsa i Jowisza, a jego początkowa masa wynosiła kilkaset ton [119].

Skład materii meteorytowej oszacowano jako: 93% żelaza, 6% niklu, 0,4% kobaltu, 0,5% fosforu oraz 0,3% siarki oraz śladowe ilości germanu i irydu [31, 119].

Masa badanego w IFJ PAN fragmentu meteorytu Sikhote-Alin wynosiła 5,61 g.

Meteoryt Pułtusk

Meteoryt Pułtusk, jest meteorytem należącym do grupy chondrytów zwyczajnych (złożony jest z drobnych okruchów skalnych) i spadł on w postaci deszczu meteorytowego w okolicach Pułtuska 30 stycznia 1868 roku [19]. Meteoryt ten uznawany jest za największy kamienny deszcz meteorytowy w historii (nawet ponad 100 000 fragmentów) [81]. Całkowita znana masa meteorytów z tego spadku szacowana jest na 8863 kg, a najcięższy z okazów ważył ponad 9 kg [205].

Przełot meteorytu był obserwowany przez wielu świadków w znacznej części Europy Środkowej (od Węgier na południu po Gdańsk na północy i od Berlina na zachodzie po Grodno na wschodzie), a elipsa rozsiania miała powierzchnię około 130 km², natomiast jej oś wielka przebiegała z kierunku SW na NE [19]. Analiza zebranych fragmentów (badania ich skorup obtopieniowych powstających w trakcie przełotu przez atmosferę) pozwoliła ustalić, iż meteor uległ na znacznej wysokości rozpadowi na dwa ciała, które następnie dalej podlegały fragmentacji, nawet do drobin o masach rzędu kilku gramów (tzw. groch pułtuski) [19, 115]. Hipoteza ta podparta jest również relacjami świadków zamieszczonymi w Kurierze Warszawskim z dnia 31 stycznia 1868 r.: „ale ja wyraźnie widziała dwie ogniste kule, przelatujące strasznie wysoko po nad Warszawą i to one tak ogromnie świeciły” [115]. Ponadto fragmenty meteorytu miały na tyle niewielki pęd, że nie zagłębiły się w gruncie, a mniejsze z nich leżały na powierzchni śniegu i lodu pokrywającego Narew [115].

Już w roku 1868, Galle na podstawie relacji świadków, wysunął wniosek, iż orbita meteoroidu była hiperbolą, co oznaczałoby, iż przybył on spoza Układu Słonecznego. Wynik ten został jednak obalony po ponad 70 latach, w 1940 r. przez Wylie, który gruntownie przeanalizował dostępne dane, co pozwoliło mu na obliczenie orbity meteoroidu i stwierdzenie, że była to elipsa [213]. Współczesne badania wskazują, iż meteoroid był fragmentem planetoidy (6) Hobe pochodzącej z pasa planetoid [114], podobnie jak meteoryt Sikhote-Alin.

Skład chemiczny Meteorytu Pułtusk jest następujący (zawartość w procentach masowych): SiO₂ 36,44%, TiO₂ 0,18%, Al₂O₃ 1,88%, Cr₂O₃ 0,37%, FeO 9,48%, MnO 0,25%, MgO 23,75%, CaO 1,82%, Na₂O 0,83%, K₂O 0,09%, P₂O₅ 0,22%, Fe 16,02%, Ni 1,61%, FeS 5,97% [205].

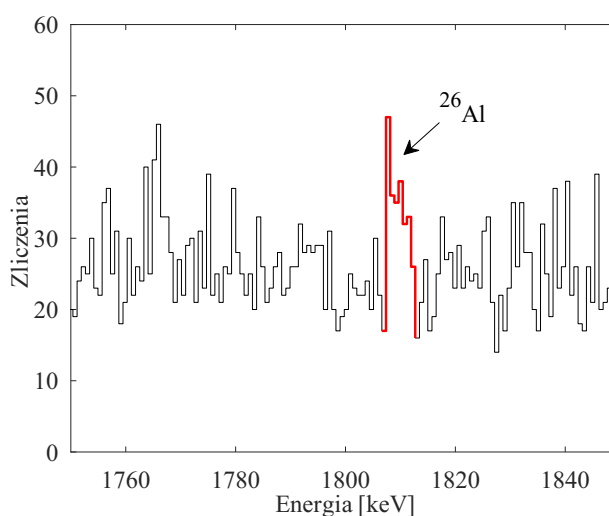
Masa badanego w IFJ PAN okazu meteorytu Pułtusk wynosiła 4,97 g.

9.2 Przeprowadzone badania

Przeprowadzony pomiar gamma-spektrometryczny meteorytu Sikhote-Alin o czasie trwania 429856 s tj. prawie 5 dób, wykazał, iż zastosowana cyfrowa, niskotłowa spektrometria promieniowania gamma, wciąż jest metodą niewystarczająco czułą dla ww. obiektu badawczego, gdyż uzyskane liczby zliczeń, w pikach fotoelektrycznych zarówno izotopów pierwotnych jak i izotopów mogących powstać w wyniku procesu aktywacji w przestrzeni kosmicznej, nie pozwoliłyby na wyznaczenie aktywności powyżej osiągniętych za pomocą stosowanego spektrometru limitów detekcji. W związku z tym zaniechano kontynuowania procedury badawczej czyli przygotowania wzorca i przeprowadzenia kalibracji wydajnościowej.

Niemniej jednak, analogiczny pomiar wykonano dla okazji meteorytu Pułtusk (czas trwania pomiaru 525038 s, tj. ponad 6 dni). W jego wyniku możliwym było zidentyfikowanie linii widmowej o energii 1460 keV (^{40}K) oraz linii 1809 keV emitowanej przez izotop kosmogeniczny ^{26}Al ($T_{1/2} = 717000$ lat). Ze względu na czas jaki upłynął od upadku meteorytu do jego pomiaru, izotopy krótkożyciowe, występujące w materiałach meteorytowych (jak ^{22}Na czy ^{60}Co), uległy rozpadowi i ich detekcja nie była możliwa.

W celu poprawy statystyki i zwiększenia liczby zliczeń w interesujących foto-pikach, pomiar powtórzono (drugi pomiar trwał 429064 s), a uzyskane widma energetyczne zsumowano i poddano analizie ilościowej. Rysunek 9.2 przedstawia fragment widma promieniowania gamma emitowanego przez badany okaz, zawierający foto-pik ^{26}Al , którego liczba zliczeń netto wyniosła 105(21).



Rysunek 9.2 Fragment widma promieniowania gamma meteorytu Pułtusk zawierający foto-pik ^{26}Al

9.2.1 Kalibracja wydajnościowa

W celu ilościowego oznaczenia stężenia aktywności izotopów ^{26}Al i ^{40}K w badanym okazie meteorytu Pułtusk, koniecznym było wyznaczenie wydajności spektrometru promieniowania gamma dla możliwie najbardziej zbliżonej geometrii pomiarowej. W związku z tym, wykonano wzorzec mający kształt odzwierciedlający posiadany fragment meteorytu (Rysunek 9.3) według następujących kroków:

- okaz meteorytu owinięty cienką ($23 \mu\text{m}$) folią StretchNorflex, umieszczony w sześciennym pojemniku o wymiarach 29 mm x 29 mm x 25 mm, zalano silikonem i pozostawiono do stężenia,

- z przygotowanej formy wyjęto meteoryt,
- ścianki formy pokryto cienką warstwą żywicy epoksydowej, a do otworu wsypano materiał referencyjny zawierający izotopy naturalnych szeregów promieniotwórczych: uranowego-radowego i torowego o masie 1,31 g.
- dodano kolejną porcję żywicy epoksydowej, całość dokładnie wymieszano i pozostawiono do związania,
- przygotowany wzorec wyjęto z silikonowej formy i zabezpieczono folią StretchNorflex.

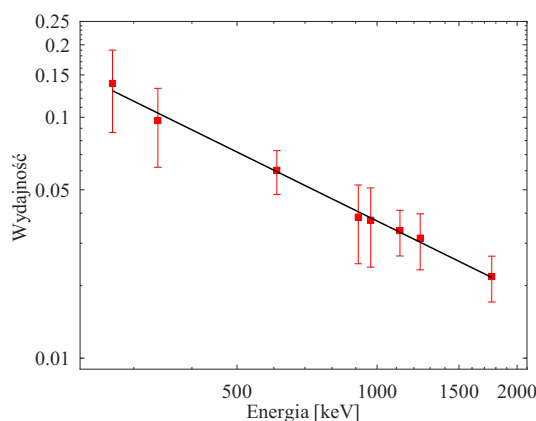
Wzorec został poddany pomiarowi gamma - spektrometrycznemu o czasie trwania 255085 s. Na podstawie analizy otrzymanego widma energetycznego wzorca, wyznaczono wydajność spektrometru dla geometrii meteorytu w oparciu o znane stężenia aktywności znajdujących się w nim izotopów. W tym celu wykorzystano linie widmowe ^{228}Ac (270 keV, 338 keV, 911 keV, 969 keV, stężenie aktywności 0,33(13) Bq/g) oraz ^{214}Bi (609 keV, 1120 keV, 1238 keV, 1765 keV, stężenie aktywności 0,29(8) Bq/g). Po uwzględnieniu poprawek na koincydencyjne sumowanie, które wyniosły maksymalnie 20% (wyznaczone za pomocą programu EFFTRAN), do otrzymanych punktów dopasowano prostą o równaniu $\log(\varepsilon) = -0,951(25) \cdot \log(E_\gamma) + 3,276(178)$, przedstawioną na Rysunku 9.4. Niepewność wydajności odpowiadająca danej linii widmowej, uwzględnia niepewność liczby zliczeń w foto-piku, niepewność wyznaczenia masy wzorca (0,01 g), niepewność aktywności referencyjnej oraz 5-cio procentowy wkład od czynników takich jak niejednorodność wzorca oraz różnica w geometrii pomiaru wzorca i próbki.

9.2.2 Wyniki pomiarów

Wykorzystując otrzymane równanie, wyznaczono stężenia aktywności izotopów ^{26}Al i ^{40}K . Ponadto, zakładając istnienie równowagi promieniotwórczej izotopów szeregów promieniotwórczych obecnych w meteorycie wyznaczono stężenia aktywności ^{226}Ra (jako średnia



Rysunek 9.3 Wzorec meteorytu Pułtusk



Rysunek 9.4 Wydajność spektrometru dla wzorca meteorytu Pułtusk wyznaczona na podstawie pomiaru przygotowanego wzorca. Do wyznaczonych punktów dopasowano prostą o równaniu $\log(\varepsilon) = -0,951(25) \cdot \log(E_\gamma) + 3,276(178)$

arytmetyczna stężenie ^{214}Pb (352 keV) i ^{214}Bi (609 keV) i ^{228}Ra (^{228}Ac (911 keV) i ^{208}Tl (583 keV)).

Tabela 9.1 Stężenie aktywności izotopów ^{26}Al i ^{40}K oraz poziomy MDC dla ^{226}Ra i ^{228}Ra w okazie meteorytu Pułtusk, wyznaczone dla linii widmowych o energiach podanych w nawiasach

Izotop	C [dpm/kg] / [Bq/kg]	MDC [dpm/kg] / [Bq/kg]
^{26}Al	63(19) / 1,1(3)	38 / 0,6
^{40}K	1540(400) / 26(6)	665 / 11
^{226}Ra	<MDC	96 / 1,6 (352 keV)
^{228}Ra	<MDC	168 / 2,8 (583 keV)

W rachunku niepewności stężeń aktywności, oprócz niepewności liczby zliczeń w danym pikie fotoelektrycznym, uwzględniono niepewności wyznaczenia masy meteorytu (0,01 g), niepewność czasu pomiaru (1 s) oraz niepewność wyznaczenia wydajności (na podstawie niepewności wyznaczenia parametrów równania prostej wydajności). Otrzymane wyniki przedstawia Tabela 9.1. Z racji znikomych aktywności izotopów promieniotwórczych obecnych w meteorytach, w literaturze przedmiotu wyniki podawane są w liczbie rozpadów na minutę (dpm). W Tabeli 9.1 przedstawiono wyniki zarówno w takiej jednostce, jaki i w bekerelach, jako jednostce układu SI.

^{26}Al

Długożyciowy izotop kosmogeniczny ^{26}Al ($T_{1/2} = 7,17 \cdot 10^5$ lat) powstaje w wyniku oddziaływań promieniowania kosmicznego z materią meteoroidu w czasie jego obecności w przestrzeni kosmicznej. Symulacje metodami Monte Carlo przeprowadzone w pracy Leya et al. [130] wykazały, iż tempo produkcji izotopów w meteorytach zależy od głębokości ich penetracji przez strumień cząstek promieniowania kosmicznego, abundancji izotopów tarczowych, energii promieniowania oraz rozmiarów samych meteorytów. W przypadku ^{26}Al , najwyższe tempo produkcji uzyskiwane jest na głębokościach ok. 30 - 40 cm [130], więc pierwotne rozmiary meteoroidu muszą być wystarczające, aby kaskady cząstek wtórych (głównie nukleonów i pionów) nie wy dostały się z ich objętości [169]. Najbardziej prawdopodobne reakcje, prowadzące do generacji ^{26}Al są następujące [169]:

- $^{27}\text{Al}(p,pn)^{26}\text{Al}$,
- $^{27}\text{Al}(n,2n)^{26}\text{Al}$,
- $^{28}\text{Si}(p,2pn)^{26}\text{Al}$,
- $^{28}\text{Si}(n,p2n)^{26}\text{Al}$.

Uzyskane stężenie aktywności ^{26}Al na poziomie 63(19) dpm/kg (co odpowiada stężeniu 1,1(3) Bq/kg) jest w zgodzie z wartościami podawanymi przez innych autorów dla okazów meteorytu Pułtusk, jak również innych meteorytów skalnych, których zestawienie przestawia Tabela 9.2. Należy zwrócić uwagę, iż w przypadku cytowanych prac, masy badanych próbek zawierały się w przedziale od 10 g do ponad 4 kg, przy czym najczęściej

Tabela 9.2 Zestawienie stężenia aktywności ^{26}Al w meteorytach skalnych

Praca	Technika pomiarowa	Próbki	Zakres mas [g]	Stężenie aktywności ^{26}Al [dpm/kg]
Tymiński et al. (2017) [201]	Spektrometria prom. γ detektor HPGe	7 fragmentów meteorytu Pułtusk	66 - 600	45 - 60(14-26%)
Cameron et al. (1974) [29]	Koincydencja γ - γ detektor NaI(Tl)	Fragment meteorytu Pułtusk	324	51(2)
		30 fragmentów meteorytów skalnych	97 - 593	61(13)*
Fuse et al. (1969) [62]	Koincydencja γ - γ detektor NaI(Tl)	26 fragmentów meteorytów skalnych	10 - 100	70(22)*
Rowe et al. (1963) [175]	Spektrometria prom. γ detektor NaI(Tl)	25 fragmentów meteorytów skalnych	96 - 4400	46(9)*
Laubenstein et al. (2012) [127]	Spektrometria prom. γ detektor HPGe ^a	Fragment meteorytu Sołtmany (1)	155	50(4)
	Spektrometria prom. γ detektor HPGe ^b	Fragment meteorytu Sołtmany (2)	120	52(6)
Weber et al. (2017) [207]	Spektrometria prom. γ detektor HPGe	30 fragmentów meteorytów skalnych	10 - 1013	53(9)*

* wartość średnia i odchylenie standardowe

^a laboratorium podziemne (LNGS)

^b laboratorium naziemne (IFJ PAN)

masy te wynosiły kilkaset gramów. Pozwala to zauważyć, iż skonstruowany spektrometr umożliwia uzyskiwanie poprawnych wyników przy redukcji masy badanej próbki nawet o dwa rzędy wielkości.

Stężenie aktywności izotopu ^{26}Al wyznaczone w okazie danego meteorytu może zostać wykorzystane do określenia czasu ekspozycji meteoroidu na promieniowanie kosmiczne, przy czym w obliczeniach brana jest pod uwagę zarówno składowa galaktyczna jak i słoneczna promieniowania kosmicznego. Wykorzystanie ^{26}Al ma również tę zaletę, że ze względu na długi okres połowicznego zaniku, jego tempo produkcji jest nie czułe na krótkotrwałe zmiany natężenia strumienia cząstek promieniowania kosmicznego [130, 169].

W pracy Weber et al. [207] wyznaczono uśrednioną wartość stężenia aktywności ^{26}Al w funkcji promienia meteorytu, bazując na modelu szacowania tempa produkcji izotopów w materii meteorytowej zaproponowanym w pracy Leya et al. [130]. Wykorzystując otrzymane stężenie ^{26}Al (63(19) dpm/kg) można oszacować, iż promień meteorytu Pułtusk wynosił ok. 0,75 m, co przy założeniu gęstości meteorytu skalnego na poziomie 3,3 t/m³ [207] pozwala oszacować jego masę na poziomie 6 t (przy założeniu sferycznego kształtu). Wynik ten jest zaniżony biorąc pod uwagę znaną całkowitą masę meteorytów z danego spadku dla meteorytu Pułtusk na poziomie 8,8 t oraz przy założeniu straty masy podczas przechodzenia przez atmosferę na poziomie 50-80% [207]. Spowodowane to może być stosunkowo dużą niepewnością pomiaru, warunkowaną niewielką masą obiektu lub umiejscowieniem badanego okazu w meteoroidzie zwiększającym jego ekspozycję na promieniowanie kosmiczne co nie pozwala traktować otrzymanego wyniku jako reprezentatywnego dla całego meteoroidu. Przeprowadzając powyższe szacunki dla danych uzyskanych w pracy Cameron et al. [29] (które w granicy niepewności są zgod-

nie z otrzymanymi w niniejszej pracy), szacowany promień meteorytu Pułtusk wynosi ok. 1,2 m co odpowiada pierwotnej masie obiektu na poziomie 24 t. Ponownie, przy założeniu straty masy przy przechodzeniu przez atmosferę na poziomie 50-80% otrzymana masa jest zgodna ze znaną całkowitą masą meteorytów dla meteorytu Pułtusk. Powyższe wyniki należy traktować jako szacunkowe obliczenia, obarczone dużymi niepewnościami i stanowiącymi jedynie wstęp do kampanii pomiarowej mającej na celu wyznaczenie koncentracji ^{26}Al w kolejnych okazach meteorytów prowadzącej do określenia ich czasu ekspozycji na promieniowanie kosmiczne.

W przypadku meteorytu Sikhote-Alin stężenie aktywności ^{26}Al szacowane jest na poziomie 0,8(4) dpm/kg [132], natomiast dla innych meteorytów żelaznych średnia wartość koncentracji tego izotopu wynosi 2,1(12) dpm/kg [132, 207]. Stężenia te są prawie dwa rzędy wielkości mniejsze niż dla meteorytów skalnych i przy masie posiadanego fragmentu meteorytu Sikhote-Alin niemożliwe do wyznaczenia za pomocą stosowanej aparatury gamma - spektrometrycznej. Przyjmując wartość MDC wyznaczoną dla meteorytu Pułtusk (38 dpm/kg), w celu oszacowania koncentracji ^{26}Al w meteorycie żelaznym, konieczne jest posiadanie próbki o masie ok. 100 g.

^{40}K

Stężenie ^{40}K w badanym egzemplarzu meteorytu Pułtusk wyniosło 1540(400) dpm/kg (26(6) Bq/kg), co również jest w zgodzie z wynikami otrzymanymi w pracy Weber et al. (2017) - 1470(240) dpm/kg [207]. Jest to kolejne potwierdzenie, iż zastosowana technika pomiarowa (włączając metodę kalibracji) jest poprawna i została właściwie zwalidowana.

^{226}Ra i ^{228}Ra

W przypadku izotopów ^{226}Ra i ^{228}Ra , zastosowana metoda pomiarowa pozwoliła na wyznaczenie limitów detekcji odpowiednio na poziomie 96 dpm/kg (1,6 Bq/kg, wartość MDC dla linii widmowej 352 keV) i 168 dpm/kg (2,8 Bq/kg, wartość MDC dla linii widmowej 583 keV).

Zakładając istnienie odpowiednich równowag promieniotwórczych w szeregach uranowym i torowym, w pracy Weber et al. (2017) [207] wyznaczono stężenie ^{238}U oraz ^{232}Th w 30 próbkach chondrytów. Koncentrację ^{238}U wyznaczono na dwa sposoby - jako średnie stężenie ^{214}Bi i ^{214}Pb (oznaczone jako $^{238}\text{U}_{eq}(214)$, analogicznie do sposobu wyznaczania stężenia ^{226}Ra przyjętego w niniejszej rozprawie) oraz wykorzystując linię 185,7 keV ^{226}Ra i zakładając równowagę między ^{226}Ra i ^{238}U (oznaczenie $^{238}\text{U}_{eq}(226)$). Wartości średnie wyznaczone na podstawie otrzymanych wyników to odpowiednio 24,8(3) oraz 37,2(10) dmp/kg dla $^{238}\text{U}_{eq}(214)$ oraz $^{238}\text{U}_{eq}(226)$. Według autorów pracy, mniejsza wartość $^{238}\text{U}_{eq}(214)$ w porównaniu z $^{238}\text{U}_{eq}(226)$ może wskazywać na emanację radonu, jak również dyfuzję ^{226}Ra z gleby do meteorytów [207]. Do oszacowania stężenia ^{232}Th , wykorzystano linie widmowe ^{212}Pb , ^{228}Ac oraz ^{208}Tl , zakładając równowagę promieniotwórczą (oznaczenie w pracy $^{232}\text{Th}_{eq}$). Wartość średnia uzyskana na podstawie pomiarów to 12,4(2) dpm/kg. Można zauważyć, że wyniki przedstawione w literaturze przedmiotu wskazują na koncentracje rozpatrywanych izotopów kilkukrotnie mniejsze w porównaniu do osiągniętych, za pomocą stosowanego spektrometru, minimalnych mierzalnych stężeń

aktywności. Wyniki przedstawione w pracy Weber et al. są konsyistentne z uzyskanymi w pracy Laubenstein et al. (2012) [127], gdzie założono istnienie równowagi promieniotwórczej między ^{226}Ra a ^{238}U oraz między ^{228}Ra , ^{228}Th i ^{232}Th .

Rozdział 10

Badanie zmian rejestrowanego na poziomie gruntu strumienia mionów

W opisywanych dotychczas badaniach, dane rejestrowane przez detektory scyntylacyjne wykorzystywane były do redukcji tła detektora germanowego, czyli scyntylatory pełniły rolę osłony antykoincydencyjnej. Dzięki zastosowaniu w skonstruowanym spektrometrze cyfrowej akwizycji danych oraz przeprowadzaniu analiz danych off-line, dane te mogą zostać wykorzystane ponownie, w celu prowadzenia monitoringu zmian strumienia mionów promieniowania kosmicznego docierającego do powierzchni Ziemi. Wyniki zarówno długo- jak i krótkookresowych ciągłych obserwacji natężenia strumienia mionów, oprócz niskotłowych pomiarów gamma-spektrometrycznych, mogą znaleźć zastosowanie w takich dziedzinach nauki jak astrofizyka czy fizyka atmosfery.

W niniejszym rozdziale zaprezentowane zostaną wyniki analiz danych uzyskanych za pomocą detektorów scyntylacyjnych spektrometru, w okresie od 1 września 2018 r. do 30 kwietnia 2020 r. mających na celu zainicjalizowanie ciągłego monitoringu promieniowania kosmicznego w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej IFJ PAN w Krakowie.

10.1 Dane krótkookresowe

10.1.1 Dane pojedynczych scyntylatorów

W pierwszej kolejności analizie poddane zostały dane zebrane przez detektory scyntylacyjne w trakcie pojedynczego pomiaru gamma-spektrometrycznego. Po jego zakończeniu, akwizycja danych została zatrzymana w celu wymiany próbki poddawanej pomiarowi i/lub uzupełnienia poziomu ciekłego azotu w naczyniu Dewara. Zwykle przerwa ta trwa od ok. 5 do 30 minut, po której rozpoczynany jest kolejny pomiar gamma-spektrometryczny oraz równoległe rejestrowanie cząstek promieniowania kosmicznego przez detektory scyntylacyjne.

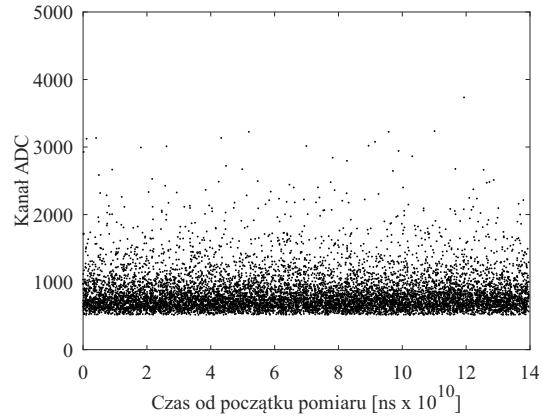
Pliki wyjściowe digitizera, po przeprowadzeniu ich wstępnego przygotowania za pomocą programu VETO (zakładka Prepare Files CoMPASS) zawierają informację o czasie rejestracji impulsu (w nanosekundach) jaki upłynął od rozpoczęcia pomiaru oraz jego energii (wyrażonej w numerze kanału analizatora). Rysunek 10.1 przedstawia energie pierwszych 10000 impulsów zarejestrowanych przez scyntylator TOP w funkcji czasu re-

jestracji. Dane te, będące reprezentacją danych zapisywanych w plikach formatu {.ssv} (czas rejestracji, energia), odpowiadają pierwszemu 139 s pomiaru, który trwał 426721 s ($\approx 118,5$ h) w czasie którego detektor ten zarejestrował 30266834 impulsów. Analogicznie dane przedstawiają się dla pozostałych scyntylatorów dla których przeprowadzana będzie analiza tj. detektorów BOTTOM (7630204 impulsów) oraz FRONT (5730827 impulsów).

Rozkłady liczby impulsów rejestrowanych przez scyntylatory w jednostce czasu powinny odpowiadać rozkładowi Poissona z wartością oczekiwaną λt zależną (dla danego interwału czasowego) przede wszystkim od powierzchni detektora oraz jego usytuowania. Rysunek 10.2 przedstawia rozkłady liczby impulsów rejestrowanych przez detektory TOP, BOTTOM oraz FRONT w czasie 1 s z częstościami λ odpowiednio $\lambda_{TOP} = 71,93$, $\lambda_{BOTTOM} = 18,88$ oraz $\lambda_{FRONT} = 14,43$ zliczeń na sekundę. Zgodnie z informacjami podanymi w rozdziale 4, detektory usytuowane horyzontalnie (TOP i BOTTOM) rejestrują więcej cząstek w jednostce czasu, niż detektor FRONT zamocowany do osłony pasywnej wertykalnie. Linie zielona, ciemnoniebieska oraz czarna przedstawiają dopasowane rozkłady Poissona odpowiednio do danych z detektorów TOP, BOTTOM oraz FRONT, a zgodność rozkładów danych doświadczalnych z wartościami teoretycznymi została potwierdzona za pomocą testu Kołmogorowa-Smirnowa, których p-wartości w każdym z przypadków były powyżej 0,95, co nie pozwala na odrzucenie hipotezy zerowej o zgodności rozkładów danych doświadczalnych z wartościami teoretycznymi. Na podstawie otrzymanych wyników można wyciągnąć wniosek, iż proces rejestracji promieniowania kosmicznego jest stochastycznym procesem Poissona [174] ¹.

Wyznaczone wartości oczekiwane liczby zliczeń potwierdzają, jak wiele danych jest rejestrowanych przez cały system cyfrowej spektrometrii gamma, skonstruowany w ramach niniejszej rozprawy. Fakt ten uzasadnia przeprowadzenie procesu optymalizacji parametrów pracy spektrometru oraz będzie miał duże znaczenie w trakcie dalszych analiz, prowadzących do wyznaczenia zmian natężenia strumienia mionów na przestrzeni prawie dwóch lat.

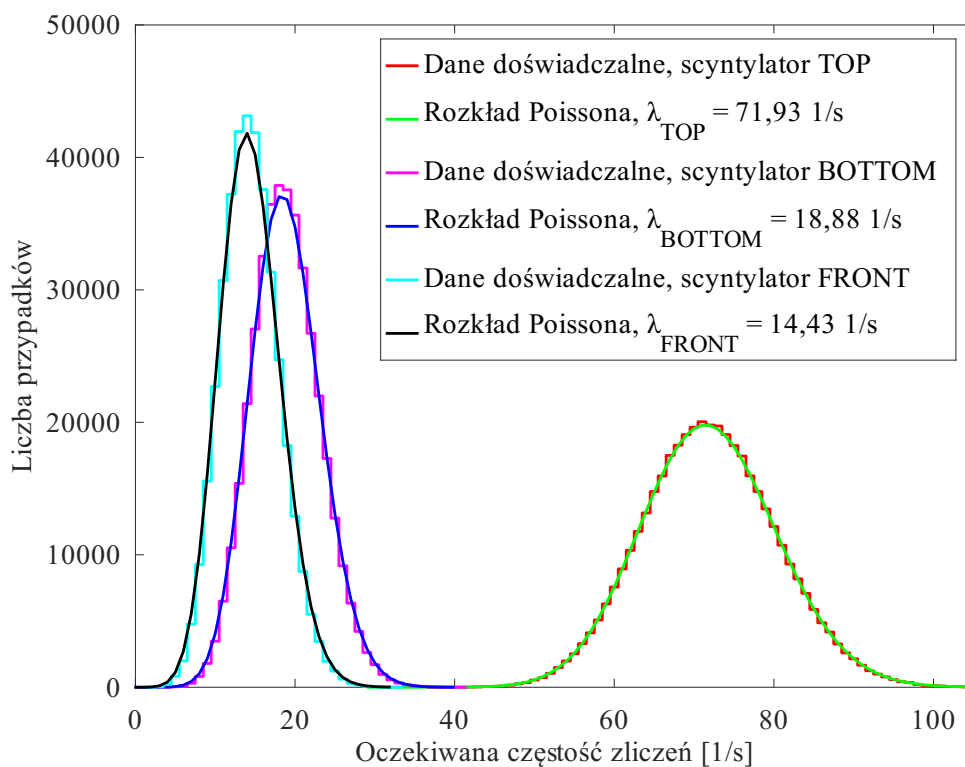
Rozkład interwałów czasowych pomiędzy rejestrowanymi przez rozważane detektory



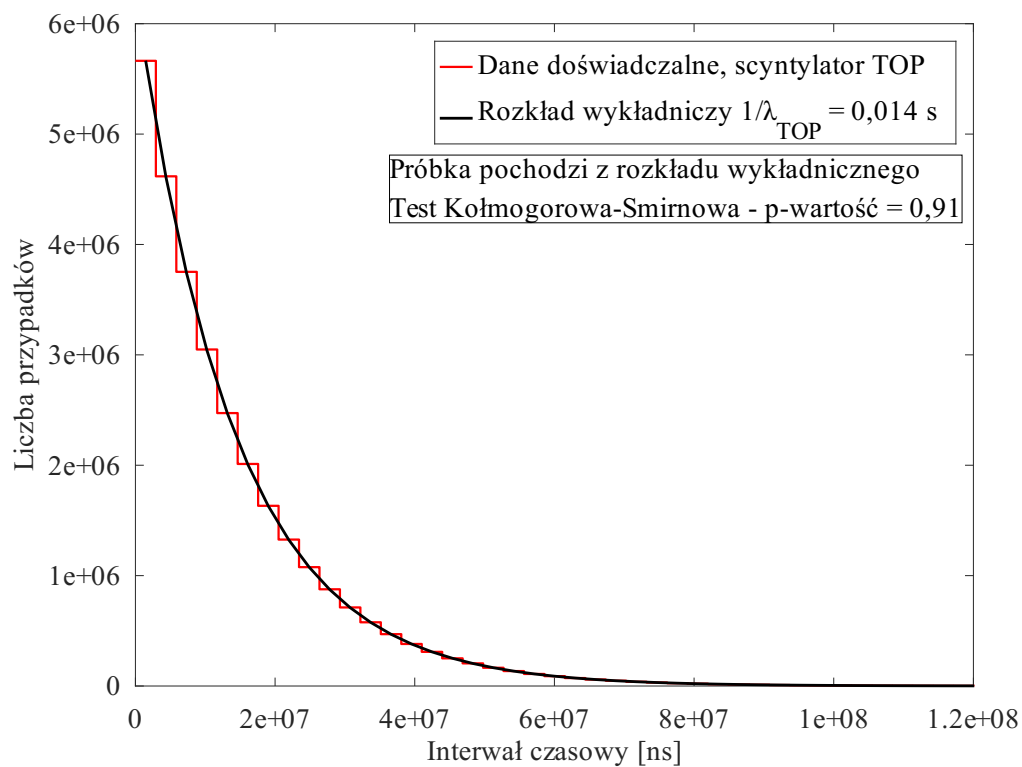
Rysunek 10.1 Dane z pliku wyjściowego digitizera dla scyntylatora TOP. Odpowiadają one 10 000 zarejestrowanych impulsów

¹Proces Poissona jest procesem stochastycznym, gdy:

1. $N(0) = 0$, zliczanie zdarzeń rozpoczyna się w chwili $t = 0$ i ma wartość 0,
2. proces ma niezależne przyrosty,
3. $N(b) - N(a) \sim Poiss(\lambda(b-a))$ - liczba zliczeń w dowolnym interwale czasowym $b - a$ ma rozkład Poissona z wartością oczekiwaną $\lambda(b-a)$



Rysunek 10.2 Oczekiwana częstość zliczeń rejestrowana przez detektory TOP, BOTTOM i FRONT



Rysunek 10.3 Rozkład interwałów czasowych między impulsami rejestrowanymi przez scyntylator TOP

scyntylicyjne mionami (których przypadki rejestracji charakteryzują się procesem Poissona) powinien być rozkładem wykładniczym z wartością oczekiwaną równą $1/\lambda$ [174], charakterystyczną dla danego scyntylicatora. Rysunek 10.3 przedstawia rozkład interwałów czasowych między rejestrowanymi cząstkami promieniowania kosmicznego, dla scyntylicatora TOP oraz dopasowany do tych danych rozkład wykładniczy o parametrze $1/\lambda_{TOP} = 0,014$ s. Podobnie jak wcześniej w celu potwierdzenia zgodności rozkładów, przeprowadzono test Kołmogorowa-Smirnowa, którego p-wartość wyniosła 0,91, więc brak jest przesłanek do odrzucenia hipotezy o zgodności wyżej wymienionych rozkładów. Analizy, przeprowadzone dla pozostałych scyntylicatorów, potwierdziły otrzymane wyniki (nie zamieszczono ich w pracy ze względu na analogiczny charakter wykresów).

Dalsze analizy przeprowadzono w celu weryfikacji obecności zarówno krótko- jak i długo-zasięgowych korelacji w szeregach interwałów czasowych, co mogłoby wskazywać na detekcję sekwencji skorelowanych ze sobą cząstek promieniowania kosmicznego.

W pierwszej kolejności wyznaczono funkcję autokorelacji (korelacji wzajemnych) dla szeregu interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez detektor scyntylicacyjny TOP. Funkcja autokorelacji wyznacza wartość współczynnika korelacji Pearsona $R(k)$ między elementami szeregu czasowego $\{X_t\}$ a elementami tego samego szeregu przesuniętymi o k jednostek czasu $\{X_{t-k}\}$:

$$R(k) = \frac{E[(X_t - \mu_X)(X_{t-k} - \mu_X)]}{\sigma_X^2}, \quad (10.1)$$

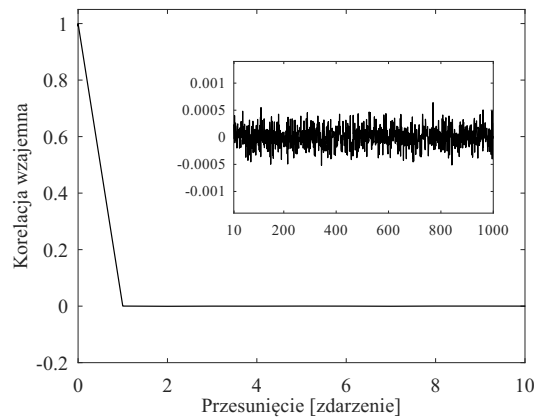
gdzie: X_t - wartość procesu w chwili t ,

μ_X - średnia wartość procesu $\{X_t\}$,

σ_X - wariancja procesu $\{X_t\}$.

Funkcja $R(k)$ zawiera się w przedziale $[-1, 1]$, gdzie 1 wskazuje dokładną korelację, -1 dokładną antykorelację, a 0 brak korelacji między elementami szeregu przesuniętymi w czasie o daną liczbę jednostek czasu. Wyniki analizy przedstawia Rysunek 10.4. W analizowanym przypadku, brak jest krótkozasięgowych autokorelacji szeregu dla przesunięć od 1 do 10 jednostek czasu. W powiększeniu zaprezentowano wartości funkcji autokorelacji dla przesunięć z zakresu od 10 do 1000 jednostek czasu, które oscylują wokół zera potwierdzając brak zależności między elementami szeregu interwałów czasowych danych scyntylicatora TOP. Kolejne analizy szeregów interwałów czasowych pozostałych detektorów pozwoliły na wyciągnięcie analogicznych wniosków (ze względu na podobny charakter krzywych nie umieszczono ich w pracy).

W celu głębszego poznania charakteru szeregów interwałów czasowych między rejestrowanymi przypadkami przeprowadzono analizy mające na celu zbadanie występowania



Rysunek 10.4 Korelacja wzajemna interwałów czasowych sygnału z scyntylicatora TOP. Analiza wykazała, że wartość funkcji korelacji dla zakresu przesunięć od 1 do 1000 zarejestrowanych zdarzeń oscyluje wokół zera, wskazując na brak zależności między elementami szeregu interwałów czasowych

w nich długozasięgowych zależności. W przypadku tego typu korelacji, funkcja autokorelacji maleje zgodnie z prawem potęgowym [104], a bezpośrednio wyznaczenie $R(k)$ może być obciążone błędem ze względu np. na różną wartość średnią ciągu dla odległych jego elementów [104]. Wykładnik skalujący (ang. *scaling exponent*) jest istotnym czynnikiem przy charakteryzacji długo-zasięgowych korelacji. Jeśli własności statystyczne szeregu czasowego są niezależne od skal czasowych jego podszeregów to szereg taki nazywany jest samopodobnym:

$$\{X(t)\} \cong n^a \{X(\frac{t}{n})\}, \quad (10.2)$$

gdzie \cong oznacza takie same własności statyczne, a to parametr skalujący a n to długość podszeregu [65, 75].

W celu wyznaczenia korelacji długozasięgowych w analizowanych danych wykorzystano metodę DFA (ang. *Detrended Fluctuation Analysis*) wprowadzoną przez Peng et al. (1994) [166] na potrzeby analizy struktur sekwencji DNA. Aby poprawnie wykryć długozasięgowe korelacje, istotnym jest wyznaczenie trendów obecnych w analizowanych danych, spowodowanych czynnikami zewnętrznymi (np. systematyczny wzrost temperatury lub jej sezonowe wahania), które przeważnie mają charakter gładkich, monotonicznych zmian lub wolno-oscylujących wahań. Istnienie silnych trendów może prowadzić do fałszywych detekcji korelacji długozasięgowych. Zaletą metody DFA jest eliminacja trendów obecnych w danych wejściowych [104]. Ponadto, metoda DFA może zostać zastosowana do sygnałów niestacjonarnych czyli takich, których wartość średnia, wariancja oraz funkcja autokorelacji zmieniają się z czasem. Poszczególne kroki tej metody są następujące [104, 166, 209]:

1. szereg $\{X_t\}$ o długości L należy podzielić na d rozdzielnych podszeregów o długości (skali) n ,
2. dla każdego podszeregu $m = 1, \dots, d$:
 - (a) wyznaczyć skumulowane szeregi $Y_{i,m} = \sum_{j=1}^i X_{j,m}$,
 - (b) dopasować metodą najmniejszych kwadratów prostą $\tilde{Y}_m(x) = a_m x + b_m$ do danych $Y_{1,m}, \dots, Y_{n,m}$, co pozwala wyznaczyć trendy obecne w podszeregach o danej długości (w analizie przyjęto liniową postać trendów),
 - (c) obliczyć odchylenie standardowe fluktuacji:

$$F(m) = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (Y_{i,m} - a_m i - b_m)^2}, \quad (10.3)$$

3. obliczyć średnią wartość fluktuacji dla wszystkich podszeregów o długości n :

$$\bar{F}(n) = \frac{1}{n} \sum_{m=1}^d F(m), \quad (10.4)$$

4. wykreślenie wartości $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n w skali logarytmiczno-logarytmicznej i dopasowanie do otrzymanych punktów linii prostej, która reprezentuje samopodobieństwo wyrażone jako $\bar{F}(n) \propto n^a$. Wykładnik a jest wtedy współczynnikiem kierunkowym dopasowanej prostej.

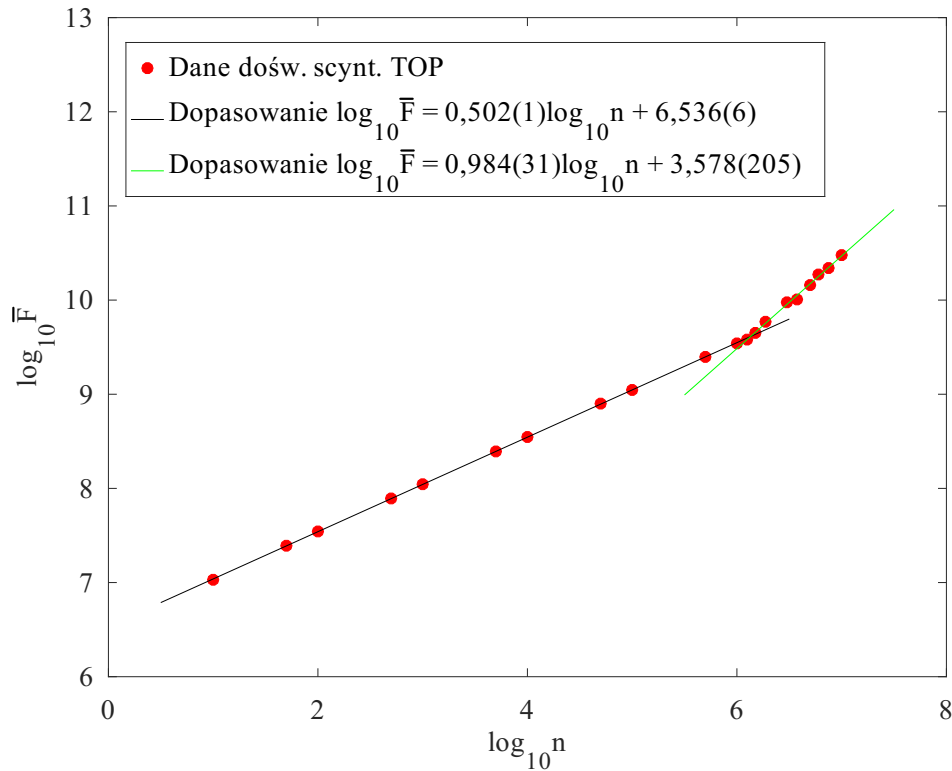
W przypadku procesów stacjonarnych, wykładnik skalujący a odpowiada tzw. wykładnikowi Hursta H [137] reprezentującemu długozasięgowe korelacje w szeregu czasowym. Jeśli rozpatrywany szereg jest szumem białym (dane nie są skorelowane lub istnieją jedynie krótkozasięgowe korelacje), współczynnik nachylenia a wyznaczonej prostej jest równy ok. 0,5. Jeżeli proces jest persystentny, czyli występują w nim korelacje długozasięgowe, $0,5 < a < 1$ co oznacza, że w przypadku wystąpienia dużych (małych) wartości w szeregu będą po nich następowały kolejne duże (małe) wartości. Z kolei, jeśli $0 < a < 0,5$ szereg jest antypersystentny, co oznacza, że występują antykorelacje w danych i wartości szeregu następujące po sobie, będą się zmieniać w szerokim zakresie [209]. W przypadku procesów niestacjonarnych, wykładnik skalujący $a > 1$, w szczególności jeśli $a = 1$ oraz $a = 1,5$, sygnał interpretowany jest jako szum różowy ($1/f$) lub błędzenie losowe (szum Browna, $1/f^2$) [106, 151]. Z kolei wykładnik Hursta wyznaczany jest jako $H = a - 1$ [75, 151].

W rzeczywistych szeregach czasowych, wykładnik skalujący a nie zawsze poprawnie opisuje korelacje występujące w sygnale dla całego zakresu skal n [65, 106]. Oznacza to, iż korelacje charakteryzują się innymi wykładnikami prawa potęgowanego (patrz równanie 10.2). Dzięki metodzie DFA można wyznaczyć skale czasowe dla których występują punkty przegięcia [104]. W przypadku dwóch różnych wartości a , wprowadzone zostały pojęcia krótkozasięgowego wykładnika skalującego (ang. *short-range scaling exponent*) a_1 oraz długozasięgowego wykładnika skalującego (ang. *long-range scaling exponent*) a_2 .

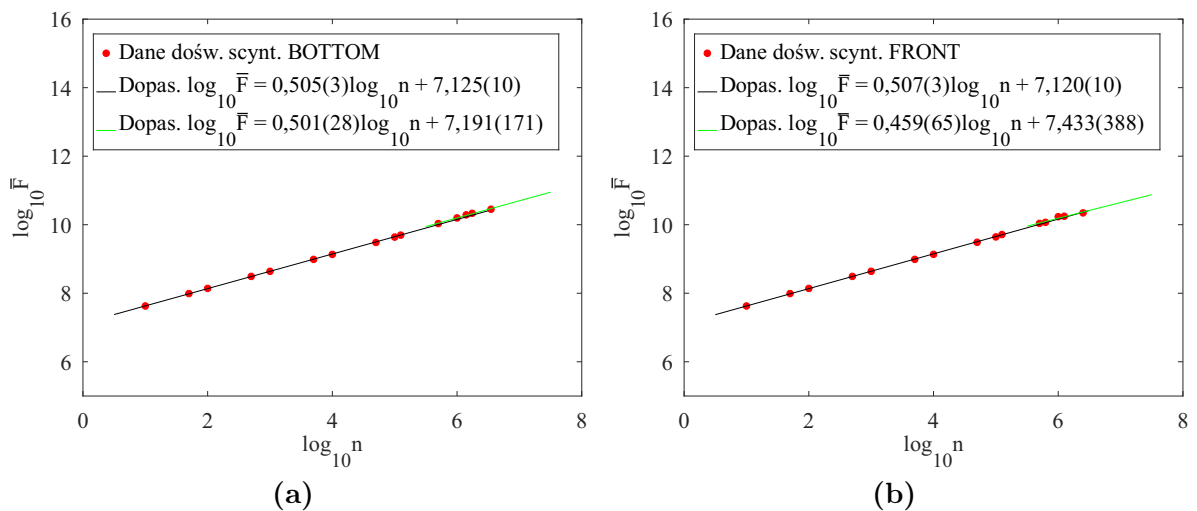
Rysunek 10.5 przedstawia wyniki analizy korelacji długozasięgowych w szeregu interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez scyntylator TOP, przeprowadzonych metodą DFA. W celu umożliwienia podziału szeregu wejściowego na podszeregi o wielu, różnych długościach (czyli znalezieniu dzielników jego długości), skrócono go do długości $30 \cdot 10^6$. Skale czasowe wybrano w zakresie od 10 do $10 \cdot 10^6$ rekordów. Na podstawie otrzymanych danych można zauważyć, iż parametr skalujący nie jest stały (zmienia się nachylenie dopasowanych prostych). W związku z czym do danych dopasowano dwie proste: pierwszą (linia czarna) dla skal poniżej 1500000 , o równaniu $\log_{10} \bar{F} = 0,502(1) \log_{10} n + 6,536(6)$ oraz drugą (linia zielona) dla skal powyżej $1,5 \cdot 10^6$ rekordów o równaniu $\log_{10} \bar{F} = 0,984(31) \log_{10} n + 3,578(205)$. Wartość współczynnika kierunkowego czarnej prostej wskazuje, iż sygnał dla krótszych długości podszeregów ma charakter szumu białego. Punkt przecięcia prostych odpowiadania czynnikiemowi skali $n = 10^{6,13} = 1350194$, co przy średniej częstotliwości rejestracji mionów przez detektor TOP wynoszącej $\lambda_{TOP} = 71,93$ zliczeń na sekundę, odpowiada 18771 impulsom rejestrowanym średnio w czasie 5,21 h. Punkt przecięcia oraz wzrost wartości parametru a wskazuje, że w sygnale obecna jest periodyczność intensywności strumienia cząstek promieniowania kosmicznego związana prawdopodobnie z jego dobowymi zmianami [131], a tym samym, dla takich skal szereg staje się niestacjonarny. Należy jednak zauważyć, iż dla najdłuższych skal czasowych, wyznaczanych jest jedynie kilka podszeregów szeregu wejściowego, co powoduje iż funkcja fluktuacji obliczana jest jedynie na podstawie kilku obserwacji.

Analogicznie do powyższej analizy, oszacowano obecność korelacji długozasięgowych w szeregach interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez scyntylatory BOTTOM oraz FRONT. Rysunek 10.6 przedstawia otrzymane wyniki.

Podobnie jak wcześniej, dane wejściowe skrócono do pełnych wielokrotności 10^6 impul-



Rysunek 10.5 Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n (skal) dla szeregu interwałów czasowych danych z scyntyлятора TOP. Dane doświadczalne to wartości $\bar{F}(n)$ wyznaczone za pomocą metody DFA dla skal o długościach od 10 do 10^7 rekordów. Na podstawie otrzymanych danych można zauważyć, iż parametr skalujący zmienia swoją wartość (zmienia się nachylenie dopasowanych prostych). W związku z czym do danych dopasowano dwie proste: pierwszą (linia czarna) dla skal poniżej $1,5 \cdot 10^6$, gdzie parametr a przyjmuje wartość 0,502(1) oraz drugą (linia zielona) dla skal powyżej $1,5 \cdot 10^6$ rekordów o współczynniku kierunkowym 0,984(31).



Rysunek 10.6 Wyniki analizy DFA interwałów czasowych detektora BOTTOM (a) oraz FRONT (b)

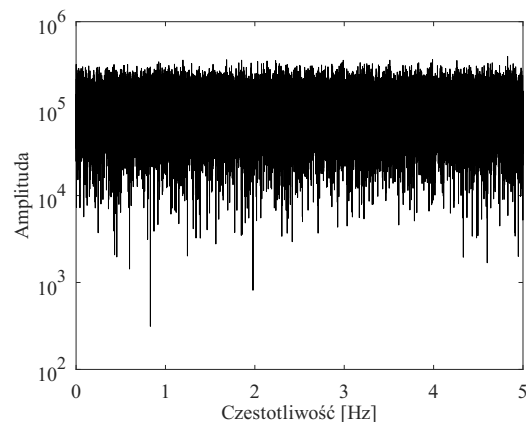
sów czyli do $7 \cdot 10^6$ oraz $5 \cdot 10^6$ rekordów odpowiednio dla detektora BOTTOM i FRONT. W odróżnieniu od detektora scyntyacyjnego TOP, nie zaobserwowano zmiany wartości parametru skalującego. Jest to najprawdopodobniej spowodowane mniejszą powierzch-

nią tych detektorów (a w przypadku scyntylatora FRONT dodatkowo jego wertykalnym usytuowaniem), przez co rejestrują one mniej cząstek promieniowania kosmicznego, co w konsekwencji nie pozwala, dla tak krótkiego czasu akwizycji, na zauważenie występowania samopodobieństwa szeregów czasowych strumienia mionów. Ze względu na zbliżone współczynniki kierunkowe dopasowanych prostych, nie wyznaczono odpowiadających im punktów przecięcia.

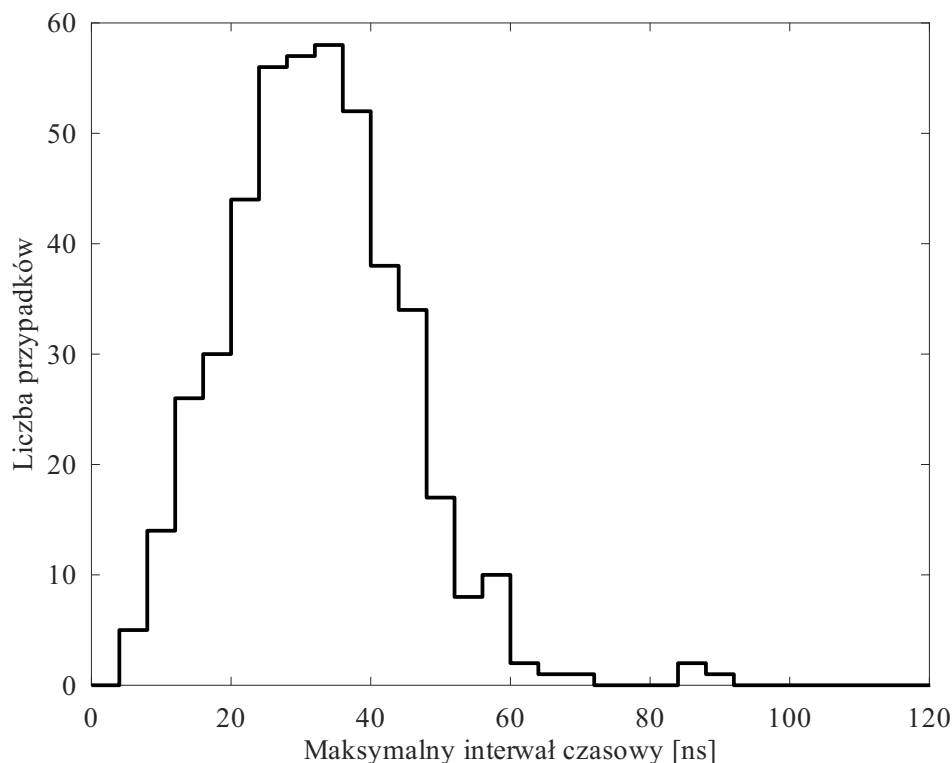
Kolejnym krokiem przeprowadzanej analizy danych zebranych z pojedynczych scyntylatorów w trakcie pojedynczego pomiaru spektrometrycznego była analiza częstotliwościowa z zastosowaniem szybkiej transformacji Fouriera (ang. *Fast Fourier Transform - FFT*), będącej algorytmem służącym do wyznaczania dyskretnej transformaty Fouriera (ang. *Discrete Fourier Transform - DFT*), której wynikiem jest widmo amplitudowe sygnału w dziedzinie częstotliwości.

Celem określenia obecności struktur periodycznych w badanych danych, analizie poddano szereg interwałów czasowych między kolejnymi impulsami. Przed przystąpieniem do analizy, w celu wybrania częstości próbkowania sygnału, dodawano kolejne interwały czasowe, tak aby ich suma wynosiła 0,1 s, czyli częstość próbkowania była równa 10 Hz. Następnie od danych tak powstałego szeregu, odjęto jego wartość średnią w celu redukcji składowej stałej sygnału. Ponadto, usunięto trendy liniowe, choć ze względu na stosunkowo krótki czas pomiaru (w porównaniu do efektów, które mogłyby wprowadzić stałe odchylenia, takie jak sezonowe zmiany warunków atmosferycznych czy zmiany wzmocnienia analizatora), nie wpłynęło to na ostateczny wynik transformacji.

Rysunek 10.7 przedstawia wyniki analizy częstotliwościowej FFT sum interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez scyntylator TOP o długości 0,1 s (dla pozostałych scyntylatorów widma są analogiczne, stąd nie zamieszczono ich w pracy). Płaska charakterystyka widmowa szeregu potwierdza wcześniejsze wyniki analiz, iż dane generowane przez pojedynczy detektor w trakcie trwania pojedynczego pomiaru gamma-spektrometrycznego stanowią sygnał odpowiadający szumowi białemu. Na tej podstawie można również wyciągnąć wniosek, iż rozdzielczość czasowa z jaką rejestrowane są cząstki promieniowania kosmicznego nie pozwala na wykrycie, za pomocą poszczególnych scyntylatorów, przypadków skorelowanych ze sobą mionów np. pochodzących z tych samych pęków atmosferycznych. Rozdzielczość czasową skonstruowanego spektrometru definiują głównie: czas narastania trapezu oraz długość jego płaskiej części. Ze względu na charakter głównego celu skonstruowanej osłony aktywnej (detekcja mionów), wymagający poprawnej ewaluacji wysokości impulsów, całkowity czas kształtowania trapezu wynosi ok. 12 μ s i jest



Rysunek 10.7 Widmo częstotliwościowe kolejnych sum interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez scyntylator TOP o długości 0,1 s. Można zauważyć brak składowych periodycznych



Rysunek 10.8 Histogram przypadków koincydencyjnych impulsów zarejestrowanych przez detektory TOP, BOTTOM, FRONT i REAR. Układ koincydencyjny w czasie 426721 s zarejestrował 471 przypadki czterokrotnych koincydencji impulsów

wiekszy niż różnice czasowe między skorelowanymi ze sobą cząstkami promieniowania kosmicznego. Niemniej jednak, w przypadku ewentualnej rezygnacji z dokładnego wyznaczenia wysokości danego sygnału, można zmniejszyć czas kształtowania odpowiadającego mu trapezu, tym samym, zwiększając czasową zdolność rozdzielczą rejestracji cząstek.

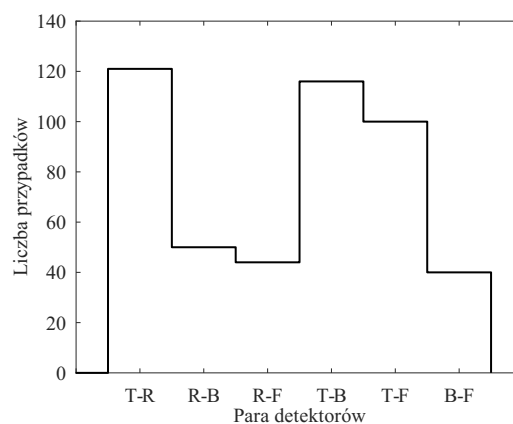
10.1.2 Przypadki koincydencji impulsów ze scyntylatorów

Do kolejnej analizy danych generowanych przez scyntylatory w trakcie pojedynczego pomiaru gamma-spektrometrycznego, dodano plik wynikowy digitizera dla detektora REAR (o długości 5527090 rekordów). Wykorzystując programu VETO (zakładka Free Coincidence) przygotowano pliki w formacie `{.ssv}` detektorów TOP, BOTTOM, FRONT i REAR zawierające dane (czas rejestracji, energia) przypadków koincydencji czterokrotnych między tymi detektorami w trakcie trwania rozważanego pomiaru (o długości 426721 s). W analizie nie uwzględniono detektora SIDE, ze względu na fakt, iż jest to jedyny scyntylator, który nie ma odpowiadającego mu detektora po przeciwnej stronie osłony pasywnej.

Układ koincydencyjny składający się z wyżej wymienionych scyntylatorów, zarejestrował 471 przypadki czterokrotnych koincydencji impulsów, których rozkład, w funkcji maksymalnego interwału czasowego między impulsami dla danego przypadku koincydencji, przedstawia Rysunek 10.8. Dzięki niewspółliniowemu układowi geometrycznemu wybranych scyntylatorów, można stwierdzić, iż zarejestrowane przypadki koincydencji

pochodzą od cząstek z jednego pęku atmosferycznego. Kolejnym dowodem jest fakt, iż szerokość rozkładu porównywalna jest z rozdzielczością czasową stosowanego do akwizycji danych analizatora oraz z czasem potrzebnym mionom (poruszającym się z szybkościami zbliżonymi do szybkości światła) na pokonanie odległości dzielącej scyntylatory.

Ze względu na rozmiary stosowanych detektorów scyntylacyjnych, określenie kierunku ruchu rejestrowanych mionów jest niezmiernie trudne (nie był to też cel skonstruowanego spektrometru). Nie mniej jednak, na podstawie danych służących do przygotowania Rysunku 10.8 wykreślono rozkład par detektorów między którymi zarejestrowano maksymalny interwał czasowy poszczególnych przypadków koincydencyjnych. Otrzymane wyniki przedstawia Rysunek 10.9. Można zauważyć, iż zgodnie z oczekiwaniami, najwięcej przypadków rejestrowanych pęków nadchodzi z kierunku zbliżonego do pionowego (para T-B) oraz z kierunków ukośnych (T-R, T-F). Pozostałe przypadki (R-B, R-F oraz B-F), stanowiące ok. 28% wszystkich koincydencji czterokrotnych mogą pochodzić od cząstek poruszanych się wzdłuż kierunków horyzontalnych.



Rysunek 10.9 Pary detektorów scyntylacyjnych z maksymalnymi interwałami czasowymi pomiędzy impulsami, F - FRONT, T - TOP, R - REAR, B - BOTTOM

10.2 Dane długookresowe

Dane długookresowe zbierane były w okresie od 1 września 2018 r. do 30 kwietnia 2020 r. W tym czasie zostało przeprowadzonych 256 pomiarów gamma-spektrometrycznych, w wyniku których wygenerowanych zostało 1280 plików wyjściowych dla detektorów scyntylacyjnych (w formacie {.csv}) o łącznym rozmiarze ponad 270 GB. Dane scyntylatorów TOP, BOTTOM oraz FRONT zostaną wykorzystane do przeprowadzenia analizy długookresowych zmian intensywności strumienia mionów na rejestrowanego poziomie gruntu.

10.2.1 Wstępne przygotowanie danych

Ze względu na długi okres podczas którego gromadzone były dane, poszczególne pliki wyjściowe digitizera mogą charakteryzować się zmienionym położeniem widma, co w przypadku przyjęcia w trakcie analiz stałego progu dyskryminacji sygnału może skutkować niekontrolowanymi zmianami (np. stratami) w zarejestrowanej liczbie zliczeń. Zjawisko to wynika z fluktuacji poziomu progowego sygnału oraz wzmocnienia cyfrowego układu akwizycji. W celu jego eliminacji oraz uniezależnienia liczby zliczeń w widmie od tych zmian, zastosowano dyskryminację części widma poniżej kanału ADC zawierającego 30% maksymalnej zarejestrowanej liczby zliczeń w jednym kanale (czyli najwyższego punktu w widmie energetycznym detektora scyntylacyjnego). Operację przeprowadzono dla każdego pliku przeznaczonego do analizy.

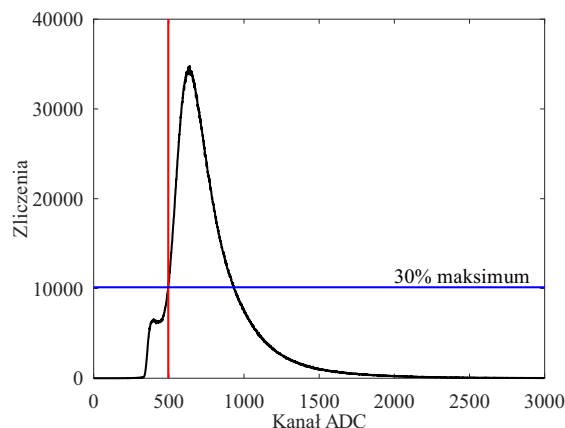
Rysunek 10.10 przedstawia schematycznie metodę wyznaczania poziomu dyskryminacji dla pojedynczego widma energetycznego detektora scyntylacyjnego. Linia niebieska wyznacza 30% maksymalnej zarejestrowanej liczby zliczeń, natomiast linia czerwona wskazuje kanał ADC wyznaczający poziom dyskryminacji. Część widma poniżej tego kanału, składająca się głównie z rejestrowanych kwantów promieniowania gamma, nie jest wykorzystywana w dalszych analizach.

Następnie, na podstawie przygotowanych plików wyjściowych i wyznaczonych poziomów dyskryminacji, przystąpiono do wyznaczenia średniej liczby zliczeń mionów w czasie jednej godziny dla całego rozpatrywanego okresu. W wyniku działania napisanego w tym celu skryptu, analizującego pliki wyjściowe poszczególnych detektorów, wygenerowano pliki w formacie `{.dat}` zawierające datę (z dokładnością do jednej sekundy) oraz odpowiadającą jej obliczoną średnią liczbę zliczeń. Przed przejściem do kolejnego etapu przeprowadzono wstępną walidację otrzymanych wartości w celu eliminacji danych odstających i uzupełnienia danych brakujących.

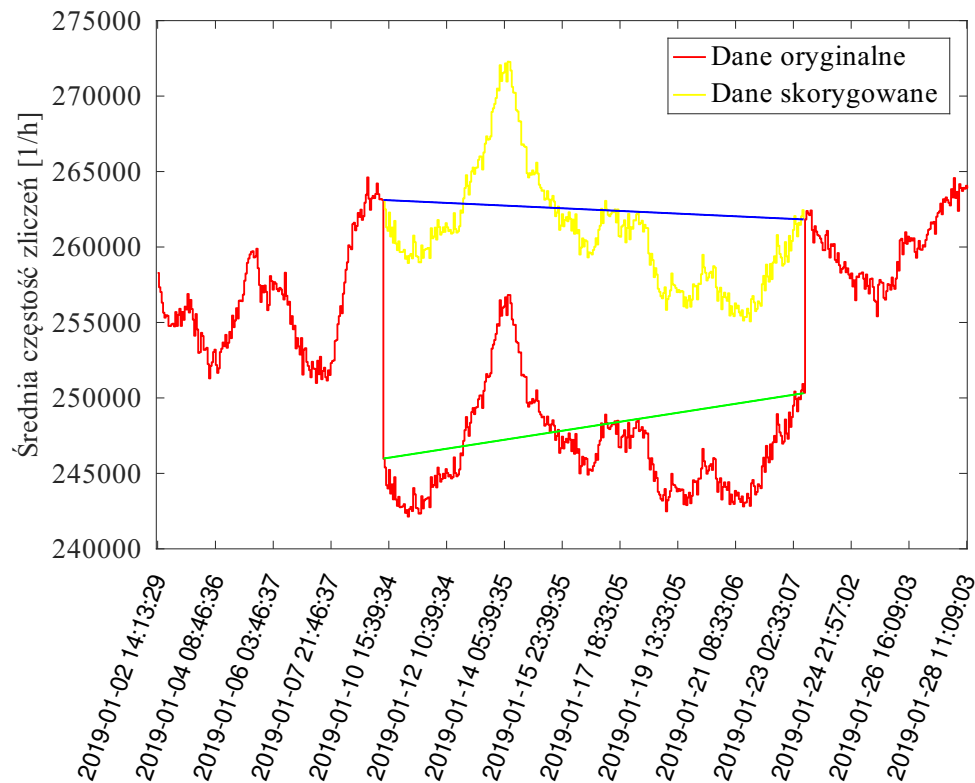
Przykład takich danych przedstawia Rysunek 10.11. Zaobserwowane obniżenie wartości średniej częstości zliczeń zostało spowodowane zmniejszeniem poziomu progowego sygnału rejestrowanego przez scyntylatory (była to czynność przeprowadzona na potrzeby eksperymentu mającego na celu wyznaczenie poziomu progowego (threshold) sygnału - patrz Rozdział 5) co spowodowało drastyczny wzrost ilości rejestrowanych danych (poprzez rejestrację promieniowania γ), a tym samym zwiększenie czasu martwego. Niebieska prosta łączy punkty odpowiadające sygnałowi rejestrowanemu z tym samym poziomem progowym, stosowanym w czasie całego rozpatrywanego okresu. Prosta zielona natomiast łączy punkty, które odpowiadają rejestracji mionów w okresie, gdy poziom progowy został obniżony. Różnica między odpowiadającymi sobie punktami leżącymi na tych prostych wyznacza wartość o jaką skorygowano dane pierwotne.

W kilku przypadkach zauważono punktowy, znaczny wzrost lub spadek liczby zliczeń w analizowanych szeregach. Przypadki te odpowiadają wyznaczaniu średniej częstości zliczeń dla zbyt małej liczby impulsów (co jest obciążone dużym błędem) dla kilku końcowych rekordów plików `{.ssv}`. Znaczniki czasowe tych impulsów nie pokrywają czasu trwania pełnej godziny. W takich przypadkach, jako wartość liczby zliczeń dla danej godziny przyjmowano średnią arytmetyczną liczby zliczeń zarejestrowanych w godzinie poprzedniej i następnej.

Kolejnym krokiem przygotowania danych była *linearyzacja czasu*. W przypadku, gdy przerwa między pomiarami gamma-spektrometrycznymi była dłuższa od jednej godziny



Rysunek 10.10 Dyskryminacja widma energetycznego scyntylatorów w celu eliminacji fluktuacji poziomu progowego i wzmocnienia sygnału. Linia niebieska reprezentuje 30% maksymalnej liczby zliczeń zarejestrowanej w jednym kanale, linia czerwona wskazuje kanał ADC wyznaczający próg dyskryminacji. Część widma poniżej tego kanału nie jest wykorzystywana w dalszych analizach



Rysunek 10.11 Walidacja danych przed analizą zmian strumienia mionów. Linia czerwona oznacza dane przed korektą. Obniżenie wartości średniej częstości zliczeń w tym przypadku zostało spowodowane zmniejszeniem poziomu progowego sygnału co spowodowało drastyczny wzrost ilości rejestrowanych danych, a tym samym zwiększenie czasu martwego. Linie niebieska i zielona wyznaczają proste łączące punkty odpowiednio przed i po wprowadzeniu zmian poziomu progowego. Linia żółta reprezentuje skorygowane dane poprzez dodanie do danych pierwotnych różnicy między wyznaczonymi prostymi

lub nastąpiła awaria, w wyniku której akwizycja danych została wstrzymana, zastosowano interpolację liniową danych w celu zapewnienia ich ciągłości.

Po przeprowadzeniu wyżej opisanych działań, na potrzeby dalszych analiz, przygotowano trzy szeregi czasowe: detektorów TOP, FRONT oraz szereg sygnałów koincydencyjnych między detektorami TOP oraz BOTTOM.

10.2.2 Korelacja intensywności strumienia mionów z ciśnieniem atmosferycznym

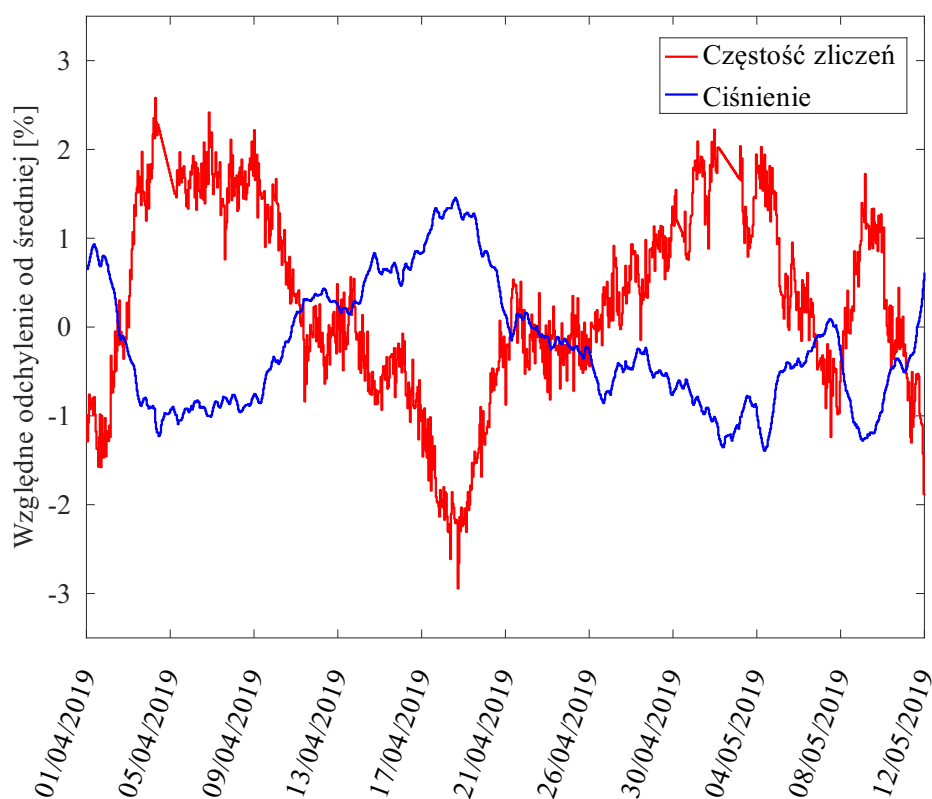
Wpływ ciśnienia atmosferycznego na intensywność strumienia promieniowania kosmicznego określany jest jako efekt barometryczny, skupiający w sobie następujące składowe [45]:

- absorpcyjną, mającą wpływ negatywny na intensywność strumienia mionów - wraz ze wzrostem ciśnienia (a tym samym ilości materii w słupie powietrza), wzrasta prawdopodobieństwo absorpcji i rozprożeń cząstek,
- rozpadu, również mającą wpływ negatywny, a określającą wzrost liczby rozpadów mionów wraz z wzrostem ciśnienia co spowodowane jest wzrostem wysokości na

jakiej generowane są miony,

- generacyjną, o pozytywnym wpływie na intensywność strumienia mionów, a uwzględniającą wzrost liczby produkowanych pionów wraz ze wzrostem ciśnienia.

Dla pomiarów strumienia mionów na powierzchni Ziemi, dominującym czynnikiem jest czynnik absorpcyjny, a biorąc pod uwagę fakt, iż gęstość powietrza jest przeważnie największa przy gruncie, znajomość wartości ciśnienia atmosferycznego na poziomie na jakim dokonywana jest detekcja jest wystarczająca do wyznaczenia wielkości efektu barometrycznego [41].



Rysunek 10.12 Względne odchylenie od średniej intensywności strumienia mionów (linia czerwona) i ciśnienia atmosferycznego (linia niebieska) dla krótkiego okresu obserwacji. Dane charakteryzują się antykorelacją

Dzięki nawiązaniu współpracy z prof. dr hab. Zbigniewem Ustrnulem z Instytutu Meteorologii i Gospodarki Wodnej i Uniwersytetu Jagiellońskiego, możliwym stało się uzyskanie dla całego okresu, od 1 września 2018 r. do końca kwietnia 2020 r., danych o wartościach ciśnienia atmosferycznego rejestrowanego w Stacji Meteorologicznej Kraków - Balice IMiGW. Stacja pomiarowa znajduje się 6 km na zachód od IFJ PAN, a dane rejestrowane są co godzinę. Dane te, udostępnione w postaci plików formatu `{.xlsx}`, dostosowano do wykorzystywanych formatów danych, a następnie obie bazy zawierające częstości zliczeń rejestrowanych mionów przez wybrane detektory scyntylacyjne oraz wartości ciśnienia atmosferycznego zsynchronizowano.

Rysunek 10.12 przedstawia względne odchylenia od wartości średniej intensywności rejestrowanego strumienia mionów oraz ciśnienia atmosferycznego dla krótkiego okresu

obserwacji. Można zauważyć silną antykorelację między danymi - wraz ze wzrostem ciśnienia, spada częstość rejestrowanych cząstek, natomiast w przypadku spadku ciśnienia, obserwowany jest wzrost liczby rejestrowanych mionów w jednostce czasu.

Względne odchylenie od średniej intensywności rejestrowanego strumienia mionów zależy od zmiany ciśnienia atmosferycznego [41, 42]:

$$\frac{\Delta I}{I} \propto \Delta P, \quad (10.5)$$

gdzie:

I - częstość zliczeń rejestrowanego strumienia mionów,

$\Delta I = I - \bar{I}$ - odchylenie rejestrowanej częstości zliczeń od średniej,

$\Delta P = P - \bar{P}$ - odchylenie wartości ciśnienia od średniej.

Równanie 10.5 można rozwiązać wprowadzając tzw. współczynnik barometryczny β_P :

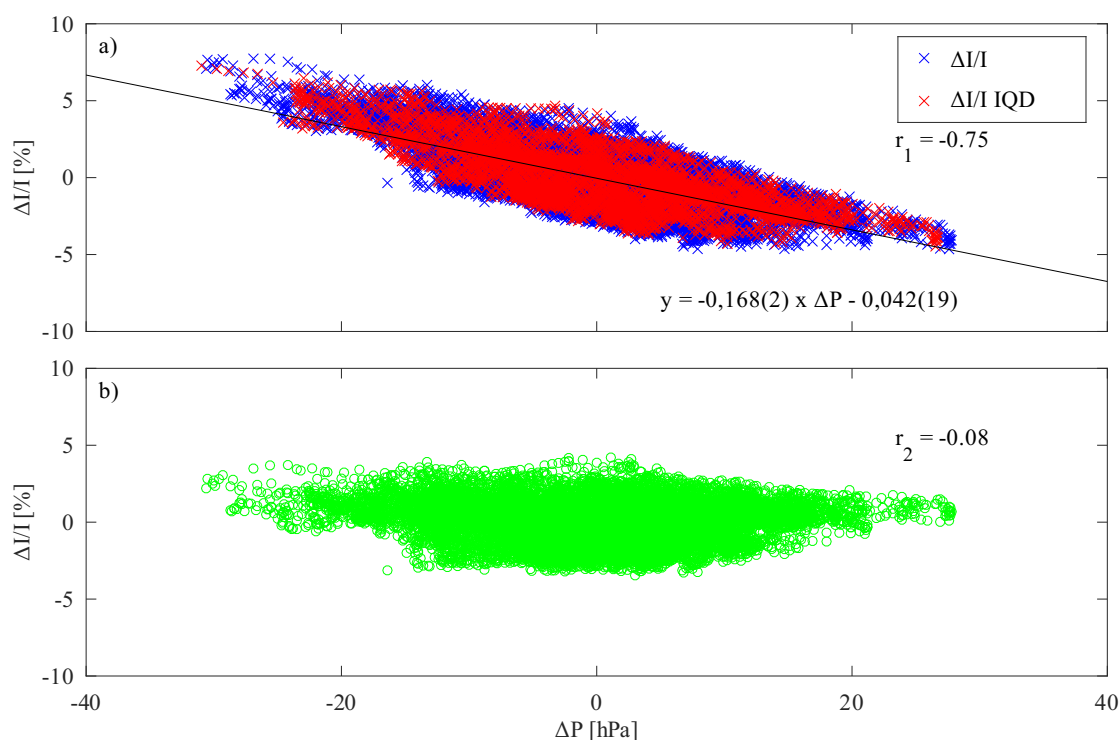
$$I_{corr} = I \exp(-\beta_P \Delta P), \quad (10.6)$$

gdzie I_{corr} to skorygowana częstość zliczeń rejestrowanego strumienia mionów. Współczynnik β_P można wyznaczyć, zakładając liniową korelację między zmianami intensywności strumienia mionów i zmianami ciśnienia. W tym celu należy wykreślić wartości $\frac{\Delta I}{I}$ w funkcji odchylenia ciśnienia od średniej ΔP dla danej godziny. Do otrzymanych punktów, metodą najmniejszych kwadratów dopasowywana jest prosta, której współczynnik kierunkowy stanowi współczynnik β_P wyrażony w jednostkach [%/hPa] [42, 181]. W literaturze przedmiotu zaleca się, aby wartość współczynnika barometrycznego wyznaczać dla dni o niskiej aktywności słonecznej, podczas których strumień promieniowania kosmicznego nie charakteryzuje się anomalnymi fluktuacjami [41, 45, 180]. W tym celu wykorzystano dane z bazy International Quiet Days (IQD) [98]. Baza ta zawiera dane o aktywności geomagnetycznej, a w szczególności listy „geomagnetycznie” najspokojniejszych oraz najmniej spokojnych dni każdego miesiąca. Dni te wyznacza się w oparciu o wartość indeksu K_p wprowadzonego przez J. Bartelsa w 1949 r. i wykorzystywanego do pomiaru intensywności strumienia cząstek promieniowania słonecznego poprzez jego wpływ na aktywność magnetyczną [7, 8, 94]. Tabela 10.1 zawiera zestawienie 10 najspokojniejszych dni każdego miesiąca, rozpatrywanego dla potrzeb analizy okresu, z listy International Quiet Days,

Tabela 10.1 Lista 10 „geomagnetycznie” spokojnych dni każdego miesiąca rozpatrywanego okresu. Odpowiadają czerwonym znacznikom na Rys. 10.13 a) [98]

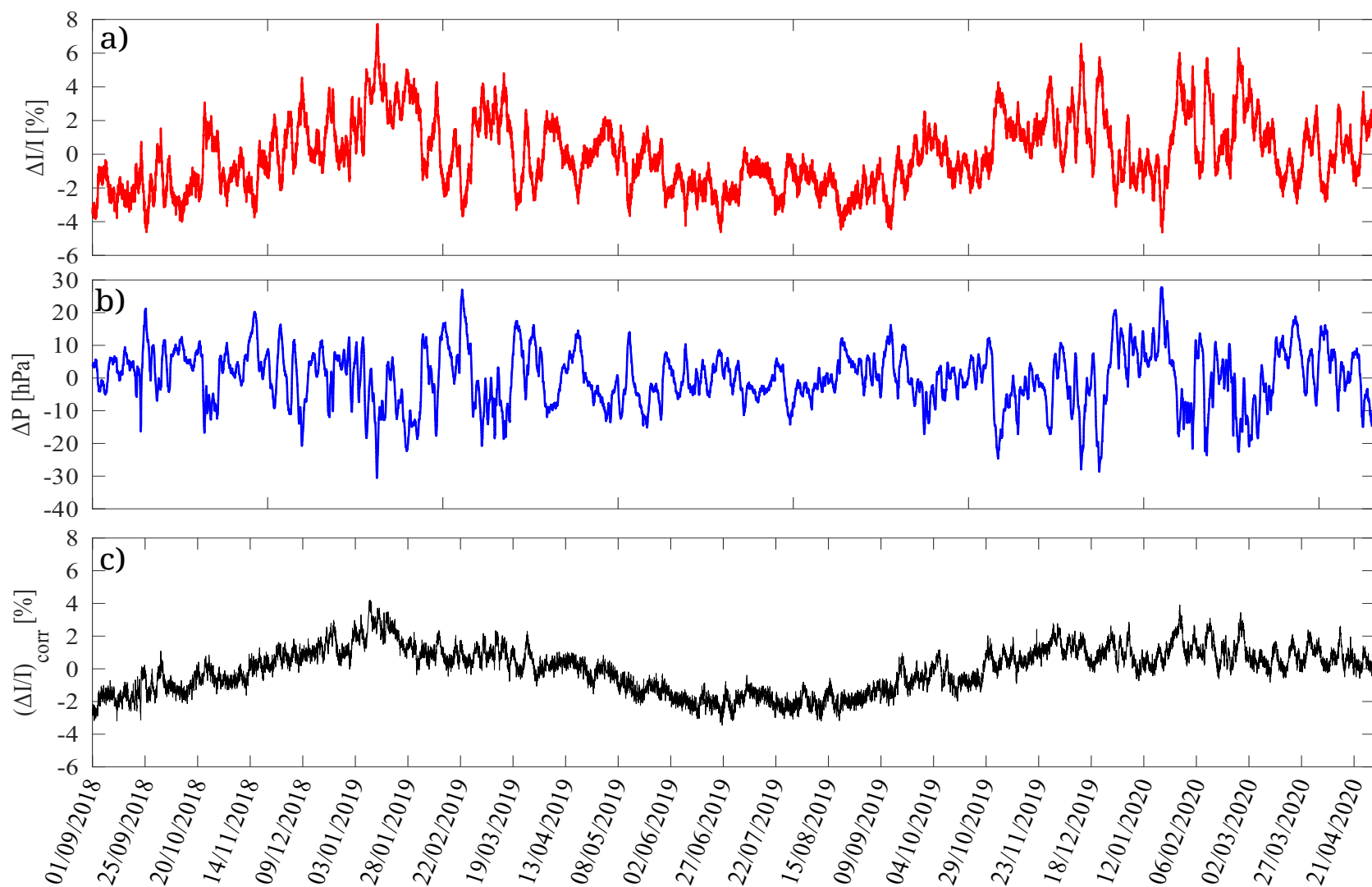
Rok	Miesiąc	Dzień
2018	9	1; 2; 3; 6; 7; 8; 16; 19; 20; 30
	10	4; 17; 18; 19; 20; 23; 24; 27; 28; 29
	11	15; 16; 17; 18; 22; 23; 25; 26; 28; 30
	12	12; 13; 14; 15; 16; 22; 23; 24; 25; 26
2019	1	2; 3; 10; 12; 13; 20; 21; 28; 29; 30
	2	15; 16; 17; 19; 20; 22; 23; 24; 25; 26
	3	5; 10; 11; 13; 18; 21; 22; 23; 24; 30
	4	14; 17; 18; 19; 20; 21; 22; 26; 28; 30
	5	5; 8; 12; 17; 18; 19; 21; 22; 25; 31
	6	1; 6; 10; 11; 12; 17; 18; 19; 23; 29
	7	3; 5; 6; 7; 18; 19; 20; 24; 25; 26
	8	2; 3; 4; 14; 15; 19; 21; 23; 25; 29
	9	10; 11; 12; 14; 19; 20; 22; 23; 25; 26
	10	3; 6; 8; 13; 15; 17; 19; 20; 22; 23
	11	2; 3; 8; 10; 13; 14; 15; 18; 19; 20
	12	2; 3; 5; 7; 16; 17; 24; 28; 29; 30
2020	1	1; 2; 12; 13; 14; 17; 19; 20; 24; 27
	2	3; 5; 10; 13; 14; 16; 24; 25; 26; 27
	3	2; 5; 6; 7; 10; 11; 14; 15; 24; 25
	4	5; 6; 7; 16; 17; 18; 19; 23; 29; 30

które zostały wykorzystane do wyznaczenia współczynnika β_P . Rysunek 10.13 a) przedstawia względne zmiany intensywności strumienia mionów w funkcji zmian ciśnienia dla danej godziny. Znaczniki niebieskie reprezentują wszystkie dane z okresu 1.09.2018 r. do 30.04.2020 r., natomiast markery czerwone - to dane zarejestrowane w dniach IQD. Współczynnik korelacji między tymi danymi a zmianami ciśnienia potwierdził zaobserwowaną (Rys. 10.12) silną antykorelację - $r_{1, TOP} = -0,75$. Do danych dopasowano prostą o równaniu $y = -0,168(2) \cdot \Delta P - 0,042(19)$, czyli współczynnik barometryczny dla detektora TOP wynosi $\beta_{P, TOP} = -0,168(2) \text{ \%}/\text{hPa}$. Następnie wartość ta, została wykorzystana do skorygowania danych i eliminacji zależności intensywności strumienia mionów od ciśnienia atmosferycznego z pomocą wzoru 10.6, a otrzymane wyniki przedstawia Rys. 10.13 b). Wartość współczynnika korelacji po korekcji danych - $r_{2, TOP} = -0,08$ potwierdza zredukowanie zależności.



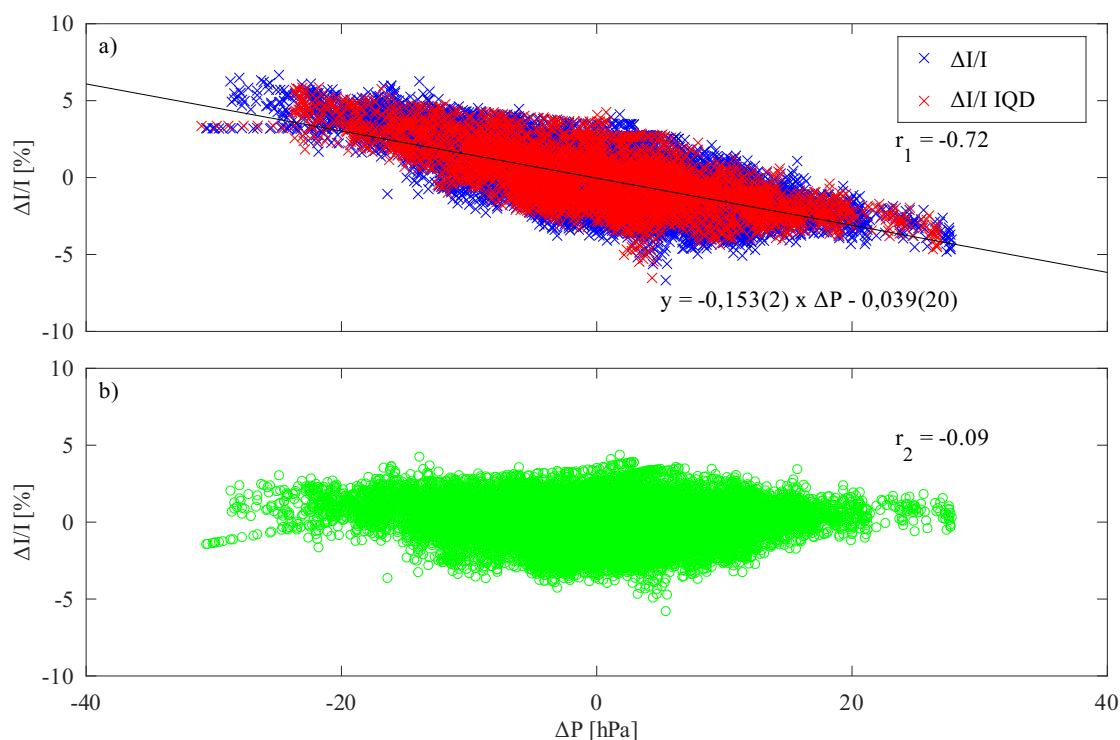
Rysunek 10.13 Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych rejestrowanych przez detektor TOP. Panel a) - względne odchylenie częstości zliczeń od średniej w funkcji odchylenia ciśnienia od średniej dla wszystkich punktów (niebieskie znaczniki) oraz dla danych International Quiet Days (IQD) - markery czerwone. Współczynnik korelacji między danymi z dni IQD a zmianami ciśnienia wyniósł $r_{1, TOP} = -0,75$. Dopasowana prosta o równaniu $y = -0,168(2) \cdot \Delta P - 0,042(19)$. Panel b) - dane skorygowane, współczynnik korelacji $r_{2, TOP} = -0,08$ co wskazuje na zredukowanie zależności między danymi

Rysunek 10.14 przedstawia względne zmiany intensywności strumienia mionów przed (panel a)) i po (panel c)) korekcji ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego (panel b)). Dane skorygowane charakteryzują się mniejszymi fluktuacjami, jednak zmienność sezonowa jest nadal wyraźnie widoczna.



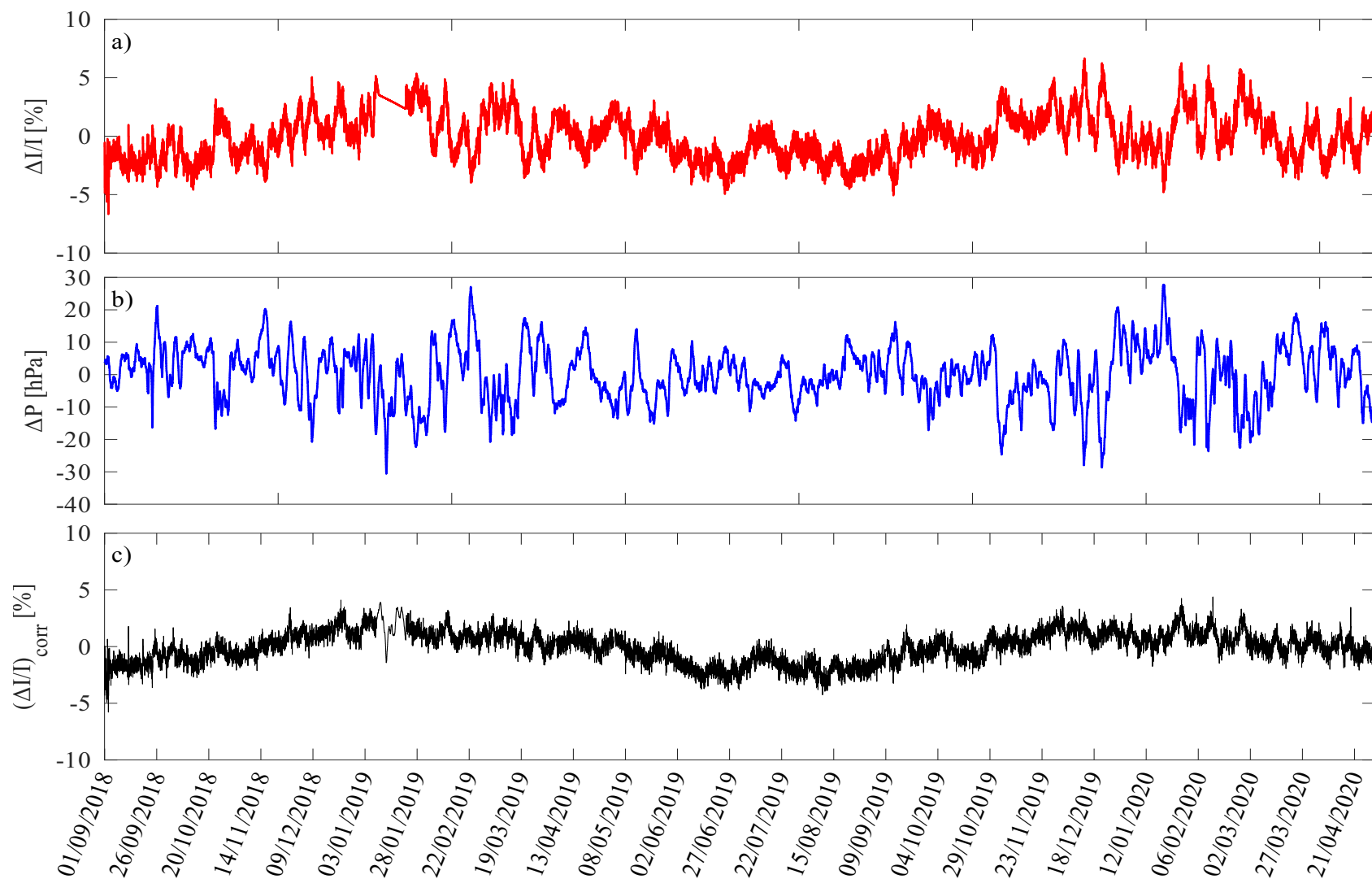
Rysunek 10.14 a) Względne zmiany intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor TOP przed korektą ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego dla całego rozpatrywanego okresu (01.09.2018 r. - 30.04.2020 r.), b) zmiany ciśnienia atmosferycznego, c) skorygowane zmiany intensywności strumienia mionów I_{corr}

Analogiczne analizy przeprowadzono dla danych zarejestrowanych przez detektor scyntylacyjny FRONT oraz impulsów koincydencyjnych między detektorami TOP oraz BOTTOM. Rysunek 10.15 przedstawia metodę wyznaczenia współczynnika barometrycznego dla danych zarejestrowanych w rozpatrywanym okresie przez detektor FRONT. Współczynnik korelacji między względnym odchyleniem od średniej intensywności strumienia mionów dla dni z listy IQD wyniósł $r_{1, FRONT} = -0,72$. Dopasowana prosta o równaniu $y = -0,153(2) \cdot \Delta P - 0,039(20)$ pozwoliła wyznaczyć współczynnik barometryczny $\beta_{P, FRONT} = -0,153(2) \text{ \%}/\text{hPa}$. Skorygowane dane (Rys. 10.15 b)) charakteryzują się korelacją zredukowaną do poziomu $r_{2, FRONT} = -0,09$.



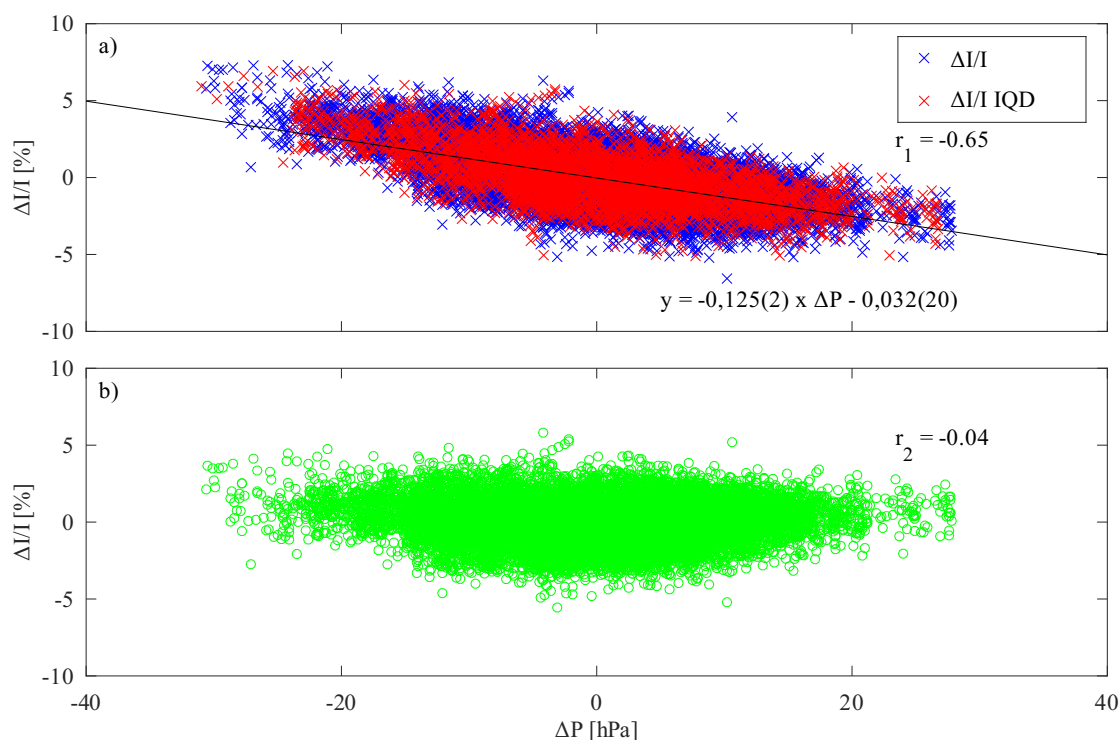
Rysunek 10.15 Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych rejestrowanych przez detektor FRONT. Panel a) - względne odchylenie częstości zliczeń od średniej w funkcji odchylenia ciśnienia od średniej dla wszystkich punktów (niebieskie znaczniki) oraz dla danych International Quiet Days (IQD) - markery czerwone. Współczynnik korelacji między danymi z dni IQD a zmianami ciśnienia wyniósł $r_{1, FRONT} = -0,72$. Dopasowana prosta o równaniu $y = -0,153(2) \cdot \Delta P - 0,039(20)$. Panel b) - dane skorygowane, współczynnik korelacji $r_{2, FRONT} = -0,09$ co wskazuje na zredukowanie zależności między danymi

Rysunek 10.16 a) przedstawia względne zmiany intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor FRONT przed korektą ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego, b) zmiany ciśnienia atmosferycznego, c) skorygowane względne zmiany intensywności strumienia mionów I_{corr} . Można zaobserwować, iż zarówno dane przed jak i po korekcie, charakteryzują się mniejszymi fluktuacjami w porównaniu do strumienia promieniowania kosmicznego rejestrowanego przez detektor TOP (Rys. 10.14). Spowodowane jest to zarówno mniejszą powierzchnią czynną detektora FRONT, jak również mniejszą intensywnością horyzontalnej składowej strumienia mionów.



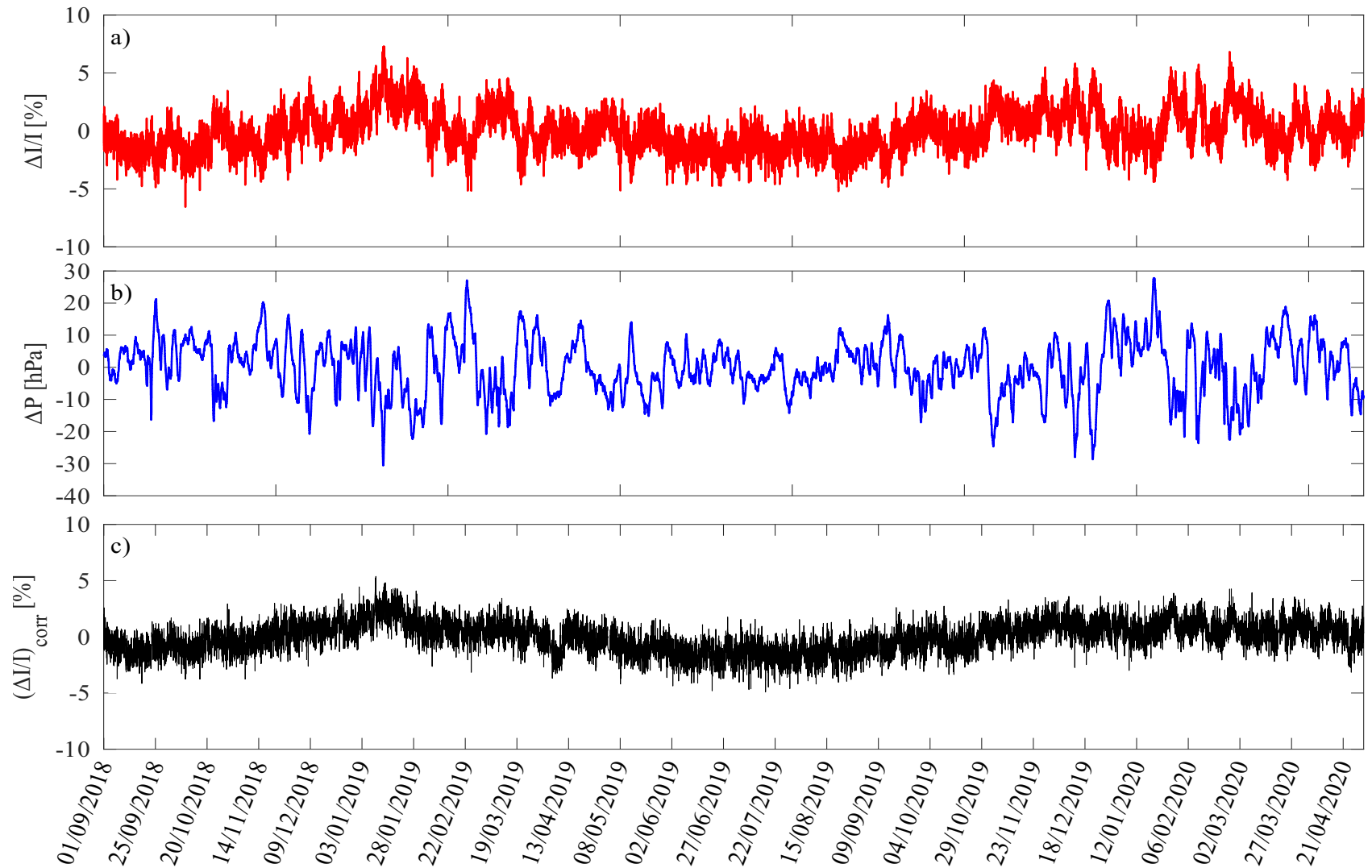
Rysunek 10.16 a) Względne zmiany intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor FRONT przed korektą ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego dla całego rozpatrywanego okresu, b) zmiany ciśnienia atmosferycznego, c) skorygowane zmiany intensywności strumienia mionów I_{corr}

Podobnie jak poprzednio, na Rysunku 10.17 przedstawiono wyznaczenie współczynnika barometrycznego, przy czym dane zawierają jedynie przypadki koincydencyjne, zarejestrowane przez detektory TOP oraz BOTTOM. Względne ułożenie obu detektorów, pozwala na zawężenie kąta padających cząstek, skutkujące „pionizacją” trajektorii rejestrowanych mionów. Współczynnik korelacji między względnym odchyleniem od średniej intensywności strumienia mionów dla dni z listy IQD wyniósł $r_{1, TB} = -0,65$. Zmniejszenie tego współczynnika, spowodowane jest skróceniem drogi cząstek w atmosferze od miejsca kreacji do detektora, a tym samym zmniejszeniem prawdopodobieństwa ich oddziaływania z atomami obecnymi w powietrzu. Znalazło to również odbicie w dopasowanej do danych prostej o równaniu $y = -0,125(2) \cdot \Delta P - 0,032(20)$, a tym samym w wartości współczynnika barometrycznego, który wyniósł $\beta_{P, TB} = -0,125(2) \text{ \%}/\text{hPa}$. Skorygowane dane (Rys. 10.17 b)) charakteryzują się korelacją na poziomie $r_{2, TB} = -0,04$.



Rysunek 10.17 Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych koincydencyjnych zarejestrowanych przez detektory TOP i BOTTOM. Panel a) - względne odchylenie częstości zliczeń od średniej w funkcji odchylenia ciśnienia od średniej dla wszystkich punktów (niebieskie znaczniki) oraz dla danych International Quiet Days (IQD) - markery czerwone. Współczynnik korelacji między danymi z dni IQD a zmianami ciśnienia wyniósł $r_{1, TB} = -0,65$. Dopasowana prosta o równaniu $y = -0,125(2) \cdot \Delta P - 0,032(20)$. Panel b) - dane skorygowane, współczynnik korelacji $r_{2, TB} = -0,04$ co ponownie wskazuje na zredukowanie zależności między danymi

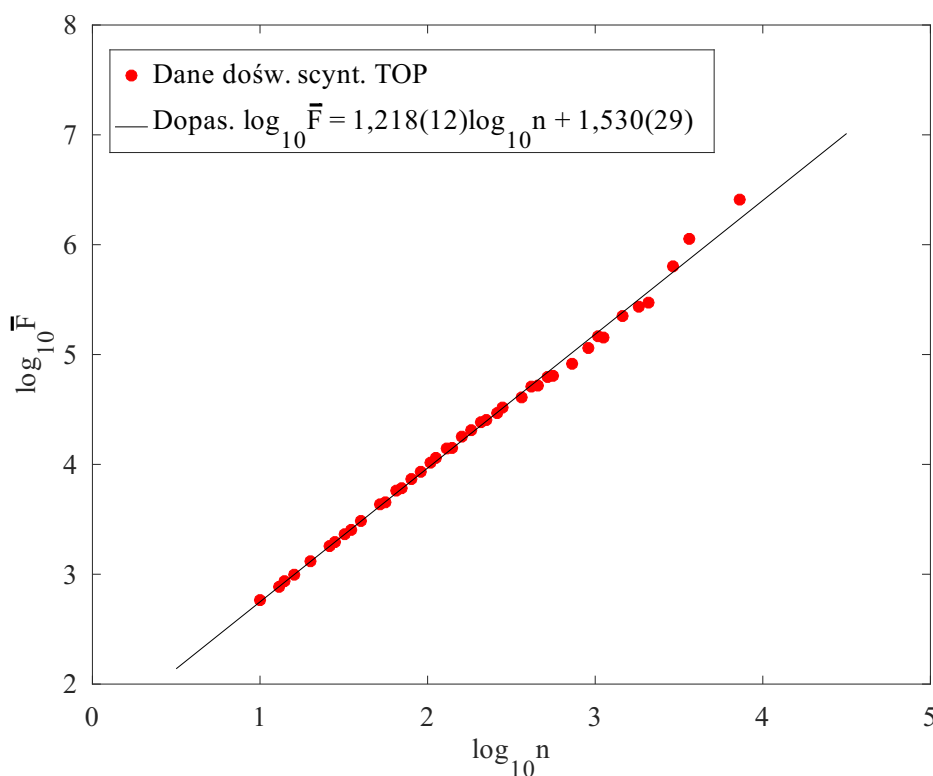
Zgodnie z oczekiwaniami, strumień mionów zarejestrowany przez układ koincydencyjny detektorów TOP i BOTTOM charakteryzuje się mniejszymi fluktuacjami (Rys. 10.18), niż dane rejestrowane przez pojedyncze detektory. Również zmienność sezonowa jest mniej wyraźna.



Rysunek 10.18 a) Względne zmiany intensywności strumienia mionów zarejestrowanego przez układ koincydencyjny detektorów TOP i BOTTOM przed korektą ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego dla całego rozpatrywanego okresu, b) zmiany ciśnienia atmosferycznego, c) skorygowane zmiany intensywności strumienia mionów I_{corr}

Wyznaczenie współczynników korekcyjnych, mających na celu umożliwić redukcję wpływu ciśnienia atmosferycznego na strumień cząstek promieniowania kosmicznego, wraz z wstępnym przygotowaniem danych, zwiększa ich użyteczność, pozwalając na zwiększenie czułości stosowanych metod analitycznych, zarówno na okresowe jak i nie okresowe zmiany występujące w rejestrowanych strumieniach cząstek (zmiany strumienia pierwotnego promieniowania kosmicznego, procesy słoneczne) [180].

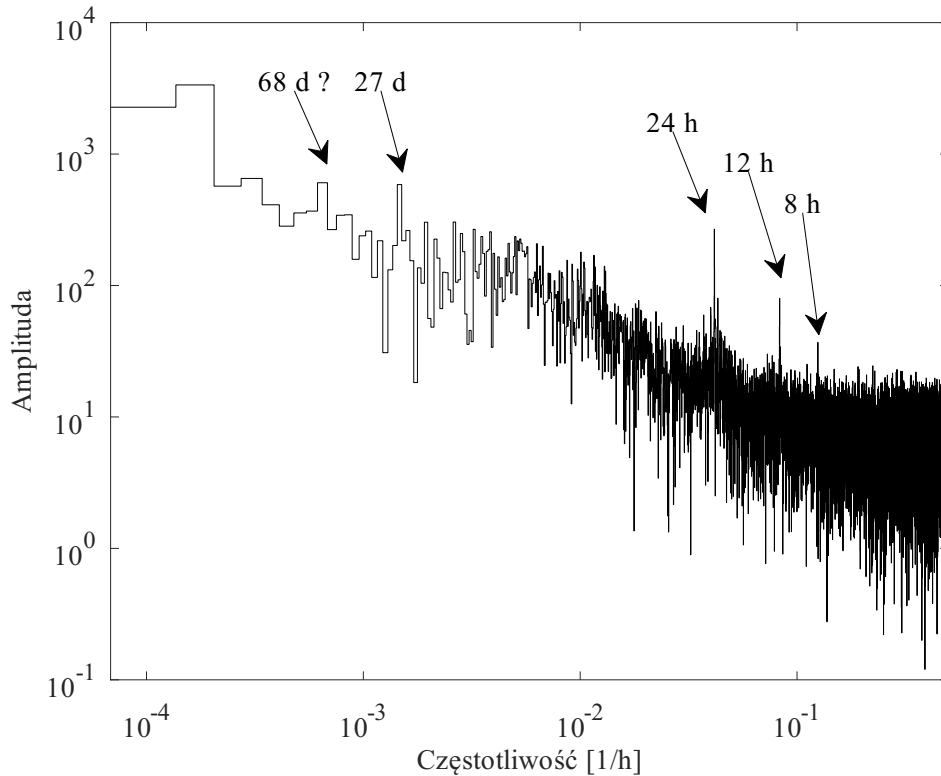
Podobnie jak dla danych krótkookresowych przeprowadzono analizy otrzymanych skorygowanych szeregów czasowych wykorzystując metody DFA i DFT mające na celu zbadanie samopodobieństwa szeregów oraz wyznaczenie występujących w nich składowych okresów.



Rysunek 10.19 Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n (skal) danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor TOP. Do danych dopasowano prostą o równaniu $\log_{10} \bar{F} = 1,218(12) \log_{10} n + 1,530(29)$

Rysunek 10.19 przedstawia wyniki analizy za pomocą metody Detrended Fluctuation Analysis. Wykładnik skalujący wynosi $a = 1,218(12)$ co wskazuje, iż rozpatrywany szereg jest niestacjonarny i persystentny - występują w nim długozasięgowe korelacje dodatnie [34]. W odróżnieniu od danych krótkookresowych nie zauważono wyraźnych zmian wartości wykładnika skalującego, przy czym rozpatrywanie dłuższego okresu badawczego w przeszłości może wykazać istnienie punktów przegięcia w otrzymanych danych.

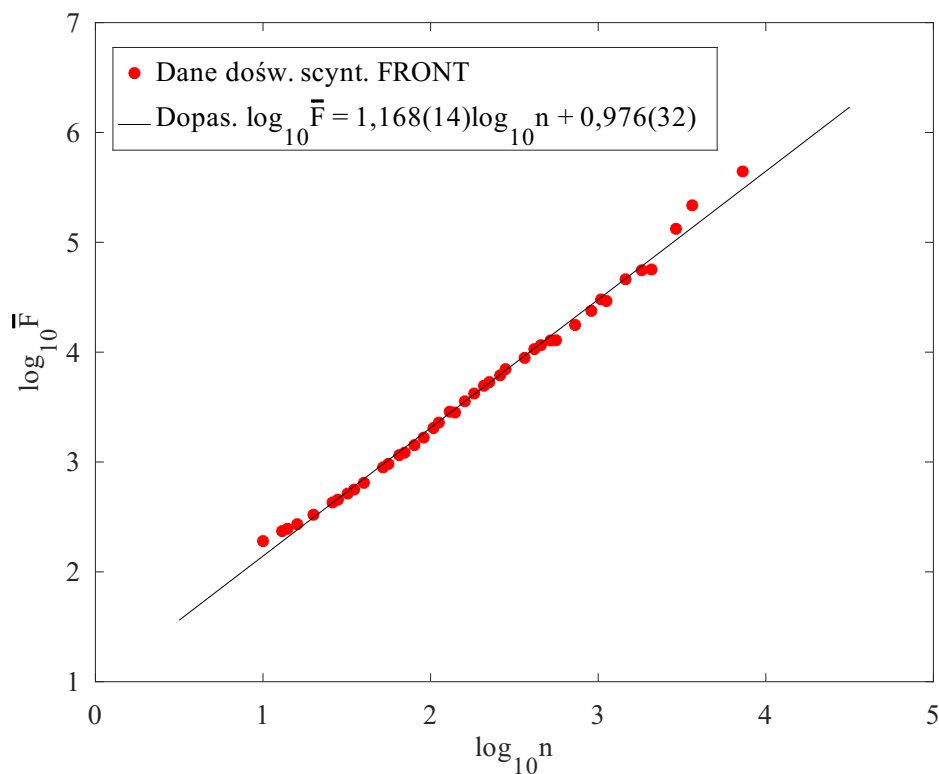
Analiza częstotliwościowa rozpatrywanego szeregu czasowego została przedstawiona na Rysunku 10.20. Pozwoliła ona na identyfikację okresowości dobowej sygnału (24 h) wraz z składowymi harmonicznymi (12 h oraz 8 h) spowodowaną rotacją Ziemi i jej względnym ruchem w polu magnetycznym Słońca, modulowanym wiatrem słonecznym [4, 120, 177].



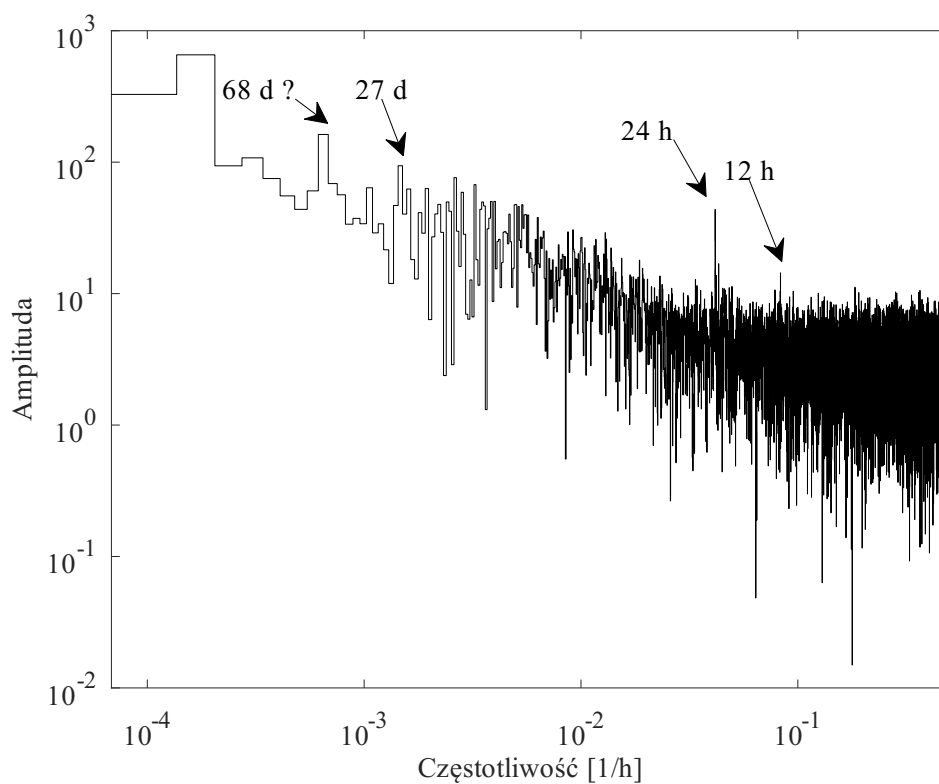
Rysunek 10.20 Widmo częstotliwościowe danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor TOP. Można zauważyć periodyczności: dobową (wraz ze składowymi harmonicznymi), 27-dniową oraz 68-dniową

Zidentyfikowano również składową okresową o okresie ok. 27 dni. Zmienność ta stwarzana jest z efektem rotacji Słońca [120] co skutkuje nierównomiernym rozkładem natężenia cząstek wiatru słonecznego i zmianami ich szybkości [150]. Na amplitudy zmian wpływ ma również aktywność słoneczna, przy czym zmiany te są wyraźniejsze w okolicy maksimum cyklu słonecznego [184]. W tym miejscu należy wspomnieć, iż okres w którym zbierane były dane, charakteryzuje się minimalną aktywnością słoneczną [39]. Określenie momentu wystąpienia minimum aktywności słonecznej pomiędzy cyklami 24. (obecnym) i 25. (przyszłym) nie jest jednoznaczne. Jego wystąpienie szacowane było na czwarty kwartał roku 2019 [141], jednak według informacji opublikowanej przez Space Weather Prediction Center nastąpi ono w kwietniu 2020 r. (z dokładnością do 6 miesięcy) [187].

Ponadto, w widmie częstotliwościowym, zauważalna jest struktura periodyczna o okresie ok. 68 dni, jednak dokładnie ta wartość nie jest odnotowana w dostępnej literaturze przedmiotu. W pracy Takai et al. (2016) [196] autorzy przeprowadzili analizę częstotliwościową ośmioletniego szeregu czasowego strumienia mionów zarejestrowanego w ramach eksperymentu MARIACHI. Autorzy zidentyfikowali, oprócz m.in. periodyczności rocznej, również składową o okresie ok. 62,5 dnia, która jest najbardziej zbliżona do wyniku uzyskanego w niniejszej rozprawie, jednak nie podano jej interpretacji. Być może, przeprowadzenie powtórnej analizy na dłuższym szeregu czasowym (np. ponad 2 letnim) rejestrowanym przez skonstruowany spektrometr, umożliwi identyfikację tej struktury lub uznanie jej za fluktuację.



Rysunek 10.21 Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n (skal) danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor FRONT. Do danych dopasowano prostą o równaniu $\log_{10} \bar{F} = 1,168(14) \log_{10} n + 0,976(32)$

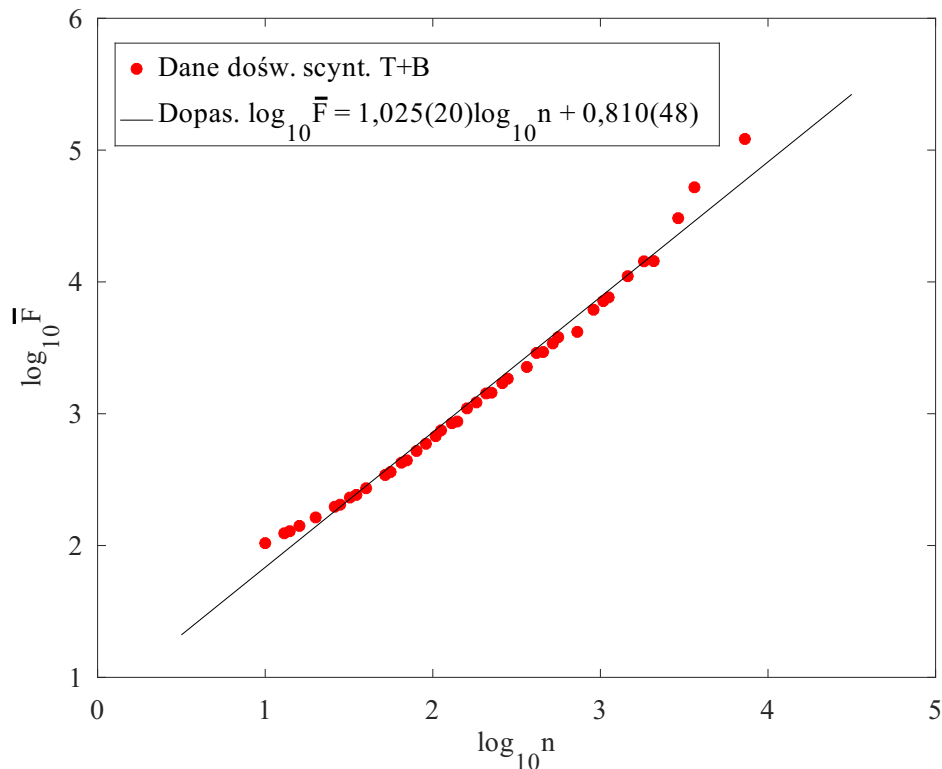


Rysunek 10.22 Widmo częstotliwościowe danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor FRONT. Można zauważyć periodyczności: dobową (wraz z pierwszą składową harmoniczną), 27-dniową oraz 68-dniową

Rysunki 10.21 oraz 10.22 przedstawiają wyniki przeprowadzonych analiz dla danych długookresowych zarejestrowanych przez detektor FRONT. Podobnie jak dla scyntylatora TOP, wykładnik skalujący a jest większy od 1 i wyniósł 1,168(14) co ponownie świadczy o niestacjonarności szeregu i występowaniu dodatnich korelacji długozasięgowych.

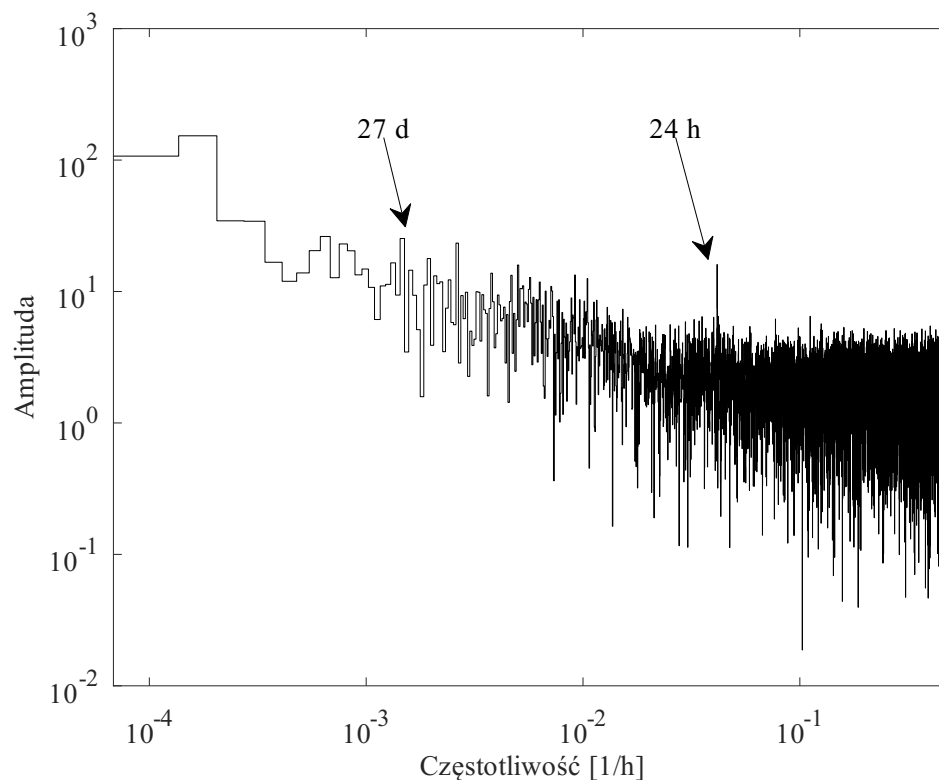
Analiza częstotliwościowa, ponownie wykazała dobową, cykliczną zmienność intensywności rejestrowanego strumienia mionów (tym razem głównie jego horyzontalnej składowej), przy czym ze względu na mniejszą częstość zliczeń, nie zauważono drugiej składowej harmonicznej. Ponadto zidentyfikowana jest również składowa 27-dniowa choć odpowiadający jej pik jest wyraźnie mniej widoczny w porównaniu do Rysunku 10.20. Obecność składowej 68 dniowej, przy mniejszej względnej wysokości pików odpowiadających dobowej periodyczności (w porównaniu do danych detektora TOP) może sugerować, iż jest to fluktuacja, która nie ma fizycznej podstawy.

Analogiczne wyniki osiągnięto dla danych koincydencyjnych detektorów TOP oraz BOTTOM (Rysunki 10.23 oraz 10.24), przy czym wykładnik skalujący, w tym przypadku, wyniósł $a = 1,025(20)$ co sugeruje, iż ciąg ma charakterystykę szumu różowego ($1/f$) [106]. Ponownie, dane modulowane są przez dobową zmienność cykliczną, natomiast składowa 27-dniowa jest prawie nieobecna.



Rysunek 10.23 Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeręgów n danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanych w koincydencji przez detektory TOP oraz BOTTOM. Do danych dopasowano prostą o równaniu $\log_{10} \bar{F} = 1,025(20) \log_{10} n + 0,810(48)$

Należy nadmienić, iż przedstawione dane są pierwszym wynikiem długookresowego monitoringu zmian intensywności strumienia mionów rejestrowanego w IFJ PAN, stąd nie obecne są w nim składowe: kwazi-periodyczna o okresie ok. 1,7 roku skorelowana z rozbłyskami słonecznymi [202] oraz być może związana ze zjawiskiem słonecznego dy-



Rysunek 10.24 Widmo częstotliwościowe danych długookresowych intensywności strumienia mionów rejestrowanych w koincydencji przez detektory TOP oraz BOTTOM. Można zauważyć periodyczności: dobową oraz 27 dniową

nama magnetohydrodynamicznego [184], 11 - letnia związana z cyklem słonecznym oraz 22 - letnia odpowiadająca magnetycznemu cyklowi słonecznemu [4].

Przeprowadzone analizy długookresowych danych rejestrowanych przez detektory scyntylacyjne, pełniące rolę osłony aktywnej niskotłowego, cyfrowego spektrometru promieniowania gamma potwierdziły możliwość ich wykorzystania w celu ciągłego monitoringu zmian strumienia cząstek wtórnego promieniowania kosmicznego. Dane krótkookresowe, pochodzące z pojedynczego pomiaru gamma - spektrometrycznego, ze względu na swoją rozdzielczość czasową, mogą znaleźć zastosowanie do badań nagłych zjawisk skorelowanych z rejestrowanym strumieniem mionów takich jak trzęsienia ziemi [85, 116].

PODSUMOWANIE

Rozdział 11

Podsumowanie pracy

W ramach niniejszej rozprawy doktorskiej stworzono, w Zakładzie Fizykochemii Jądrowej Polskiej Akademii Nauk w Krakowie, stanowisko niskotłowej, cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma oraz, za jego pomocą, przeprowadzono szereg badań próbek charakteryzujących się niskimi poziomami koncentracji izotopów promieniotwórczych, jak również wykonano analizę rejestrowanego strumienia promieniowania kosmicznego.

W **Części praktycznej** pracy przedstawiono opis wykorzystanych do budowy spektrometru komponentów (Rozdział 4) - detektora BEGe, wielowarstwowej osłony pasywnej (w ramach niniejszej pracy zmodernizowano istniejącą osłonę poprzez dodatkowe warstwy wewnętrznej z akrylowego szkła organicznego i doprowadzenie oparów ciekłego azotu), detektorów scyntylicyjnych, pełniących rolę osłony aktywnej oraz cyfrowego analizatora danych. Rozdział 5 zawiera opis przeprowadzonych procesów mających na celu wyznaczenie oraz optymalizację (pod kątem charakteru planowanych badań) wartości parametrów pracy spektrometru. W przypadku detektora BEGe, prace polegały na pomiarach szerokości połówkowej wybranych pików fotoelektrycznych w funkcji wartości parametrów akwizycji danych oraz wyjściowej częstości zliczeń. Z kolei, proces optymalizacji parametrów pracy dla detektorów scyntylicyjnych, polegał na wyznaczeniu odpowiednich wartości tych parametrów oraz poziomu progowego sygnału. W tym celu wykorzystano impulsy generowane jedynie przez promieniowanie kosmiczne (głównie miony).

Ponadto, wyznaczono opóźnienia występujące między detektorami układu koincydencyjnego, w celu synchronizacji poszczególnych kanałów digitizera, określono czas przetwarzania sygnałów i jego związek z wysokością impulsów, wyznaczono częstość występowania koincydencji przypadkowych oraz oszacowano czas martwy układu spektrometrycznego. Po przeprowadzeniu procesów konfiguracji i optymalizacji, poddano analizie widma energetyczne generowane przez detektory układu koincydencyjnego, określono udział poszczególnych scyntylatorów w redukcji tła detektora germanowego oraz wyznaczono występujące w nim linie widmowe wraz z identyfikacją możliwych źródeł, częstością zliczeń oraz uzyskaną redukcją danego pików. Zastosowany system antykoincydencyjny umożliwił redukcję tła spektrometru odpowiadającą umieszczeniu go na głębokości 20 - 30 m w.e. Wykazano również brak wpływu układu antykoincydencyjnego na wydajność detektora BEGe przy pomiarach rzeczywistych próbek (Rozdział 6).

Część badawcza rozprawy stanowi swego rodzaju studium różnych przypadków wykorzystania stworzonego stanowiska niskotłowej, cyfrowej spektrometrii promieniowania

gamma z osłoną aktywną. Rozdział 7 dotyczy badań skażeń radiologicznych obecnych w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie. Opisano przypadek obecności izotopów rutenu jesienią 2017 r. kiedy to zidentyfikowane maksymalne stężenie aktywności ^{106}Ru wyniosło niemal 17(1) mBq/m³. W toku dalszych badań oszacowano stosunek aktywności $^{106}\text{Ru}/^{103}\text{Ru}$ na poziomie $3,6(8)\cdot 10^3$ (na dzień 10.10.2017 r.). Na podstawie analiz szeregu próbek środowiskowych wykazano brak obecności izotopów rutenu na poziomie osiąganych limitów detekcji.

Kolejnym przypadkiem, w którym wyznaczono obecność radioizotopów powyżej przeciętnych poziomów była zwiększona koncentracja ^{137}Cs spowodowana pożarami lasów i nieużytków wokół elektrowni czarnobylskiej wiosną 2020 r. W wyniku tego zdarzenia, zaobserwowano niemal pięciokrotny wzrost stężenia aktywności ^{137}Cs do poziomu 2,53(25) μBq/m³. Dodatkowo przeprowadzono symulacje trajektorii wstecznych dla wybranych lokalizacji w Europie pozwalające wyjaśnić obserwowane stężenia ^{137}Cs w powietrzu.

Ponadto, w Rozdziale 7 przedstawiono analizę wpływu cyfrowej akwizycji danych na osiągnięte limity detekcji dla ^{22}Na jako reprezentanta izotopów obecnych w filtrach powietrza na śladowych poziomach. Wykazano istotną poprawę jakości uzyskiwanych danych, pomimo zmniejszenia objętości filtrowanego powietrza w stacji poboru aerozoli atmosferycznych.

W Rozdziale 8 przedstawiono wyniki badań koncentracji radioizotopów gamma - promieniotwórczych zebranych na filtrach powietrza eksponowanych na terenie Bazy Marambio zlokalizowanej na wyspie Seymour, leżącej u wybrzeży Półwyspu Antarktycznego. Materiał badawczy składał się z 174 filtrów powietrza eksponowanych w okresie 26.01.2005 - 19.05.2006 r. W rozdziale przedstawiono opisy wstępnej preparatyki próbek polegającej na pogrupowaniu poszczególnych filtrów w zestawy (FM123 - FM18), chemicznej mineralizacji materiału badawczego, wyboru metody kalibracji wydajnościowej spektrometru i jej walidacji oraz otrzymanych wyników. Skonstruowany spektrometr promieniowania gamma pozwolił na wyznaczenie stężeń aktywności izotopów ^{210}Pb (wartość średnia wyników poszczególnych próbek powyżej wartości MDC: 2,6(12) μBq/m³), ^{226}Ra (0,37(10) μBq/m³), ^{228}Ra (1,92(59) μBq/m³) i ^{40}K (40(10) μBq/m³). W przypadku ^{137}Cs oszacowano średnie minimalne mierzalne stężenia aktywności, MDC oraz MDC 70, na poziomie 0,121(21) oraz 0,0381(66) μBq/m³. Ponadto, analiza zsumowanych widm wszystkich mierzonych próbek pozwoliła na obniżenie limitów detekcji dla ^{137}Cs odpowiednio do poziomów 0,032 oraz 0,010 μBq/m³. Przeprowadzone badania wykazały, iż poziom zanieczyszczeń radioaktywnych powietrza rejonu Antarktyki jest bardzo niski i zmniejszył się, nawet o dwa rzędy wielkości w przeciągu około 50-ciu lat. Otrzymane wyniki można traktować jako aktualne poziomy referencyjne dla ewentualnych, nowych zanieczyszczeń okolic Półwyspu Antarktycznego.

Następny rozdział - 9, przedstawia badania fragmentów meteorytów - Sikhote-Alin oraz Pułtusk, mające na celu wyznaczenie obecnych w nich izotopów γ - promieniotwórczych. W przypadku fragmentu meteorytu Pułtusk, po przeprowadzeniu procedury kalibracji wydajnościowej, wyznaczono koncentrację ^{26}Al oraz ^{40}K - odpowiednio 63(19) i 1540(40) dpm/kg, co jest w zgodzie z wynikami zawartymi w literaturze przedmiotu. Należy jednak zauważyć, że masa badanych w niniejszej pracy fragmentów meteorytów

była od kilku do kilkudziesięciu razy mniejsza od tych, analizowanych w cytowanych pracach. W przypadku ^{226}Ra oraz ^{228}Ra , stężenie aktywności tych izotopów było poniżej osiągniętych limitów detekcji oszacowanych na poziomie 96 i 168 dpm/kg.

Ostatni, 10 rozdział „Części badawczej”, dotyczy analiz danych rejestrowanych przez detektory scyntylicyjne osłony aktywnej spektrometru. W przypadku wyżej opisanych badań, dane te służyły do redukcji tła detektora germanowego, podczas gdy dzięki cyfrowej akwizycji danych i ich analizie off-line możliwym jest ich wielokrotne wykorzystanie. Rozdział zawiera analizę szeregów czasowych danych generowanych przez pojedynczy scyntylicyjator w trakcie trwania pojedynczego pomiaru gamma - spektrometrycznego, jak również analizy danych długookresowych. W pierwszym przypadku wykazano, iż średnia liczba przypadków rejestrowana w ciągu 1 sekundy pochodzi z rozkładu Poissona, a interwały czasowe między impulsami nie są ze sobą skorelowane. Ponadto, za pomocą szybkiej transformaty Fouriera, wykazano brak struktur periodycznych w tych szeregach. Analiza korelacji długozasięgowych - DFA, w przypadku scyntylicyjatora TOP wykazała zmianę wartości wykładnika skalującego co świadczy o obecności takich korelacji. W przypadku pozostałych analizowanych szeregów - generowanych przez detektory BOTTOM i FRONT - analizy wykazały brak korelacji oraz charakter sygnału zbliżony do szumu białego, niezależnie od długości skal czasowych.

W przypadku danych długookresowych, zdefiniowane są one jako godzinowe średnie częstości zliczeń rejestrowanego promieniowania kosmicznego. Analizie poddano dane zbierane w okresie od 1.09.2018 r. do 30.04.2020 r. Po wstępnym przygotowaniu danych, przeprowadzono analizę korelacji zmian intensywności rejestrowanego strumienia mionów z ciśnieniem atmosferycznym wykazując silne antykorelacje (np. w przypadku scyntylicyjatora TOP na poziomie $r_{1, TOP} = -0,75$). Po uwzględnieniu efektu barometrycznego, przeprowadzono analizę danych z detektora TOP, FRONT oraz sygnałów koincydencyjnych impulsów z detektorów TOP i BOTTOM pod kątem występowania składowych periodycznych w widmach częstotliwościowych oraz korelacji długozasięgowych. We wszystkich szeregach zidentyfikowano sygnały periodyczne m.in. związane z obrotem Ziemi (o okresie 24 h) oraz rotacjami Słońca (okres około 27 dni) jak również wykładnik skalujący analizy DFA był większy od 1, co oznacza, iż szeregi są niestacjonarne i występują w nich dodatnie korelacje.

W Dodatkach do rozprawy zawarto przede wszystkim szczegółowy opis programu VETO stworzonego przez autora na potrzeby analiz off-line danych generowanych przez skonstruowany spektrometr - Dodatek A. Program ten, wyposażony w graficzny interfejs użytkownika, można podzielić na dwie części - podstawową (BASIC) służącą do jak najszybszego i najbardziej przyjaznego dla użytkownika tworzenia widm antykoincydencyjnych detektora germanowego oraz zaawansowaną (ADVANCED) - przeznaczoną do bardziej skomplikowanych analiz danych wyjściowych digitizera.

W ramach wykonanej pracy zrealizowano postawione we wstępie rozprawy cele badawcze:

- skonstruowano niskotłowy, cyfrowy spektrometr promieniowania γ ,
- przeprowadzono konfigurację i optymalizację parametrów pracy spektrometru,

- stworzono oprogramowanie służące do obsługi i analizy danych generowanych przez spektrometr,
- wykonano pomiary wybranych próbek i analizę stężeń aktywności obecnych w nich izotopów gamma - promieniotwórczych,
- rozpoczęto monitoring i badanie zmian intensywności, rejestrowanego na poziomie gruntu, strumienia promieniowania kosmicznego.

Biorąc pod uwagę powyższe zrealizowane cele można stwierdzić prawdziwość tezy pracy: wykorzystując cyfrowy system akwizycji danych pomiarowych niskotłowego spektrometru promieniowania gamma, możliwe staje się rozszerzenie potencjału badawczego urządzenia poprzez wieloraką eksplorację danych pomiarowych.

Plany rozwojowe

Modułowa konstrukcja spektrometru, wykorzystanie cyfrowej akwizycji danych oraz analiza danych off-line, dają możliwość rozwoju i rozbudowy skonstruowanego stanowiska badawczego w przyszłości, prowadzącego przede wszystkim do dalszego zmniejszania tła promieniotwórczego spektrometru. Proponowane drogi rozwoju to:

1. wykorzystanie pozostałych dwóch wolnych wejść digitizera CAEN DT5725 poprzez montaż dodatkowych detektorów osłony aktywnej, bądź to na zewnątrz osłony pasywnej lub też wewnątrz komory pomiarowej, co pozwoli na wykorzystanie ich w roli detektorów antykomptonowskich lub detektorów koincydencji β - γ ,
2. dodanie kolejnego cyfrowego analizatora danych, zsynchronizowanego z obecnie wykorzystywanym digitizerem, co pozwoli dodać od 4 do 8 kolejnych detektorów pracujących w systemie (anty)koincydencyjnym,
3. zaimplementowanie analiz kształtu impulsów rejestrowanych przez detektor germanowy (ang. *pulse shape discrimination, PSD*) np. w oparciu o sztuczne sieci neuronowe.

BIBLIOGRAFIA

- [1] P. Adamson i in. “Observation of muon intensity variations by season with the MINOS far detector”. W: *Phys. Rev. D - Part. Fields, Gravit. Cosmol.* 81.1 (2010), s. 1–9. ISSN: 15502368. DOI: [10.1103/PhysRevD.81.012001](https://doi.org/10.1103/PhysRevD.81.012001). eprint: [arXiv:0909.4012v3](https://arxiv.org/abs/0909.4012v3).
- [2] International Atomic Energy Agency. *Review of Sealed Source Designs and Manufacturing Techniques Affecting Disused Source Management, IAEA-TECDOC-1690, IAEA, Vienna (2012)*. URL: <https://www.iaea.org/publications/8850/review-of-sealed-source-designs-and-manufacturing-techniques-affecting-disused-source-management> (term. wiz. 09.03.2020).
- [3] The Telescope Array. URL: <http://www.telescopearray.org/> (term. wiz. 10.03.2020).
- [4] K. P. Arunbabu i in. “Atmospheric temperature dependence of muon intensity measured by the GRAPES-3 experiment”. W: *35th International Cosmic Ray Conference — ICRC2017* (2017).
- [5] Obserwatorium Pierre Auger. URL: <https://www.auger.org/> (term. wiz. 10.03.2020).
- [6] M. Baginova, P. Vojtyla i P. Povinec. “Investigation of neutron interactions with Ge detectors”. W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 897.December 2017 (2018), s. 22–31. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2018.04.036](https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.04.036). URL: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.04.036>.
- [7] J. Bartels. “The geomagnetic measures for the time-variations of solar corpuscular radiation, described for use in correlation studies in other geophysical fields”. W: *Ann. Intern. Geophys. Year 4* (1957), s. 227–236.
- [8] J. Bartels. “The technique of scaling indices K and Q of geomagnetic activity”. W: *Ann. Intern. Geophys. Year 4* (1957), s. 215–226.
- [9] *Base Antartica Marambio*. URL: <https://web.archive.org/web/20130120065544/http://www.marambio.aq/marambio.html> (term. wiz. 15.03.2020).
- [10] S. Bashir i in. “Analog-to-digital converters: A comparative study and performance analysis”. W: *Proceeding - IEEE International Conference on Computing, Communication and Automation, ICCCA 2016* May (2017), s. 999–1001. DOI: [10.1109/CCAA.2016.7813861](https://doi.org/10.1109/CCAA.2016.7813861).
- [11] M. Beech i D. Steel. “On the Definition of the Term Meteoroid”. W: *Quarterly Journal of the Royal Astronomical Society* 36 (1995), s. 281.

- [12] R. Blandford, P. Simeon i Y. Yuan. “Cosmic ray origins: An introduction”. W: *Nuclear Physics B - Proceedings Supplements* 256-257 (2014), s. 9–22. ISSN: 09205632. DOI: [10.1016/j.nuclphysbps.2014.10.002](https://doi.org/10.1016/j.nuclphysbps.2014.10.002). eprint: 1409.2589. URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nuclphysbps.2014.10.002>.
- [13] M. Blicharska i in. “Separation of fission produced ^{106}Ru from simulated high level nuclear wastes for production of brachytherapy sources”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 298.3 (2013), s. 1713–1716. ISSN: 02365731. DOI: [10.1007/s10967-013-2570-3](https://doi.org/10.1007/s10967-013-2570-3).
- [14] S. Błażej. *Rozprawa doktorska: Dynamika zmian aktywności wybranych długożyłowych pierwiastków promieniotwórczych w powietrzu*. IFJ PAN, 2012.
- [15] S. Błażej i J. W. Mietelski. “Cosmogenic ^{22}Na , ^7Be and terrestrial ^{137}Cs , ^{40}K radionuclides in ground level air samples collected weekly in Kraków (Poland) over years 2003-2006”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 300.2 (2014), s. 747–756. ISSN: 15882780. DOI: [10.1007/s10967-014-3049-6](https://doi.org/10.1007/s10967-014-3049-6).
- [16] J. Borovička. “About the definition of meteoroid, asteroid, and related terms”. W: *WGN, Journal of the International Meteor Organization* 44.2 (kw. 2016), s. 31–34.
- [17] P. Bossew. “A very long-term HPGe-background gamma spectrum”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 62.4 (2005), s. 635–644. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2004.09.006](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2004.09.006).
- [18] P. Bossew i in. “An episode of Ru-106 in air over Europe, September–October 2017 – Geographical distribution of inhalation dose over Europe”. W: *Journal of Environmental Radioactivity* 205-206 (2019), s. 79–92. ISSN: 0265-931X. DOI: [10.1016/J.JENVRAD.2019.05.004](https://doi.org/10.1016/J.JENVRAD.2019.05.004). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0265931X18306039?via%7B%5C%7D3Dihub>.
- [19] T. Brachaniec i J. W. Kosiński. “Distribution of Pultusk Meteorite fragments”. W: *45th Lunar and Planetary Science Conference* (2014).
- [20] The British i Irish Meteorite Society. URL: <http://www.bimsociety.org/meteorites11.shtml> (term. wiz. 21. 03. 2020).
- [21] R. Britton i in. “A high-efficiency HPGe coincidence system for environmental analysis”. W: *J. Environ. Radioact.* 146 (2015), s. 1–5. ISSN: 18791700. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2015.03.033](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.033). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.03.033>.
- [22] R. Bronson. *The start of the nuclear age*. URL: <https://thebulletin.org/2015/07/the-start-of-the-nuclear-age/> (term. wiz. 24. 01. 2020).
- [23] J. L. Burnett i A. V. Davies. “Cosmic veto gamma-spectrometry for Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty samples”. W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 747.May 2014 (2014), s. 37–40. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2014.02.027](https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.02.027). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2014.02.027>.
- [24] CAEN SpA. *Application Note AN2508, CAEN digital pulse height analyser—a digital approach to radiation spectroscopy*. URL: <https://www.caen.it> (term. wiz. 05. 01. 2020).

- [25] CAEN SpA. *CoMPASS Multiparametric DAQ Software for Physics Applications, Rev. 4*. URL: <https://www.caen.it> (term. wiz. 09. 11. 2019).
- [26] CAEN SpA. *MC2Analyzer User Manual Rev. 4*. URL: <https://www.caen.it> (term. wiz. 09. 11. 2019).
- [27] CAEN SpA. *UM3148 - DT5730/DT5725—User Manual*. 2016. URL: <https://www.caen.it> (term. wiz. 09. 11. 2019).
- [28] CAEN SpA. *WP2081 - Digital Pulse Processing in Nuclear Physics, Rev. 3*. URL: https://www.caen.it/documents/News/32/WP2081_digitalpulseprocessing_03.pdf (term. wiz. 09. 11. 2019).
- [29] I. R. Cameron i Z. Top. “Measurement of Al26 in stone meteorites and its use in the derivation of orbital elements”. W: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 38.6 (1974), s. 899–909. ISSN: 0016-7037. DOI: [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(74\)90063-5](https://doi.org/10.1016/0016-7037(74)90063-5). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0016703774900635>.
- [30] S. Cecchini i M. Spurio. “Atmospheric muons: experimental aspects”. W: (2012), s. 185–196. DOI: [10.5194/gi-1-185-2012](https://doi.org/10.5194/gi-1-185-2012). arXiv: [1208.1171](https://arxiv.org/abs/1208.1171). URL: <http://arxiv.org/abs/1208.1171>.
- [31] M. Cesnek i in. “Iron meteorite fragment studied by atomic and nuclear analytical methods”. W: *AIP Conf. Proc.* 1781 (2016). ISSN: 15517616. DOI: [10.1063/1.4966011](https://doi.org/10.1063/1.4966011).
- [32] J.H. Chao. “Neutron-induced gamma-rays in germanium detectors”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 44.3 (1993), s. 605–611. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/096980439390177C%7B%5C%%7D5Cnpapers2://publication/uuid/60798138-2314-4A3C-A91F-79FA1B0E00EF>.
- [33] P. Chardonnet, P. Salati i R. Taillet. “Antimatter cosmic rays”. W: *New Astronomy* 4 (1999), s. 275–285. DOI: [10.1016/S1384-1076\(99\)00033-0](https://doi.org/10.1016/S1384-1076(99)00033-0).
- [34] Z. Chen i in. “Effect of nonstationarities on detrended fluctuation analysis”. W: *Phys. Rev. E - Stat. Physics, Plasmas, Fluids, Relat. Interdiscip. Top.* 65.4 (2002), s. 15. ISSN: 1063651X. DOI: [10.1103/PhysRevE.65.041107](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.65.041107). arXiv: [0111103 \[physics\]](https://arxiv.org/abs/0111103).
- [35] F. Close, M. Marten i C. Sutton. *The Particle Explosion*. Oxford University Press, 1986. ISBN: 0-19-851965-6.
- [36] *Code::Blocks IDE*. URL: <http://www.codeblocks.org/> (term. wiz. 28. 11. 2019).
- [37] M. Conversi, E. Pancini i O. Piccioni. “On the Disintegration of Negative Mesons”. W: *Phys. Rev.* 71 (3 lut. 1947), s. 209–210. DOI: [10.1103/PhysRev.71.209](https://doi.org/10.1103/PhysRev.71.209). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.71.209>.
- [38] W. N. Cottingham i D. A. Greenwood. *An Introduction to Nuclear Physics*. Second Edition. Cambridge University Press, 2001. ISBN: 0521657334.
- [39] *Current Space Weather Conditions - F10.7 cm Radio Emissions*. URL: <https://www.swpc.noaa.gov/phenomena/f107-cm-radio-emissions> (term. wiz. 28. 05. 2020).

- [40] L. A. Currie. “Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination: Application to Radiochemistry”. W: *Anal. Chem.* 40.3 (1968), s. 586–593. ISSN: 15206882. DOI: [10.1021/ac60259a007](https://doi.org/10.1021/ac60259a007).
- [41] M. A. Dayananda. *Dissertation: Correlation Studies of Cosmic Ray Flux and Atmospheric and Space Weather*. Georgia State University, 2013.
- [42] R. R. S. De Mendonça i in. “Analysis of atmospheric pressure and temperature effects on cosmic ray measurements”. W: *J. Geophys. Res. Sp. Phys.* 118.4 (2013), s. 1403–1409. ISSN: 21699402. DOI: [10.1029/2012JA018026](https://doi.org/10.1029/2012JA018026).
- [43] K. Debertin i R. G. Helmer. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North Holland, 1988.
- [44] dobrapogoda24.pl. *Niż wtórny Ksawery: co najmniej 9 ofiar i ponad 10 tys. interwencji strażaków!* URL: <https://dobrapogoda24.pl/artykul/bilans-xavier-ksawery> (term. wiz. 06.03.2020).
- [45] L.I. Dorman. *Cosmic Rays in the Earth’s Atmosphere and Underground*. T. 303. Springer Science+Business Media, 2004. ISBN: 978-94-015-6987-3. DOI: [10.1007/978-1-4020-2113-8](https://doi.org/10.1007/978-1-4020-2113-8).
- [46] *DT5725 8 Channel 14-bit 250 MS/s Digitizer*. URL: <https://www.caen.it/products/dt5725/> (term. wiz. 29.12.2019).
- [47] A. Dumitrescu. “Comparison of a digital and an analogical gamma spectrometer at low count rates”. W: *UPB Sci. Bull. Ser. A Appl. Math. Phys.* 73.4 (2011), s. 127–138. ISSN: 12237027.
- [48] L. Dyrud i in. “Plasma and electromagnetic simulations of meteor head echo radar reflections”. W: *Earth, Moon Planets* 102.1-4 (2008), s. 383–394. ISSN: 01679295. DOI: [10.1007/s11038-007-9189-8](https://doi.org/10.1007/s11038-007-9189-8).
- [49] B. Dziunikowski. *O fizyce i energii jądrowej*. Kraków: AGH Uczelniane Wydaw. Naukowo-Dydaktyczne, 2001.
- [50] J. Eberth i J. Simpson. “From Ge(Li) detectors to gamma-ray tracking arrays-50 years of gamma spectroscopy with germanium detectors”. W: *Prog. Part. Nucl. Phys.* 60.2 (2008), s. 283–337. ISSN: 01466410. DOI: [10.1016/j.pnpnp.2007.09.001](https://doi.org/10.1016/j.pnpnp.2007.09.001).
- [51] B. Eckel. *Thinking in C++*. Edycja polska. Helion, 2002. ISBN: 8371977093.
- [52] *EFFTRAN Efficiency transfer and coincidence summing corrections for environmental gamma-ray spectrometry*. URL: <http://efftran.com/> (term. wiz. 27.03.2020).
- [53] C. Elsässer i in. “Continuous 25-yr aerosol records at coastal Antarctica: Part 2: Variability of the radionuclides ^7Be , ^{10}Be ^{210}Pb ”. W: *Tellus, Series B: Chemical and Physical Meteorology* 63.5 (2011), s. 920–934. ISSN: 02806509. DOI: [10.1111/j.1600-0889.2011.00543.x](https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2011.00543.x).
- [54] Encyclopaedia Britannica. *Alpha decay*. URL: <https://www.britannica.com/science/alpha-decay> (term. wiz. 27.01.2020).
- [55] ET Enterprises. *29 mm photomultiplier 9900B series data sheet*. URL: http://et-enterprises.com/images/data_sheets/9900B.pdf (term. wiz. 01.01.2020).

- [56] R. Fantucci, M. Di Martino i R. Serra. “Tree-ring dating of meteorite fall in Sikhote-Alin, Eastern Siberia - Russia”. W: *Int. J. Astrobiol.* 11.1 (2012), s. 37–42. ISSN: 14735504. DOI: [10.1017/S1473550411000309](https://doi.org/10.1017/S1473550411000309).
- [57] H. W. Feely, R. J. Larsen i C.G. Sanderson. “Factors that cause seasonal variations in Beryllium-7 concentrations in surface air”. W: *J. Environ. Radioact.* 9.3 (1989), s. 223–249. ISSN: 0265931X. DOI: [10.1016/0265-931X\(89\)90046-5](https://doi.org/10.1016/0265-931X(89)90046-5).
- [58] *File:Antarctica location map.svg*. URL: https://en.wikipedia.org/wiki/File:Antarctica_location_map.svg (term. wiz. 16.06.2020).
- [59] *Fire Information for Resource Management System (FIRMS)*. URL: <https://firms.modaps.eosdis.nasa.gov/> (term. wiz. 29.05.2020).
- [60] *Fires in Ukraine in the exclusion zone around the Chernobyl power plant: First results of 137Cs measurements in France*. URL: https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Documents/IRSN_Information-Report_Fires-in-Ukraine-in-the-Exclusion-Zone-around-chernobyl-NPP_24042020.pdf (term. wiz. 29.05.2020).
- [61] *Fires in Ukraine in the exclusion zone around the Chernobyl power plant: Latest measurement results and assessment of environmental and health consequences*. URL: https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Documents/IRSN_Information-Report_Fires-in-Ukraine-in-the-Exclusion-Zone-around-chernobyl-NPP_05052020.pdf (term. wiz. 29.05.2020).
- [62] K. Fuse i E. Anders. “Aluminum-26 in meteorites—VI. Achondrites”. W: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 33.6 (1969), s. 653–670. ISSN: 0016-7037. DOI: [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(69\)90113-6](https://doi.org/10.1016/0016-7037(69)90113-6). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0016703769901136>.
- [63] *General purpose plastic scintillator, EJ-200, EJ-204, EJ-208, EJ-212*. URL: https://eljentechnology.com/images/products/data_sheets/EJ-200_EJ-204_EJ-208_EJ-212.pdf (term. wiz. 28.12.2019).
- [64] *Genie 2000 Basic Spectroscopy Software*. URL: <https://www.mirion.com/products/genie-2000-basic-spectroscopy-software> (term. wiz. 07.12.2019).
- [65] P. Gifani i in. “Optimal fractal-scaling analysis of human EEG dynamic for depth of anesthesia quantification”. W: *J. Franklin Inst.* 344.3-4 (2007), s. 212–229. ISSN: 00160032. DOI: [10.1016/j.jfranklin.2006.08.004](https://doi.org/10.1016/j.jfranklin.2006.08.004).
- [66] G. Gilmore i J. D. Hemingway. *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. Second Edition. John Wiley & Sons, 2008. ISBN: 978-0470861967.
- [67] *GNU Octave Scientific Programming Language*. URL: <https://www.gnu.org/software/octave/> (term. wiz. 23.04.2020).
- [68] K. Gorzkiewicz i in. “Low - background, digital gamma - ray spectrometer with BEGe detector and active shield: commissioning , optimisation and software development”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 0123456789 (2019). ISSN: 1588-2780. DOI: [10.1007/s10967-019-06853-7](https://doi.org/10.1007/s10967-019-06853-7). URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06853-7>.

- [69] S. Grabowska i in. "Gamma emitters on micro-becquerel activity level in air at Kraków (Poland)". W: *J. Atmos. ...* 46 (2003), s. 103–116. URL: <http://link.springer.com/article/10.1023/A:1026067614448>.
- [70] J. Grębosz. *Opus magnum C++11. Programowanie w języku C++*. Helion, 2017. ISBN: 9788328342149.
- [71] P. K. F. Griender. *Cosmic Rays at Earth: Researcher's Reference Manual and Data Book*. First Edition. Elsevier Science B.V., 2001. ISBN: 0444507108.
- [72] K. Guntheroth. *Optimized C++*. O'Reilly Media, 2015. ISBN: 9781491922064.
- [73] Z. Guzik i T. Krakowski. "Algorithms for digital γ -ray spectroscopy". W: *Nukleonika* 58.2 (2013), s. 333–338. ISSN: 00295922.
- [74] D. K. Haines i in. "Muon and neutron-induced background in gamma-ray spectrometry". W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 652.1 (paź. 2011), s. 326–329. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2011.01.137](https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.01.137).
- [75] S. S. Hardstone R. and Poil i in. "Detrended fluctuation analysis: A scale-free view on neuronal oscillations". W: *Front. Physiol.* 3 NOV.November (2012), s. 1–13. ISSN: 1664042X. DOI: [10.3389/fphys.2012.00450](https://doi.org/10.3389/fphys.2012.00450).
- [76] T. Hashimoto i in. "A Survey of Artificial Radionuclides in the Antarctic". W: *RADIOISOTOPES* 38.4 (1989), s. 209–218. DOI: [10.3769/radioisotopes.38.4_209](https://doi.org/10.3769/radioisotopes.38.4_209).
- [77] A. Haungs i in. "KCDC - The KASCADE Cosmic-ray Data Centre". W: *J. Phys. Conf. Ser.* 632.1 (2015). ISSN: 17426596. DOI: [10.1088/1742-6596/632/1/012011](https://doi.org/10.1088/1742-6596/632/1/012011). eprint: [1504.06696](https://arxiv.org/abs/1504.06696).
- [78] G. Hauser. "Cosmic ray-induced background in Ge-spectrometry". W: *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B* 83.1-2 (1993), s. 223–228. ISSN: 0168583X. DOI: [10.1016/0168-583X\(93\)95931-T](https://doi.org/10.1016/0168-583X(93)95931-T).
- [79] W. M. Haynes. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, 2016. ISBN: 9781498754293.
- [80] Z. He. "Review of the Shockley-Ramo theorem and its application in semiconductor gamma-ray detectors". W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 463.1-2 (2001), s. 250–267. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/S0168-9002\(01\)00223-6](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)00223-6).
- [81] F Heide i F Wlotzka. *Meteorites: messengers from space*. T. 33. 02. 1995, s. 33–0908–33–0908. ISBN: 9783540581055. DOI: [10.5860/choice.33-0908](https://doi.org/10.5860/choice.33-0908).
- [82] G. Heusser. "Background in ionizing radiation detection illustrated by ge-spectrometry". W: *Garcia-Leon M, Garcia-Tenorio R, (eds) Proceedings of the 3rd international summer school, low-level measurements of radioactivity in the environment* (1993).
- [83] G. Heusser i in. "GIOVE: a new detector setup for high sensitivity germanium spectroscopy at shallow depth". W: *Eur. Phys. J. C* 75.11 (2015), s. 1–16. ISSN: 14346052. DOI: [10.1140/epjc/s10052-015-3704-2](https://doi.org/10.1140/epjc/s10052-015-3704-2).

- [84] C. Y. E. Ho. *Cosmic Ray Muon Detection using NaI Detectors and Plastic Scintillators*. URL: <https://home.fnal.gov/~group/WORK/muonDetection.pdf> (term. wiz. 15.01.2020).
- [85] P. Homola. *Cosmic Rays and Earthquakes?* URL: https://indico.ifj.edu.pl/event/182/contributions/771/attachments/602/686/CREDO2017_P.Homola_Cosmic_rays_and_earthquakes.pdf (term. wiz. 26.05.2020).
- [86] P. Homola i CREDO Collaboration. *The Cosmic Ray Extremely Distributed Observatory*. URL: <https://credo.science/> (term. wiz. 28.10.2019).
- [87] P. Homola i in. “Search for Extensive Photon Cascades with the Cosmic-Ray Extremely Distributed Observatory”. W: (2018). DOI: [10.23727/CERN-Proceedings-2018-001.289](https://doi.org/10.23727/CERN-Proceedings-2018-001.289). eprint: [1804.05614](https://arxiv.org/abs/1804.05614). URL: <http://arxiv.org/abs/1804.05614> URL: <http://dx.doi.org/10.23727/CERN-Proceedings-2018-001.289>.
- [88] T. Hopp i in. “Non-natural ruthenium isotope ratios of the undeclared 2017 atmospheric release consistent with civilian nuclear activities”. W: *Nat. Commun.* 11.1 (2020), s. 1–7. ISSN: 20411723. DOI: [10.1038/s41467-020-16316-3](https://doi.org/10.1038/s41467-020-16316-3). URL: <http://dx.doi.org/10.1038/s41467-020-16316-3>.
- [89] J. H. Hubbell. “Electron-positron pair production by photons: A historical overview”. W: *Radiation Physics and Chemistry* 75.6 (2006), s. 614–623. ISSN: 0969806X. DOI: [10.1016/j.radphyschem.2005.10.008](https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2005.10.008).
- [90] J.H. Hubbell, H.A. Gimm i I. Øverbø. “Pair, Triplet, and Total Atomic Cross Sections (and Mass Attenuation Coefficients) for 1 MeV–100 GeV Photons in Elements Z=1 to 100”. W: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 9.4 (1980), s. 1023–1148. DOI: [10.1063/1.555629](https://doi.org/10.1063/1.555629).
- [91] M. Hult. *Underground Gamma-ray Spectrometry in HADES*. URL: <https://slideplayer.com/slide/9879482/> (term. wiz. 29.05.2020).
- [92] S. Hurtado, M. García-León i R. García-Tenorio. “Optimized background reduction in low-level gamma-ray spectrometry at a surface laboratory”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 64.9 (2006), s. 1006–1012. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2006.01.008](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2006.01.008).
- [93] *IAEA Sees No Radiation-Related Risk from Fires in Chernobyl Exclusion Zone*. URL: <https://www.iaea.org/newscenter/pressreleases/iaea-sees-no-radiation-related-risk-from-fires-in-chnobyl-exclusion-zone> (term. wiz. 29.05.2020).
- [94] *Indices of Global Geomagnetic Activity*. URL: <https://www.gfz-potsdam.de/en/kp-index/> (term. wiz. 21.05.2020).
- [95] *Information note Fires in Ukraine in the exclusion zone around the Chernobyl power plant: Point position*. URL: https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Documents/IRSN_Information-Report_Fires-in-Ukraine-in-the-Exclusion-Zone-around-chnobyl-NPP_15042020.pdf (term. wiz. 29.05.2020).
- [96] *Information note no 3; Fires in Ukraine in the exclusion zone and around the Chernobyl power plant: Point position*. URL: https://www.irsn.fr/EN/newsroom/News/Documents/IRSN_Information-Report_Fires-in-Ukraine-in-the-Exclusion-Zone-around-chnobyl-NPP_17042020.pdf (term. wiz. 29.05.2020).

- [97] International Atomic Energy Agency. *Radioisotopes*. URL: <https://www.iaea.org/topics/nuclear-science/isotopes/radioisotopes> (term. wiz. 26. 01. 2020).
- [98] *International Q-Days and D-Days*. URL: <http://wdc.kugi.kyoto-u.ac.jp/qddays/> (term. wiz. 21. 05. 2020).
- [99] IRSN. “Report on the IRSN ’ s investigations following the widespread detection of 106 Ru in Europe early October 2017”. W: 106.October 2017 (2018), s. 32. URL: <http://logi103.xiti.com/go.click?xts=410711%7B%5C%7Ds2=6%7B%5C%7Dp=Ru106-Report-20180206%7B%5C%7Dlic=T%7B%5C%7Dtype=click%7B%5C%7Durl=http://www.irsn.fr/FR/Actualites%7B%5C%7Dpresse/Actualites/Documents/IRSN%7B%5C%7DReport-on-IRSN-investigations-of-Ru-106-in-Europe-in-october-2017.pdf>.
- [100] H. Janssen. “Spline techniques for fitting efficiency curves in gamma-ray spectrometry”. W: *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A* 286.3 (1990), s. 398–402. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/0168-9002\(90\)90886-B](https://doi.org/10.1016/0168-9002(90)90886-B).
- [101] Narodowe Centrum Badań Jądrowych. *Wielokanałowy analizator Tukan 8k*. URL: <http://tukan.ncbj.gov.pl/?tukan8k,1> (term. wiz. 14. 02. 2020).
- [102] P. Jodłowski. *Rozprawa doktorska: Spektrometria promieniowania gamma prób środowiskowych; nuklidy promieniotwórcze w środowisku przyrodniczym* Gorców. AGH, 2005.
- [103] N. Jovančević i in. “Neutron induced background gamma activity in low-level Ge-spectroscopy systems”. W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 612.2 (2010), s. 303–308. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2009.10.059](https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.10.059).
- [104] J. W. Kantelhardt i in. “Detecting long-range correlations with detrended fluctuation analysis”. W: *Phys. A Stat. Mech. its Appl.* 295.3-4 (2001), s. 441–454. ISSN: 03784371. DOI: [10.1016/S0378-4371\(01\)00144-3](https://doi.org/10.1016/S0378-4371(01)00144-3). eprint: [0102214](https://arxiv.org/abs/cond-mat/0102214) (cond-mat).
- [105] R. Kierepko. *Rozprawa doktorska: Identyfikacja aktualnych źródeł plutonu w powietrzu*. IFJ PAN, 2010.
- [106] A. Kitlas Golińska. “Detrended fluctuation analysis (DFA) in biomedical signal processing: Selected examples”. W: *Stud. Logic, Gramm. Rhetor.* 29.42 (2012), s. 107–115. ISSN: 0860150X.
- [107] G. F. Knoll. *Radiation Detection and Measurement*. Third Edition. John Wiley & Sons, 2008. ISBN: 978-8126522606.
- [108] *Komunikat IFJ PAN na temat sytuacji radiacyjnej na terenie Polski – brak zagrożenia*. URL: <https://www.ifj.edu.pl/aktualnosci/2020/20-04-19/> (term. wiz. 29. 05. 2020).
- [109] *Komunikat NCBJ: Brak problemów technicznych, brak anomalii promieniowania tła*. URL: <https://www.ncbj.gov.pl/aktualnosci/komunikat-ncbj-brak-problemow-technicznych-brak-anomalii-promieniowania-tla> (term. wiz. 29. 05. 2020).
- [110] *Komunikat PAA w związku z pojawiającymi się w przestrzeni publicznej, nieprawdziwymi informacjami na temat sytuacji radiacyjnej na terenie kraju*. URL:

- https://www.paa.gov.pl/aktualnosc-546-komunikat_paa_w_zwiazku_z_pojawiajacymi.html (term. wiz. 29.05.2020).
- [111] *Komunikat Prezesa Państwowej Agencji Atomistyki w sprawie sytuacji radiacyjnej na terenie Polski w związku z pożarami lasów w Strefie Wykluczenia wokół Czarnobylskiej Elektrowni Jądrowej*. URL: https://www.paa.gov.pl/aktualnosc-544-komunikat_prezesa_panstwowej_agencji.html (term. wiz. 29.05.2020).
- [112] K. Korbel. *Laboratorium elektroniki jądrowej*. Kraków: Wydawnictwa AGH, 2002.
- [113] K. Korbel. *Układy elektroniki front-end*. AGH Uczelniane Wydawnictwa Naukowo-Dydaktyczne, 2000.
- [114] J. W. Kosiński. “Meteoryt Pułtusk. 150 lat eksploracji”. W: *ACTA SOCIETATIS METHEORITICAE POLONORUM Rocznik Polskiego Towarzystwa Meteorytowego* 10 (2019).
- [115] J. W. Kosiński i E. Kamińska. “Upadek i rozmieszczenie fragmentów meteorytu Pułtusk”. W: *ACTA SOCIETATIS METHEORITICAE POLONORUM Rocznik Polskiego Towarzystwa Meteorytowego* 2 (2011).
- [116] M. Kovalyov i S. Kovalyov. “On the relationship between cosmic rays, solar activity and powerful earthquakes”. W: (2014), s. 1–22. arXiv: [1403.5728](https://arxiv.org/abs/1403.5728). URL: <http://arxiv.org/abs/1403.5728>.
- [117] K. Kozak. *Rozprawa doktorska: Pomiarzy skażeń gamma promieniotwórczych w sytuacji normalnej i awaryjnej*. IFJ PAN, 1998.
- [118] E. L. Krinov. “Fragmentation of the Sikhote-Alin Meteoritic Body”. W: *Meteoritics* 9.3 (wrz. 1974), s. 255. DOI: [10.1111/j.1945-5100.1974.tb00081.x](https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.1974.tb00081.x).
- [119] E. L. Krinov. “New Studies of the Sikhote-Alin Iron Meteorite Shower”. W: *Meteoritics* 6.3 (wrz. 1971), s. 127. DOI: [10.1111/j.1945-5100.1971.tb00104.x](https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.1971.tb00104.x).
- [120] K. Kudela i R. Langer. “On quasi-periodic variations of low-energy cosmic rays observed near earth”. W: *Radiat. Prot. Dosimetry* 164.4 (2015), s. 471–476. ISSN: 17423406. DOI: [10.1093/rpd/ncv325](https://doi.org/10.1093/rpd/ncv325).
- [121] V. A. Kudryavtsev, N. J.C. Spooner i J. E. McMillan. “Simulations of muon-induced neutron flux at large depths underground”. W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 505.3 (2003), s. 688–698. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/S0168-9002\(03\)00983-5](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)00983-5). eprint: [0303007v1](https://arxiv.org/abs/hep-ex/0303007) (arXiv:hep-ex).
- [122] IAEA Environmental Laboratories. *Certified Reference Material IAEA-330, Radionuclides in spinach*. data wydania: maj 2009, Wiedeń, Austria.
- [123] IAEA Environmental Laboratories. *Certified Reference Material IAEA-444 Gamma emitting radionuclides in soil*. data wydania: kwiecień 2010, Wiedeń, Austria.
- [124] IAEA Environmental Laboratories. *Reference Material IAEA-375, Radionuclides and trace elements in soil*. data wydania: styczeń 2000, Wiedeń, Austria.

- [125] G. Lambert, B. Ardouin i J. Sanak. “Atmospheric transport of trace elements toward Antarctica”. W: *Tellus B* 42.1 (1990), s. 76–82. ISSN: 16000889. DOI: [10.1034/j.1600-0889.1990.00009.x](https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.1990.00009.x).
- [126] M. F. L’Annunziata. *Handbook of Radioactivity Analysis*. Third Edition. Elsevier Inc, 2012. ISBN: 978-0-12-384873-4.
- [127] M. Laubenstein i in. “Cosmogenic Radionuclides in the Softmany (L6) Meteorite”. W: (2012), s. 45–51. DOI: [10.5277/met120106](https://doi.org/10.5277/met120106).
- [128] M. Laubenstein i in. “Underground measurements of radioactivity”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 61.2-3 (2004), s. 167–172. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/j.apradiso.2004.03.039](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2004.03.039).
- [129] A. P. Leppänen i in. “Cosmogenic ^7Be and ^{22}Na in Finland: Production, observed periodicities and the connection to climatic phenomena”. W: *J. Atmos. Solar-Terrestrial Phys.* 74 (2012), s. 164–180. ISSN: 13646826. DOI: [10.1016/j.jastp.2011.10.017](https://doi.org/10.1016/j.jastp.2011.10.017).
- [130] I. Leya i J. Masarik. “Cosmogenic nuclides in stony meteorites revisited”. W: *Meteorit. Planet. Sci.* 44.7 (2009), s. 1061–1086. ISSN: 10869379. DOI: [10.1111/j.1945-5100.2009.tb00788.x](https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.2009.tb00788.x).
- [131] E. Li i in. “Multifractal detrended fluctuation analysis of streamflow in the yellow river basin, China”. W: *Water (Switzerland)* 7.4 (2015), s. 1670–1686. ISSN: 20734441. DOI: [10.3390/w7041670](https://doi.org/10.3390/w7041670).
- [132] M. E. Lipschutz, P. Signer i E. Anders. “Cosmic ray exposure ages of iron meteorites by the $\text{Ne}^{21}/\text{Al}^{26}$ method”. W: *J. Geophys. Res.* 70.6 (1965), s. 1473–1489. ISSN: 0148-0227. DOI: [10.1029/jz070i006p01473](https://doi.org/10.1029/jz070i006p01473).
- [133] L. B. Lockhart. “Atmospheric radioactivity in South America and Antarctica”. W: *J. Geophys. Res.* 65.12 (1960), s. 3999–4005. ISSN: 0148-0227. DOI: [10.1029/jz065i012p03999](https://doi.org/10.1029/jz065i012p03999).
- [134] L. B. Lockhart, Robert L. Patterson i Allen W. Saunders. “Airborne radioactivity in Antarctica”. W: *J. Geophys. Res.* 71.8 (1966), s. 1985–1991. DOI: [10.1029/jz071i008p01985](https://doi.org/10.1029/jz071i008p01985).
- [135] P. Łuczak. *Rozprawa doktorska: Investigation of muons in extensive air showers with the KASCADE-Grande Muon Tracking Detector*. National Centre for Nuclear Research, Department of Cosmic Ray Physics in Łódź, Poland, 2012.
- [136] W. Maenhaut, W. H. Zoller i D. G. Coles. “Radionuclides in the south pole atmosphere”. W: *Journal of Geophysical Research* 84.C6 (1979), s. 3131. ISSN: 0148-0227. DOI: [10.1029/jc084ic06p03131](https://doi.org/10.1029/jc084ic06p03131).
- [137] B. B. Mandelbrot i J. R. Wallis. “Some-Long-Run Properties of Geophysical Records”. W: *Fractals Earth Sci.* 2 (1995), s. 41–64. DOI: [10.1007/978-1-4899-1397-5_2](https://doi.org/10.1007/978-1-4899-1397-5_2).
- [138] N. Marković i in. “Background reduction at DTU Nutech surface gamma laboratory”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 151.April (2019), s. 30–38. ISSN: 18729800. DOI:

- 10.1016/j.apradiso.2019.05.014. URL: <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.05.014>.
- [139] O. Masson i in. “Airborne concentrations and chemical considerations of radioactive ruthenium from an undeclared major nuclear release in 2017”. W: *Proceedings of the National Academy of Sciences* 116.34 (2019), s. 16750–16759. ISSN: 0027-8424. DOI: [10.1073/pnas.1907571116](https://doi.org/10.1073/pnas.1907571116). eprint: <https://www.pnas.org/content/116/34/16750.full.pdf>. URL: <https://www.pnas.org/content/116/34/16750>.
- [140] P. Mayles, A. Nahum i J. C. Rosenwald. *Handbook of Radiotherapy Physics*. Taylor & Francis Group, 2007. ISBN: 0750308605.
- [141] S. W. McIntosh i in. “On The Relationship Between Sunspot Cycle 23 And The Evolution Of Small-scale Magnetic Activity”. W: (), s. 1–36. eprint: [arXiv:1403.3071v3](https://arxiv.org/abs/1403.3071v3).
- [142] Polskie Towarzystwo Meteorytowe. *Klasyfikacja meteorytów*. URL: <http://www.ptmet.org.pl/old/kat-3-kl.htm> (term. wiz. 19.03.2020).
- [143] J. W. Mietelski. “Detection of background thermal neutrons in a modified low - background germanium gamma - ray spectrometer”. W: *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 0123456789 (2019). ISSN: 1588-2780. DOI: [10.1007/s10967-019-06843-9](https://doi.org/10.1007/s10967-019-06843-9). URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06843-9>.
- [144] J. W. Mietelski, R. Broda i J. Sieniawski. “Long lived isotopes in the Chernobyl radioactive cloud at Krakow”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry Letters* 127(5) (1988), s. 367–378.
- [145] J. W. Mietelski i P. P. Povinec. “Environmental radioactivity aspects of recent nuclear accidents associated with undeclared nuclear activities and suggestion for new monitoring strategies”. W: *J. Environ. Radioact.* 214-215. January (2020), s. 106151. ISSN: 18791700. DOI: [10.1016/j.jenvrad.2019.106151](https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.106151). URL: <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2019.106151>.
- [146] J. W. Mietelski i in. “Long-range transport of gaseous ¹³¹I and other radionuclides from Fukushima accident to Southern Poland”. W: *Atmospheric Environment* 91 (2014), s. 137–145. ISSN: 18732844. DOI: [10.1016/j.atmosenv.2014.03.065](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.03.065).
- [147] J.W. Mietelski i in. “Background effects observed with a low-level gamma - spectrometer with muon veto detector. Conference & Symposium Papers 26/P”. W: *International conference on isotopes in environmental studies, aquatic forum, Monaco, 25–29 Oct. 2004, IAEA-CN-118/159, pp 538–542* (2004).
- [148] P. M. Millman. “Terminology in Meteoritic Astronomy”. W: *Meteoritics* 2 (sty. 1963), s. 7–11.
- [149] Mirion Technologies (CANBERRA). *Broad Energy Germanium Detectors Overview, OPS-821 - 03/2019*. URL: www.mirion.com (term. wiz. 04.11.2019).
- [150] R. Modzelewska i M. V. Alania. “Dependence of the 27-day variation of cosmic rays on the global magnetic field of the Sun”. W: *Adv. Sp. Res.* 50.6 (2012), s. 716–724. ISSN: 02731177. DOI: [10.1016/j.asr.2011.07.022](https://doi.org/10.1016/j.asr.2011.07.022).

- [151] M. S. Movahed i in. “Multifractal detrended fluctuation analysis of sunspot time series”. W: *J. Stat. Mech. Theory Exp.* 02003.2 (2006). ISSN: 17425468. DOI: [10.1088/1742-5468/2006/02/P02003](https://doi.org/10.1088/1742-5468/2006/02/P02003). eprint: [0508149](https://arxiv.org/abs/physics/0508149) (physics).
- [152] E. Nalichowska. *Rozprawa doktorska: Badanie dynamiki zmian aktywności wybranych izotopów promieniotwórczych w atmosferze przy użyciu metod eksploracji danych*. IFJ PAN, 2019.
- [153] National Nuclear Data Center. *Interactive Chart of Nuclides*. URL: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/> (term. wiz. 04.10.2019).
- [154] Instytut Bezpieczeństwa Jądrowego Rosyjskiej Akademii Nauk. *2nd Meeting of the International Independent Scientific Commission for Investigation of Ru-106 Case in Europe in September—October 2017*. URL: <http://en.ibrae.ac.ru/newstext/911/> (term. wiz. 02.03.2020).
- [155] Instytut Języka Polskiego Polskiej Akademii Nauk. *Wielki Słownik Języka Polskiego*. URL: https://wsjp.pl/index.php?id__hasla=36674&id__znaczenia=5166425&l=21&ind=0 (term. wiz. 13.03.2020).
- [156] World Nuclear News. *Study points to Mayak as source of ruthenium release*. URL: https://www.world-nuclear-news.org/Articles/Study-points-to-Mayak-as-source-of-ruthenium-relea?fbclid=IwAR3f4HJ85nT-eoucpcZ_o9xINfcuiOafR1cNNv-U-ZQ3Wx009cCx8zowlUE&fbclid=IwAR3f4HJ85nT-eoucpcZ_o9xINfcuiOafR1cNNv-U-ZQ3Wx009cCx8zowlUE (term. wiz. 05.03.2020).
- [157] C. Nitsch i in. “Improvements to the muon veto of the Dortmund Low Background Facility”. W: *Applied Radiation and Isotopes* 126.August 2016 (2017), s. 201–203. ISSN: 18729800. DOI: [10.1016/j.apradiso.2017.02.041](https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.02.041). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2017.02.041>.
- [158] National Institute for Nuclear Physics. *The SOX Project is cancelled due to the impossibility of realizing the source with the required characteristics*. URL: <https://web.archive.org/web/20180309012856/http://home.infn.it/en/media-outreach/press-releases/2789-infn-e-cea-annullano-il-progetto-sox-per-l-impossibilita-di-realizzare-la-sorgente-con-le-caratteristiche-necessarie-all-esperimento-2> (term. wiz. 09.03.2020).
- [159] R. Núñez-Lagos i A. Virto. “Shielding and background reduction”. W: *Appl. Radiat. Isot.* 47.9-10 (1996), s. 1011–1021. ISSN: 09698043. DOI: [10.1016/S0969-8043\(96\)00100-5](https://doi.org/10.1016/S0969-8043(96)00100-5).
- [160] Ortec. *Introduction to Amplifiers*. URL: <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/other/amplifier-introduction.pdf?la=en> (term. wiz. 09.11.2019).
- [161] A. Owens. “Spectral degradation effects in an 86 cm³ Ge(HP) detector”. W: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 238.2 (1985), s. 473–478. ISSN: 0168-9002. DOI: [https://doi.org/10.1016/0168-9002\(85\)90487-5](https://doi.org/10.1016/0168-9002(85)90487-5).
- [162] J. Paepen i in. “Characterisation of plastic scintillators used as an active background shield for neutron detection”. W: *European Atomic Energy Community* (2016). ISSN: 1831-9424. DOI: [10.2787/810820](https://doi.org/10.2787/810820).

- [163] T. R. Parish i D. H. Bromwich. “Continental-Scale Simulation of the Antarctic Katabatic Wind Regime”. W: *Journal of Climate* 4.2 (lut. 1991), s. 135–146. ISSN: 0894-8755. DOI: [10.1175/1520-0442\(1991\)004<0135:CSSOTA>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(1991)004<0135:CSSOTA>2.0.CO;2). URL: [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(1991\)004%3C0135:CSSOTA%3E2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(1991)004%3C0135:CSSOTA%3E2.0.CO;2).
- [164] Particle Data Group. *Particle Listings*. URL: http://pdg.lbl.gov/2008/listings/contents_listings.html (term. wiz. 28. 01. 2020).
- [165] M. J. M. Pelgrom. *Analog-to-Digital Conversion*. Springer, 2013.
- [166] C. K. Peng i in. “Mosaic organization of DNA nucleotides”. W: *Phys. Rev. E* 49 (2 lut. 1994), s. 1685–1689. DOI: [10.1103/PhysRevE.49.1685](https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.49.1685). URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.49.1685>.
- [167] R. W. Perkins i in. “Cosmogenic and primordial radionuclide measurements in Apollo 11 lunar samples by nondestructive analysis”. W: *Geochimica et Cosmochimica Acta Supplement 1* (sty. 1970), s. 1455.
- [168] J. Poirier i T. Catanach. “Periodic variations in muon flux at project GRAND”. W: *Proceedings of the 32nd International Cosmic Ray Conference, ICRC 2011* 11 (2011), s. 173–176. DOI: [10.7529/ICRC2011/V02/0311](https://doi.org/10.7529/ICRC2011/V02/0311).
- [169] P. P. Povinec i in. “Analyses of radionuclides in the Oued Awlitis 001 and Galb Inal lunar meteorites by HPGe gamma-ray spectrometry”. W: *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 0123456789 (2020). ISSN: 15882780. DOI: [10.1007/s10967-020-07034-7](https://doi.org/10.1007/s10967-020-07034-7). URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-020-07034-7>.
- [170] Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej. *Stacje ASS-500*. URL: <http://www.clor.waw.pl/index.html> (term. wiz. 03. 01. 2020).
- [171] M. V. S. Rao i B. V. Sreekantan. *Extensive Air Showers*. World Scientific, 1998. ISBN: 9789810228880. URL: <https://books.google.pl/books?id=t5UZ3mtJVzAC>.
- [172] G. Rolph, A. Stein i B. Stunder. “Real-time Environmental Applications and Display sYstem: READY”. W: *Environ. Model. Softw.* 95 (2017), s. 210–228. ISSN: 13648152. DOI: [10.1016/j.envsoft.2017.06.025](https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025>.
- [173] Roshydromet. *O przypadkowym, wyjątkowo wysokim i wysokim zanieczyszczeniu środowiska na terytorium Federacji Rosyjskiej w okresie od 6 października do 13 października 2017 r. (po rosyjsku)*. URL: http://www.meteorf.ru/product/infomaterials/91/15078/?sphrase_id=134576 (term. wiz. 02. 03. 2020).
- [174] S. M. Ross. *Introduction to Probability Models, Tenth Edition*. Elsevier Inc., 2010. ISBN: 978-0-12-375686-2.
- [175] M. W. Rowe, M. A. Van Dilla i E. C. Anderson. “On the radioactivity of stone meteorites”. W: *Geochimica et Cosmochimica Acta* 27.10 (1963), s. 983–1001. ISSN: 0016-7037. DOI: [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(63\)90060-7](https://doi.org/10.1016/0016-7037(63)90060-7). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0016703763900607>.
- [176] A. E. Rubin i J. N. Grossman. “Meteorite and meteoroid: New comprehensive definitions”. W: *Meteorit. Planet. Sci.* 45.1 (2010), s. 114–122. ISSN: 10869379. DOI: [10.1111/j.1945-5100.2009.01009.x](https://doi.org/10.1111/j.1945-5100.2009.01009.x).

- [177] I. Sabbah i K. Kudela. “On quasi-periodicities in cosmic rays and their relationship to those in solar, interplanetary and geomagnetic activity”. W: *31st Int. Cosm. Ray Conf. ICRC 2009* (2009), s. 1–3.
- [178] T. Sato. “Analytical model for estimating the zenith angle dependence of terrestrial cosmic ray fluxes”. W: *PLoS One* 11.8 (2016), s. 1–22. ISSN: 19326203. DOI: [10.1371/journal.pone.0160390](https://doi.org/10.1371/journal.pone.0160390).
- [179] O. Saunier i in. “Atmospheric modeling and source reconstruction of radioactive ruthenium from an undeclared major release in 2017”. W: *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 116.50 (2019), s. 24991–25000. ISSN: 10916490. DOI: [10.1073/pnas.1907823116](https://doi.org/10.1073/pnas.1907823116).
- [180] M. Savić i in. “Effect of pressure and temperature corrections on muon flux variability at ground level and underground”. W: (2016), s. 4–7. arXiv: [1701.00164](https://arxiv.org/abs/1701.00164). URL: <http://arxiv.org/abs/1701.00164>.
- [181] M. Savić i in. “Pressure and temperature effect corrections of atmospheric muon data in the Belgrade cosmic-ray station”. W: *J. Phys. Conf. Ser.* 632.1 (2015). ISSN: 17426596. DOI: [10.1088/1742-6596/632/1/012059](https://doi.org/10.1088/1742-6596/632/1/012059).
- [182] G. Di Sciascio. “Detection of Cosmic Rays from ground: An Introduction”. W: *J. Phys. Conf. Ser.* 1263.1 (2019). ISSN: 17426596. DOI: [10.1088/1742-6596/1263/1/012002](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1263/1/012002). eprint: [1904.08344](https://arxiv.org/abs/1904.08344).
- [183] S. L. Simon i W. L. Robison. “A compilation of nuclear weapons test detonation data for U.S. Pacific Ocean tests”. W: *Health Phys.* 73.1 (1997), s. 258–264. ISSN: 00179078. DOI: [10.1097/00004032-199707000-00022](https://doi.org/10.1097/00004032-199707000-00022).
- [184] Y. P. Singh i Badruddin. “Short- and mid-term oscillations of solar, geomagnetic activity and cosmic-ray intensity during the last two solar magnetic cycles”. W: *Planet. Space Sci.* 138 (2017), s. 1–6. ISSN: 00320633. DOI: [10.1016/j.pss.2017.02.011](https://doi.org/10.1016/j.pss.2017.02.011). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.pss.2017.02.011>.
- [185] W. Skulski i in. “Towards Digital gamma Ray and Particle Spectroscopy”. W: *Acta Physica Polonica B* 31 (sty. 2000).
- [186] The Meteoritical Society. URL: <https://meteoritical.org/> (term. wiz. 21.03.2020).
- [187] *Solar Cycle 25 Forecast Update*. URL: <https://www.swpc.noaa.gov/news/solar-cycle-25-forecast-update> (term. wiz. 28.05.2020).
- [188] Z. Sóti, J. Magill i R. Dreher. “Karlsruhe Nuclide Chart – New 10th edition 2018”. W: *EPJ Nuclear Sciences & Technologies* 5 (2019), s. 6. DOI: [10.1051/epjn/2019004](https://doi.org/10.1051/epjn/2019004).
- [189] CAEN SpA. *Model 3106D 0-6 kV H.V. Power Supply*. URL: <https://www.mirion.com/products/0-6-kv-hv-power-supply> (term. wiz. 05.03.2020).
- [190] CAEN SpA. *N968 Spectroscopy Amplifier*. URL: <https://www.caen.it/products/n968/> (term. wiz. 14.02.2020).
- [191] M. Stępisiewicz. “Meteoryty w zbiorach Muzeum Geologicznego im. Stanisława Józefa Thugutta, Wydział Geologii UW – aktualne dane katalogowe”. W: *ACTA*

- SOCIETATIS METHEORITICAE POLONORUM Rocznik Polskiego Towarzystwa Meteorologicznego* 3 (2012).
- [192] J. Struth. “Muon detection with scintillation detectors using indirect SiPM readout”. W: September (2010). URL: https://web.physik.rwth-aachen.de/~%7Dhebbeker/theses/struth%7B%5C_%7Dbachelor.pdf.
- [193] Y. A. Surkov i G. A. Fedoseyev. “Radioactivity of the Moon, Planets and Meteorites”. W: *The Soviet-American Conference on Cosmochemistry of the Moon and Planets* 1 (1977). DOI: [10.1016/0273-1177\(81\)90476-2](https://doi.org/10.1016/0273-1177(81)90476-2).
- [194] K. Szufa. *Rozprawa doktorska: Ocena skażeń radioaktywnych i dawek dla wybranych elementów ekosystemów Antarktyki*. IFJ PAN, 2018.
- [195] K. Szufa i in. “Variations of plutonium isotopic ratios in Antarctic ecosystems”. W: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 318.3 (2018), s. 1511–1518. ISSN: 15882780. DOI: [10.1007/s10967-018-6274-6](https://doi.org/10.1007/s10967-018-6274-6). URL: <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6274-6>.
- [196] H. Takai i in. *Tidal Frequencies in the Time Series Measurements of Atmospheric Muon Flux from Cosmic Rays*. 2016. arXiv: [1610.05983](https://arxiv.org/abs/1610.05983) [astro-ph.HE].
- [197] A. H. Tkaczyk i in. “Characterization of EJ-200 plastic scintillators as active background shield for cosmogenic radiation”. W: *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* 882 (2018), s. 96–104. ISSN: 01689002. DOI: [10.1016/j.nima.2017.10.088](https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.10.088). URL: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.10.088>.
- [198] H. Tokuyama i S. Igarashi. “Seasonal variation in the environmental background level of cosmic-ray-produced ^{22}Na at Fukui City, Japan”. W: *J. Environ. Radioact.* 38.2 (1998), s. 147–161. ISSN: 0265931X. DOI: [10.1016/S0265-931X\(97\)88739-5](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(97)88739-5).
- [199] The Antarctic Treaty. URL: https://www.ats.aq/index_e.html (term. wiz. 11. 03. 2020).
- [200] R. A. Treumann i W. Baumjohann. “The differential cosmic ray energy flux in the light of an ultrarelativistic generalized Lorentzian thermodynamics”. W: *Astrophys. Space Sci.* 363.2 (2018). ISSN: 1572946X. DOI: [10.1007/s10509-018-3255-8](https://doi.org/10.1007/s10509-018-3255-8). eprint: [1703.02327](https://arxiv.org/abs/1703.02327). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10509-018-3255-8>.
- [201] Z. Tyimiński i in. “ ^{26}Al isotope in Pultusk meteorite fragments”. W: *80th Annual Meeting of the Meteoritical Society* (2017).
- [202] J. F. Valdés-Galicia, R. Pérez-Enriquez i J. A. Otaola. “The cosmic-ray 1.68-year variation: A clue to understand the nature of the solar cycle?” W: *Sol. Phys.* 167.1-2 (1996), s. 409–417. ISSN: 00380938. DOI: [10.1007/bf00146349](https://doi.org/10.1007/bf00146349).
- [203] M. Vivier i in. “SOX: search for short baseline neutrino oscillations with Borexino”. W: *Journal of Physics: Conference Series* 718 (maj 2016), s. 062066. DOI: [10.1088/1742-6596/718/6/062066](https://doi.org/10.1088/1742-6596/718/6/062066). URL: <https://doi.org/10.1088%2F1742-6596%2F718%2F6%2F062066>.
- [204] U. von Zahn. “The total mass flux of meteoroids into the Earth’s upper atmosphere”. W: *17th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes*

- and Related Research*. Wyed. Barbara Warmbein. T. 590. ESA Special Publication. Sierp. 2005, s. 33–39.
- [205] Muzeum Wydziału Geologii Uniwersytetu Warszawskiego. URL: <http://www.geo.uw.edu.pl/MUZEUM/METEORITE/pultusk.htm> (term. wiz. 21.03.2020).
- [206] B. W. Warzocha. *Programowanie wieloplatformowe z C++ i wxWidgets 3*. Wydanie I. Warszawa: Wydawnictwo Naukowe PWN, 2018. ISBN: 978-83-01-19899-2.
- [207] P. Weber i in. “A gamma-ray spectroscopy survey of Omani meteorites”. W: *Meteorit. Planet. Sci.* 52.6 (2017), s. 1017–1029. ISSN: 10869379. DOI: [10.1111/maps.12847](https://doi.org/10.1111/maps.12847).
- [208] M. K. Weisberg, T. J. McCoy i A. N. Krot. “Systematics and Evaluation of Meteorite Classification”. W: *Meteorites early Sol. Syst. II* (2006), s. 19–52. URL: <http://eps.mcgill.ca/~%7B~%7Dcourses/c570/Readings/Weisberg06a.pdf>.
- [209] R. Weron. “Estimating long-range dependence: Finite sample properties and confidence intervals”. W: *Phys. A Stat. Mech. its Appl.* 312.1-2 (2002), s. 285–299. ISSN: 03784371. DOI: [10.1016/S0378-4371\(02\)00961-5](https://doi.org/10.1016/S0378-4371(02)00961-5). eprint: [0103510](https://arxiv.org/abs/0103510) (cond-mat).
- [210] J. M. van Wessem i in. “Temperature and Wind Climate of the Antarctic Peninsula as Simulated by a High-Resolution Regional Atmospheric Climate Model”. W: *Journal of Climate* 28.18 (wrz. 2015), s. 7306–7326. ISSN: 0894-8755. DOI: [10.1175/JCLI-D-15-0060.1](https://doi.org/10.1175/JCLI-D-15-0060.1). eprint: https://journals.ametsoc.org/jcli/article-pdf/28/18/7306/4056275/jcli-d-15-0060_1.pdf. URL: <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-15-0060.1>.
- [211] *Wings 3D A Polygon Modeler*. URL: <http://www.wings3d.com/> (term. wiz. 30.01.2020).
- [212] *wxWidgets Cross Platform GUI Library*. URL: <https://www.wxwidgets.org/about/> (term. wiz. 27.11.2019).
- [213] C. C. Wylie. “The orbit of the Pultusk meteor”. W: *Popular Astronomy* 48 (grud. 1940), s. 306.
- [214] R. Zanin i in. “Gamma rays detected from Cygnus X-1 with likely jet origin”. W: *Astron. Astrophys.* 596 (2016). ISSN: 14320746. DOI: [10.1051/0004-6361/201628917](https://doi.org/10.1051/0004-6361/201628917).
- [215] W. Zhang i in. “Design and Optimization of a Dual-HPGe Gamma Spectrometer and Its Cosmic Veto System”. W: *IEEE Transactions on Nuclear Science* 64 (2017), s. 894–900. ISSN: 00189499. DOI: [10.1109/TNS.2017.2654686](https://doi.org/10.1109/TNS.2017.2654686).

SPIS RYSUNKÓW

1.1	Tablica izotopów	8
1.2	Diagramy Feynmana rozpadów β	8
1.3	Diagramy Feynmana wychwytu elektronu	9
1.4	Przekrój czynny na oddziaływania fotonów	11
2.1	Widmo energetyczne promieniowania kosmicznego	15
2.2	Schemat pęku atmosferycznego	16
2.3	Diagram Feynmana rozpadu mionu μ^-	17
2.4	Widmo energetyczne mionów	17
2.5	Rozkład kątowy intensywności strumienia mionów	18
3.1	Najpopularniejsze geometrie detektorów HPGe	22
3.2	Przekrój poprzeczny detektorów HPGe (typ koaksjalny) wraz z konfiguracją elektrod	23
3.3	Zdolność rozdzielcza detektora germanowego w funkcji energii promieniowania γ	25
3.4	Schemat analogowego toru spektrometrycznego	26
3.5	Przebieg sygnałów w analogowym torze spektrometrycznym	27
3.6	Schemat cyfrowego toru spektrometrycznego	30
3.7	Przebieg sygnału w cyfrowym filtrze czasowym	31
3.8	Przebieg sygnału w cyfrowym filtrze energetycznym (trapezowym)	32
3.9	Wydażność w pikie fotoelektrycznym $\varepsilon(E_\gamma)$ w funkcji energii	38
4.1	Model detektora BEGe	44
4.2	Model 3D osłony pasywnej spektrometru	45
4.3	Względne usytuowanie detektorów spektrometru promieniowania gamma w IFJ PAN	46
4.4	Digitizer CAEN DT5725	47
4.5	Schemat toru spektrometrycznego w IFJ PAN	47
4.6	Stanowisko niskotłowej, cyfrowej spektrometrii promieniowania gamma w IFJ PAN	48
5.1	Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs a wartościami Trapezoid Rise Time	50
5.2	Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Trapezoid Rise Time	51

5.3	Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs a wartościami Ns Peak	52
5.4	Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Ns Peak	52
5.5	Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs a wartościami Ns Baseline	53
5.6	Związek między szerokością FWHM linii 1332 keV ^{60}Co a wartościami Ns Baseline	54
5.7	Związek między szerokością FWHM linii 662 keV ^{137}Cs i 1332 keV ^{60}Co a wartościami Peak Holdoff	55
5.8	Związek między szerokością FWHM i wysokością linii 662 keV ^{137}Cs i 1332 keV ^{60}Co a wartościami Peak Holdoff	56
5.9	Wyznaczenie wartości parametru Threshold dla detektorów scyntylicyjnych	57
5.10	Zjawisko przerzutu dodatniego i ujemnego	59
5.11	Rozkład czasowy przypadków koincydencji sygnału detektora REAR i sygnałów z pozostałych detektorów	60
5.12	Zależność interwałów czasowych między kolejnymi impulsami, a wysokością tych impulsów	61
5.13	Statyw rurowy służący do określania geometrii pomiaru przy wyznaczaniu czasu martwego cyfrowego systemu akwizycji	63
5.14	Oszacowanie zależności czasu martwego w funkcji rejestrowanej częstości zliczeń	64
6.1	Widma detektorów scyntylicyjnych	68
6.2	Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (0 - 1000 keV)	71
6.3	Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (1000 - 2000 keV)	72
6.4	Widmo detektora BEGe w zakresie energetycznym (2000 - 2800 keV)	73
6.5	Redukcja liczby zliczeń tła detektora germanowego w funkcji energii promieniowania	78
6.6	Znormalizowane względne różnice powierzchni wybranych foto-pików	79
7.1	Stacja poboru aerozoli atmosferycznych MASS-500	83
7.2	Maksymalne stężenia aktywności ^{106}Ru w Europie	86
7.3	Trajektorie wsteczne potencjalnego źródła ^{106}Ru wyznaczone dla kilku wybranych stacji monitoringu	88
7.4	Fragment widma dwóch filtrów powietrza eksponowanych w czasie obecności izotopów rutenu w atmosferze	89
7.5	Stężenie aktywności ^{22}Na w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie	94
7.6	Mapa pożarów wokół EJ Czarnobyl	97
7.7	Stężenie ^{137}Cs w przygruntowej warstwie powietrza w Krakowie wiosną 2020 r	97
7.8	Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Kraków	98

7.9	Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Holešov	99
7.10	Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez Saloniki	100
7.11	Wyniki symulacji trajektorii wstecznych mas powietrza przechodzących przez tereny Centrum Badawczego Cadarache	101
8.1	Położenie wybranych antarktycznych polarnych stacji badawczych	104
8.2	Schemat procedury przygotowania próbek filtrów powietrza do pomiarów γ - spektrometrycznych	108
8.3	Wybrane etapy procedury przygotowania próbek do pomiarów γ - spektrometrycznych	109
8.4	Wyniki stężenia ^{210}Pb dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio	119
8.5	Wyniki stężenia ^{210}Pb zarejestrowane w stacji Neumayer	119
8.6	Średni miesięczny kierunek wiatru w Bazie Marambio	120
8.7	Wyniki stężenia ^{137}Cs dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio	121
8.8	Wyniki stężenia ^{226}Ra dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio	122
8.9	Wyniki stężenia ^{228}Ra dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio	122
8.10	Wyniki stężenia ^{40}K dla filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio .	123
9.1	Fragmenty badanych meteorytów - Pułtusk i Sikhote-Alin	127
9.2	Fragment widma promieniowania gamma meteorytu Pułtusk zawierający foto-pik ^{26}Al	129
9.3	Wzorzec meteorytu Pułtusk	130
9.4	Wydajność spektrometru dla wzorca meteorytu Pułtusk	130
10.1	Dane z pliku wyjściowego digitizera dla scyntylatora TOP	136
10.2	Oczekiwana częstość zliczeń rejestrowana przez detektory TOP, BOTTOM i FRONT	137
10.3	Rozkład interwałów czasowych między impulsami rejestrowanymi przez scyntylator TOP	137
10.4	Korelacja wzajemna interwałów czasowych sygnału z scyntylatora TOP .	138
10.5	Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n dla szeregu interwałów czasowych danych z scyntylatora TOP	141
10.6	Wyniki analizy DFA interwałów czasowych detektorów BOTTOM i FRONT	141
10.7	Widmo częstotliwościowe interwałów czasowych między impulsami generowanymi przez scyntylator TOP	142
10.8	Histogram przypadków koincydencyjnych impulsów zarejestrowanych przez detektory TOP, BOTTOM, FRONT i REAR	143
10.9	Pary detektorów scyntylacyjnych z maksymalnymi interwałami czasowymi pomiędzy impulsami	144
10.10	Dyskryminacja widma energetycznego scyntylatorów w celu eliminacji fluktuacji poziomu progowego sygnału	145
10.11	Walidacja danych przed analizą zmian strumienia mionów	146

10.12	Względne odchylenie od średniej intensywności strumienia mionów i ciśnienia atmosferycznego	147
10.13	Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych rejestrowanych przez detektor TOP	149
10.14	Względne zmiany intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor TOP przed i po korekcie ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego	150
10.15	Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych rejestrowanych przez detektor FRONT	151
10.16	Względne zmiany intensywności strumienia mionów rejestrowanego przez detektor FRONT, przed i po korekcie ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego	152
10.17	Wyznaczenie współczynnika barometrycznego dla danych koincydencyjnych zarejestrowanych przez detektory TOP i BOTTOM	153
10.18	Względne zmiany intensywności strumienia mionów zarejestrowanego przez układ koincydencyjny detektorów TOP i BOTTOM, przed i po korekcie ze względu na zmiany ciśnienia atmosferycznego	154
10.19	Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n (skal) danych długookresowych detektora TOP	155
10.20	Widmo częstotliwościowe danych długookresowych detektora TOP	156
10.21	Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n danych długookresowych detektora FRONT	157
10.22	Widmo częstotliwościowe danych długookresowych detektora FRONT	157
10.23	Funkcja fluktuacji $\bar{F}(n)$ w funkcji długości podszeregów n (skal) danych długookresowych dla sygnałów koincydencyjnych detektorów TOP i BOTTOM	158
10.24	Widmo częstotliwościowe danych długookresowych dla sygnałów koincydencyjnych detektorów TOP i BOTTOM	159
A.1	Ekran startowy programu VETO	193
A.2	Ekran główny programu VETO	194
A.3	Schemat algorytmu <i>Basic VETO</i>	197
A.4	Ekran <i>Advanced VETO - Prepare Files CoMPASS</i>	199
A.5	Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Prepare files CoMPASS</i>	200
A.6	Ekran <i>Advanced VETO - Advanced Anticoincidence</i>	201
A.7	Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Advanced Anticoincidence</i>	202
A.8	Ekran <i>Advanced VETO - Make Spectrum</i>	203
A.9	Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Make Spectrum</i>	204
A.10	Ekran <i>Advanced VETO - Free Coincidence</i>	205
A.11	Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Free Coincidence</i>	206
A.12	Ekran <i>Advanced VETO - Search Delay</i>	207
A.13	Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Search Delay</i>	209
A.14	Ekran <i>Advanced VETO - Time Differences Table</i>	210
A.15	Ekran <i>Advanced VETO - Sum Spectra</i>	211

A.16 Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Sum Spectra</i>	212
A.17 Ekran <i>Advanced VETO - Sequential Spectra</i>	213
A.18 Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Sequential Spectra</i>	214
A.19 Ekran <i>Advanced VETO - Counts Frequency</i>	215
A.20 Schemat algorytmu <i>Advanced VETO - Counts Frequency</i>	216
A.21 Ekran <i>Settings</i>	217
B.1 Parametry scyntylatorów plastikowych typu EJ	221

SPIS TABEL

3.1	Zestawienie wybranych laboratoriów ultra-niskotłowej spektrometrii promieniowania gamma	40
5.1	Pola powierzchni pików 662 keV i 1332 keV w zależności od wartości parametru Peak Holdoff	55
5.2	Zestawienie opóźnień między detektorami pracującymi w układzie spektrometrycznym	60
5.3	Częstość występowania koincydencji między parami detektorów skonstruowanego spektrometru promieniowania gamma	62
6.1	Udział poszczególnych detektorów scyntylacyjnych w redukcji tła detektora germanowego	70
6.2	Linie widmowe obecne w tle spektrometru promieniowania gamma	74
7.1	Stężenia ^{106}Ru w filtrach powietrza	90
7.2	Wyniki pomiarów gamma - spektrometrycznych próbek środowiskowych badanych w związku z obecnością radiorutenu w atmosferze	91
8.1	Podstawowe dane próbek filtrów powietrza eksponowanych na terenie Bazy Marambio	107
8.2	Współczynniki krzywych kalibracji wydajnościowej dla geometrii FP i 2FP	111
8.3	Walidacja kalibracji wydajnościowej geometrii FP	113
8.4	Walidacja kalibracji wydajnościowej geometrii 2FP	114
8.5	Wyniki analizy czystości procedury przygotowania próbek do pomiarów gamma - spektrometrycznych	115
8.6	Wyniki pomiarów gamma - spektrometrycznych próbek filtrów powietrza zebranych w Bazie Marambio	116
9.1	Stężenie aktywności izotopów ^{26}Al i ^{40}K oraz poziomy MDC dla ^{226}Ra i ^{228}Ra w okazie meteorytu Pułtusk	131
9.2	Zestawienie stężenia aktywności ^{26}Al w meteorytach skalnych	132
10.1	Lista 10 „geomagnetycznie” spokojnych dni każdego miesiąca rozpatrywanego okresu	148
A.1	Zestawienie wartości domyślnych kontrolek programu VETO	218

C.1	Wybrane parametry akwizycji danych wykorzystywane w projekcie	223
E.1	Dane szczegółowe filtrów powietrza zebranych na terenie Bazy Marambio.	227

DODATKI

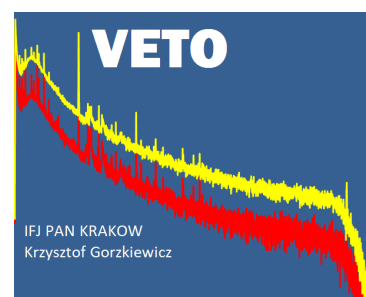
Dodatek A

Opis programu VETO

Program VETO służy do analizy *off-line* danych generowanych w wyniku pracy cyfrowego analizatora - digitizera i napisany został w języku C++ [51, 70, 72] z wykorzystaniem zintegrowanego środowiska programistycznego *Code::Blocks* [36] i przystosowany jest do pracy w systemie Microsoft Windows. Oprogramowanie zostało wyposażone w graficzny interfejs użytkownika (ang. *graphical user interface, GUI*), który powstał przy zastosowaniu biblioteki wxWidgets 3.1 [206, 212] i ma za zadanie ułatwić użytkowanie programu i uczynić je jak najbardziej intuicyjnym. Program podlega ciągłym udoskonaleniom pozwalającym poprawić efektywność jego obsługi oraz dodawać nowe funkcjonalności z uwzględnieniem uwag użytkowników. Ponadto, modyfikacje polegają na dalszej optymalizacji kodu umożliwiającej skrócenie czasu wykonywania algorytmów.

Danymi wejściowymi programu są pliki w formacie `{.csv}` (ang. *comma-separated values*) generowane przez digitizer, osobno dla każdego detektora pracującego w systemie spektrometrycznym. Ich nazwy powinny zaczynać się od cyfr `{0-7}`, które reprezentują numery wejść analizatora, do których podłączone są detektory. Pliki te zawierają informacje o czasie rejestracji (wyrażonym w pikosekundach; rozdzielczość czasowa stosowanego w pracy digitizera to 4 ns więc ostatnie trzy cyfry są zawsze równe zero), kanale konwertera ADC (liczba od 0 - 16384) oraz kodzie błędu (zapisanym jako liczba w notacji szesnastkowej) dla każdego zarejestrowanego impulsu, a dane te oddzielone są średnikami. Przykładowe, początkowe wersy pliku `{.csv}` są następujące:

```
TIMETAG;ENERGY;FLAGS
194136776000;1222;0x0
385232492000;2805;0x0
660376352000;3535;0x0
1294285148000;2185;0x0
2496107188000;1434;0x0
...
```



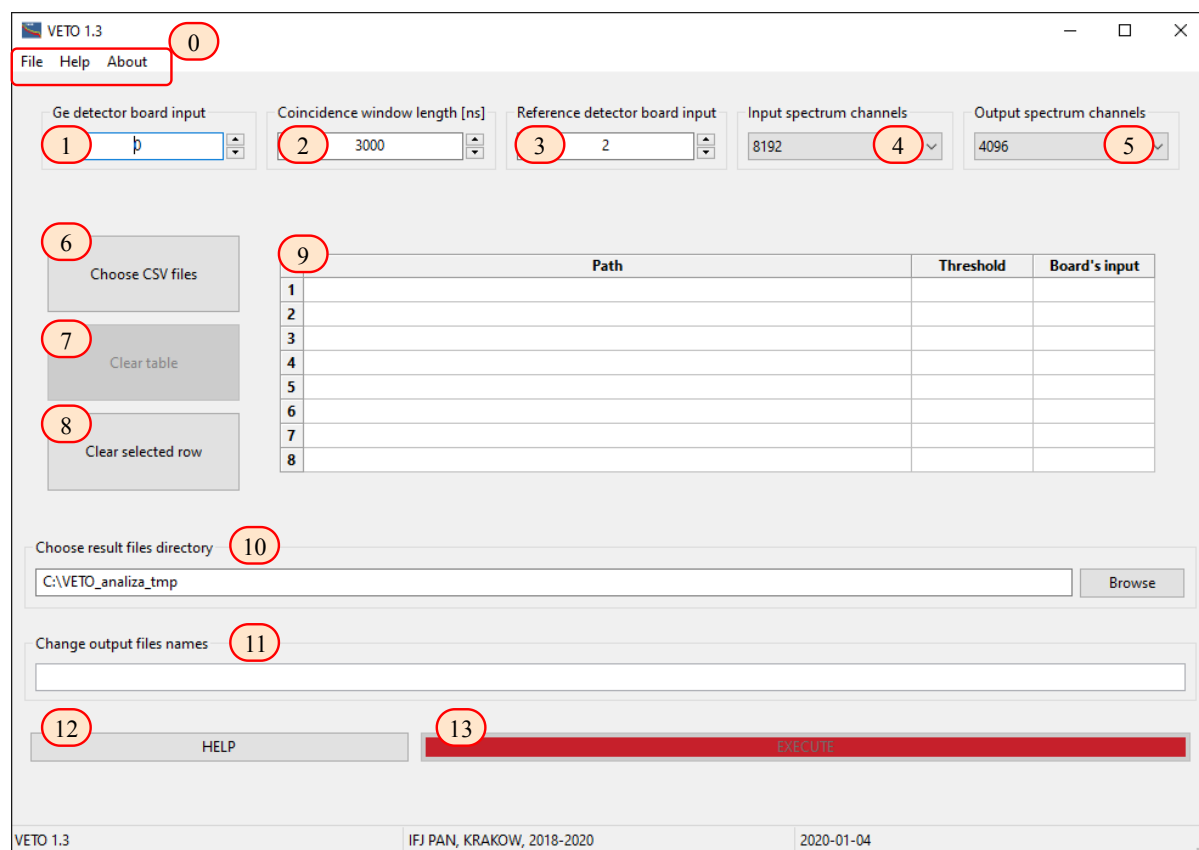
Rysunek A.1 Ekran startowy programu VETO

...
...

Głównym zadaniem programu VETO jest obsługa plików {.csv} i uzyskanie wymaganych przez użytkownika, użytecznych informacji. Cały program można podzielić na dwie główne części: podstawową (BASIC) oraz zaawansowaną (ADVANCED), które zostały omówione w niniejszym dodatku.

A.1 BASIC VETO

Celem tej części programu, będącej zarazem jego ekranem głównym, jest umożliwienie użytkownikowi jak najszybszego i najłatwiejszego utworzenia widm antykoincydencyjnych detektora germanowego.



Rysunek A.2 Ekran główny programu VETO

Elementy ekranu są następujące:

0. Pasek menu głównego, dostępnego z każdej części programu, zawierający następujące pod-menu (wraz ze skrótami klawiszowymi):

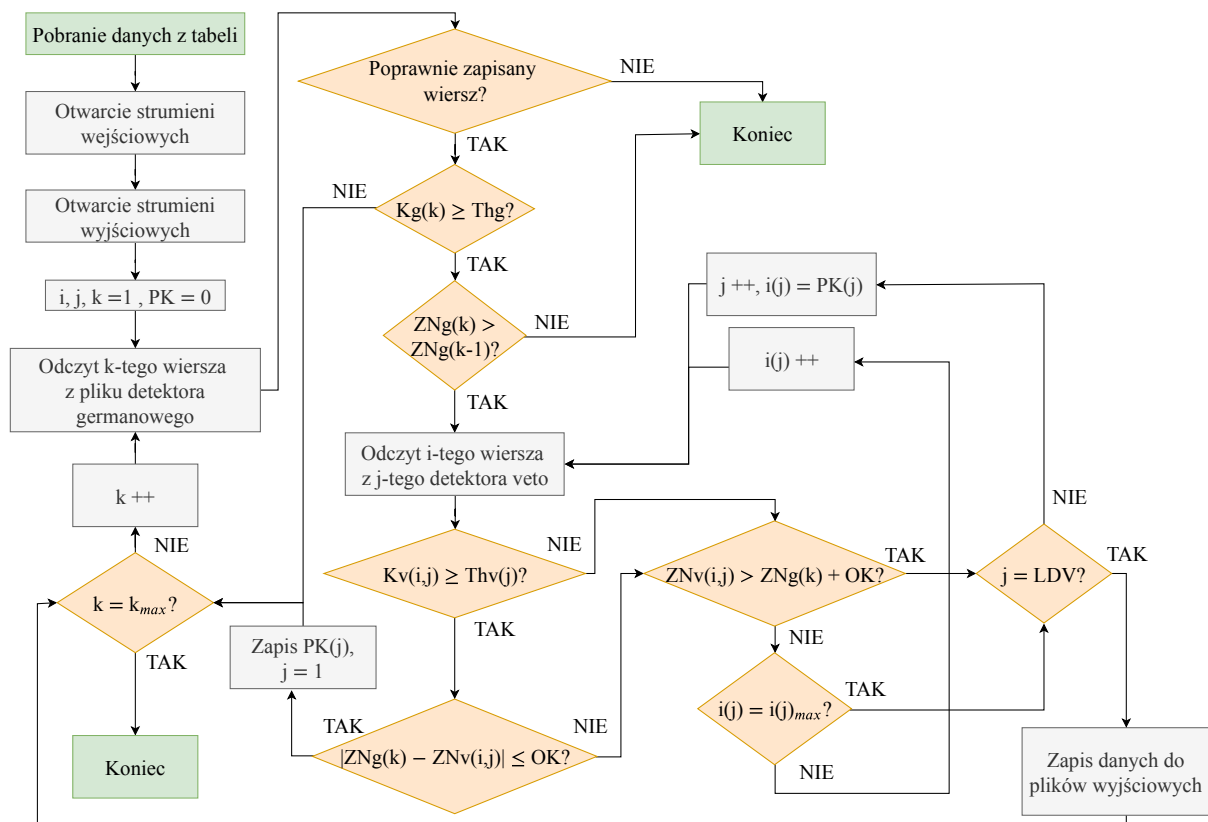
- **File** zawierający przyciski:
 - **Basic VETO (Ctrl-B)**: przejście do ekranu części BASIC,
 - **Advanced VETO (Ctrl-N)**: przejście do ekranu części ADVANCED,

- **Settings (Ctrl-S)**: przejście do ekranu edycji pliku *settings.cnf* zawierającego domyślne ustawienia programu (więcej informacji w dalszej części dodatku),
 - **Quit (Ctrl-Shift-X)**: wyjście z programu lub zatrzymanie aktualnie wykonywanego polecenia; tę samą funkcję pełni również krzyżyk w prawym górnym rogu ekranu,
 - **Help (Ctrl-H)**: podstawowe menu pomocy z informacjami m.in. o formacie obsługiwanych plików,
 - **About (Ctrl-A)**: informacje o użytkowanej wersji programu i dane kontaktowe,
1. **Ge detector board input** - numer wejścia digitizera zajętego przez detektor germanowy ze zbioru $\{0, 1, \dots, 7\}$,
 2. **Coincidence window length [ns]** - długość okna koincydencji wyrażonego w nanosekundach,
 3. **Reference detector board input** - numer wejścia detektora referencyjnego, względem którego wyznaczane są opóźnienia innych detektorów,
 4. **Input spectrum channels** - liczba kanałów widma wejściowego (ustalana w programie sterującym digitizerem - CAEN CoMPASS), możliwy wybór: 4096, 8192 lub 16384 kanałów,
 5. **Output spectrum channels** - liczba kanałów widma wyjściowego, możliwy wybór: 4096, 8192 i 16384 kanałów,
 6. **Choose CSV files** - przycisk otwierający okno wyboru plików $\{.csv\}$,
 7. **Clear table** - przycisk czyszczący tablicę (9), jest nieaktywny w przypadku pustej tabeli,
 8. **Clear selected row** - przycisk czyszczący wybrany wiersz tabeli,
 9. **Tabela plików .csv** - tabela przechowująca ścieżki wybranych plików $\{.csv\}$; po wybraniu plików, program automatycznie wybierze poziom progowy widma energetycznego (ang. **Threshold** czyli najniższą akceptowalną energię zliczenia; na podstawie ustawień domyślnych z pliku *settings.cnf*) oraz numer wejścia digitizera zajętego przez dany detektor (ang. **Board's input**, pobranego z nazwy pliku (pierwszy znak w nazwie) lub wprowadzonego przez użytkownika),
 10. **Choose result files directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu, do którego będą zapisywane pliki wynikowe,
 11. **Change output files names** - pozwala zmienić nazwę plików wynikowych,
 12. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,

13. EXECUTE - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu danej części programu. W przypadku braku wszystkich potrzebnych danych, przycisk jest czerwony i nieaktywny. Gdy użytkownik wprowadzi niezbędne dane, przycisk zmieni kolor na zielony i stanie się aktywny co sygnalizuje gotowość programu do pracy. Po jego wciśnięciu, przycisk zmienia kolor na żółty z napisem *EXECUTING...*, a całe okno aplikacji staje się nieaktywne, z wyjątkiem paska menu. W tej chwili, aktywacja przycisku **Quit** spowoduje wyświetlenie okna dialogowego umożliwiającego przetrwanie pracy.

Rysunek A.3 przedstawia ideowy schemat algorytmu *Basic VETO*. W pierwszej kolejności pobierane są dane z tabeli plików (9 na Rys. A.2) oraz otwierane są odpowiednie strumienie danych wejściowych i wyjściowych aplikacji. Następnie odczytywany jest wiersz pliku detektora germanowego i sprawdzana jest poprawność zapisanych danych (czy w wierszu poprawienie zapisane są wszystkie trzy kolumny) oraz czy energia zliczenia (wyrażona w kanałach, po konwersji na liczbę kanałów wybraną w **Output spectrum channels**) nie jest mniejsza od wartości progowej. W następnej kolejności weryfikacji podlega monotoniczny wzrost wartości znaczników czasowych (ang. *time stamp*) czyli czy czas rejestracji impulsu z aktualnego wiersza nie jest mniejszy od czasu rejestracji poprzedniego sygnału, co oznaczałoby błąd akwizycji lub przekroczenie maksymalnej długości czasu trwania pomiaru (ang. *time stamp roll over*, który dla aktualnej wersji oprogramowania digitizera CAEN DT5725 wynosi $2^{47} \cdot 4 \text{ ns} \approx 156,37 \text{ h}$). W przypadku wystąpienia problemów, program wyświetla stosowny komunikat i zaleca użycie części zaawansowanej programu VETO do obsługi uszkodzonego pliku. Brak obsługi wyżej wymienionych błędów przez *Basic VETO* podyktowany jest rzadkim ich występowaniem oraz założeniem projektowym, że program ten charakteryzować się ma jak najprostszą obsługą i intuicyjnym interfejsem.

W dalszej kolejności, pobierany jest i-ty wiersz z j-tego detektora veto i sprawdzenie czy sygnał jest wyższy bądź równy wartości progowej. Następnie, weryfikowane jest wystąpienie koincydencji czyli sytuacji, gdy różnica wartości znacznika czasowego z pliku detektora germanowego $ZNg(k)$ i wartości znacznika czasowego z pliku detektora veto $ZNv(i,j)$ jest mniejsza od długości okna koincydencji (OK). Jeśli test da wynik pozytywny, to zapisywana jest Pozycja Koincydencji (PK) w danym detektorze (pozwala to kontynuować poszukiwania koincydencji dla kolejnego rekordu detektora głównego, od pozycji koincydencji poprzedniej, a nie od początku pliku, co jest zabiegiem optymalizującym algorytm i znacząco skraca czas wykonania programu) i odczytywany jest kolejny (k+1) wiersz pliku detektora HPGe lub program kończy pracę, gdy dotrze do końca pliku detektora germanowego. W przeciwnym wypadku sprawdzany jest warunek czy $ZNv(i,j)$ przekroczył wartość $ZNg(k) + OK$, co oznaczałoby, iż zliczenie zostało zarejestrowane później niż zliczenie w detektorze germanowym opóźnione o długość okna koincydencji i nie ma już możliwości znalezienia koincydencji w j-tym pliku detektora osłony antykoincydencyjnej dla k-tego wiersza z pliku detektora HPGe (lub program dotarł do końca j-tego pliku ($i = i_{max}$)). Dopiero jeśli program przeszuka wszystkie detektory veto (j równe liczbie detektorów veto (LDV)) i nie znajdzie przypadków koincydencji dla danego wiersza detektora germanowego, następuje zapis danych do plików wyjściowych i dalszy odczyt



Rysunek A.3 Schemat algorytmu *Basic VETO*. $Kg(k)$ - energia k-tego zliczenia w kanałach (K) detektora germanowego (g), Thg - wartość progowa sygnału detektora germanowego (po konwersji), $ZNg(k)$ - znacznik czasowy k-tego wiersza pliku detektora germanowego, $Kv(i,j)$ - energia i-tego zliczenia, j-tego detektora veto (v), $Thv(j)$ - wartość progowa sygnału j-tego detektora veto, $ZNv(i,j)$ - znacznik czasowy i-tego rekordu j-tego detektora veto, OK - długość okna koincydencji, PK(j) - **P**ozycja **K**oincydencji w strumieniu j-tego detektora veto, LDV - liczba detektorów veto ($LDV \in \{0, 1, \dots, 7\}$), ++ oznacza inkrementację wartości i ($i = i+1$)

z pliku detektora HPGe lub przerwanie wykonywania algorytmu w przypadku końca pliku detektora germanowego ($k = k_{max}$).

W wyniku pracy aplikacji, generowane są dwa pliki w formacie $\{.ssv\}$ i $\{.tka\}$. Jeśli użytkownik nie wprowadził nowej nazwy w polu **Change output files names**, nazwy tych plików będą następujące: `nazwa_detektora_germanowego_VETO.ssv` oraz `nazwa_detektora_germanowego_VETO_spec.tka`.

Pierwszy z nich zawiera trzy wiersze nagłówka: **Records** - liczba zliczeń detektora HPGe, dla których nie wystąpiło zjawisko koincydencji z żadnym z detektorów osłonowych, **Real Time [s]** - czas pomiaru wyrażony w sekundach oraz **Spectrum** czyli długość widma energetycznego. Następne wiersze zawierają znaczniki czasowe poszczególnych zliczeń, wyrażone w nanosekundach (z uwzględnieniem poprawki na opóźnienie względem detektora referencyjnego) oraz energię zliczenia (wyrażoną w kanałach, po konwersji na długość widma wybraną w kontrolce **Output spectrum channels**). Dane te oddzielone są pojedynczą spacją (co przyspiesza ewentualne dalsze prace z plikiem), stąd rozszerzenie pliku $\{.ssv\}$ (ang. *space-separated values*). Drugi plik zawiera antykoincydencyjne widmo energetyczne detektora germanowego i składa się z jednej kolumny danych (o długości równej **Output spectrum channels**) z liczbą zliczeń przypadającą na dany kanał

analizatora. Pierwsze dwa wiersze zawierają informacje o czasie trwania pomiaru. Wybór formatu pliku (`{.tka}`) umożliwia jego analizę z wykorzystaniem często stosowanego do analizy widm energetycznych oprogramowania GenieTM 2000 firmy Mirion (dawniej CANBERRA) [64].

A.2 ADVANCED VETO

Część zaawansowana aplikacji VETO służy przede wszystkim do bardziej skomplikowanej analizy danych generowanych przez digitizer, jak również do przygotowania widm antykoincydencyjnych z uszkodzonych plików `{.csv}`. Składa się on z dziesięciu zakładek, wykonujących określone funkcje i zadania:

- **Prepare Files CoMPASS,**
- **Advanced Anticoincidence,**
- **Make Spectrum,**
- **Free Coincidence,**
- **Search Delays,**
- **Time Differences Table,**
- **Sum Spectra,**
- **Sequential spectra,**
- **Counts Frequency,**
- **Prepare Files (CAEN MC2).**

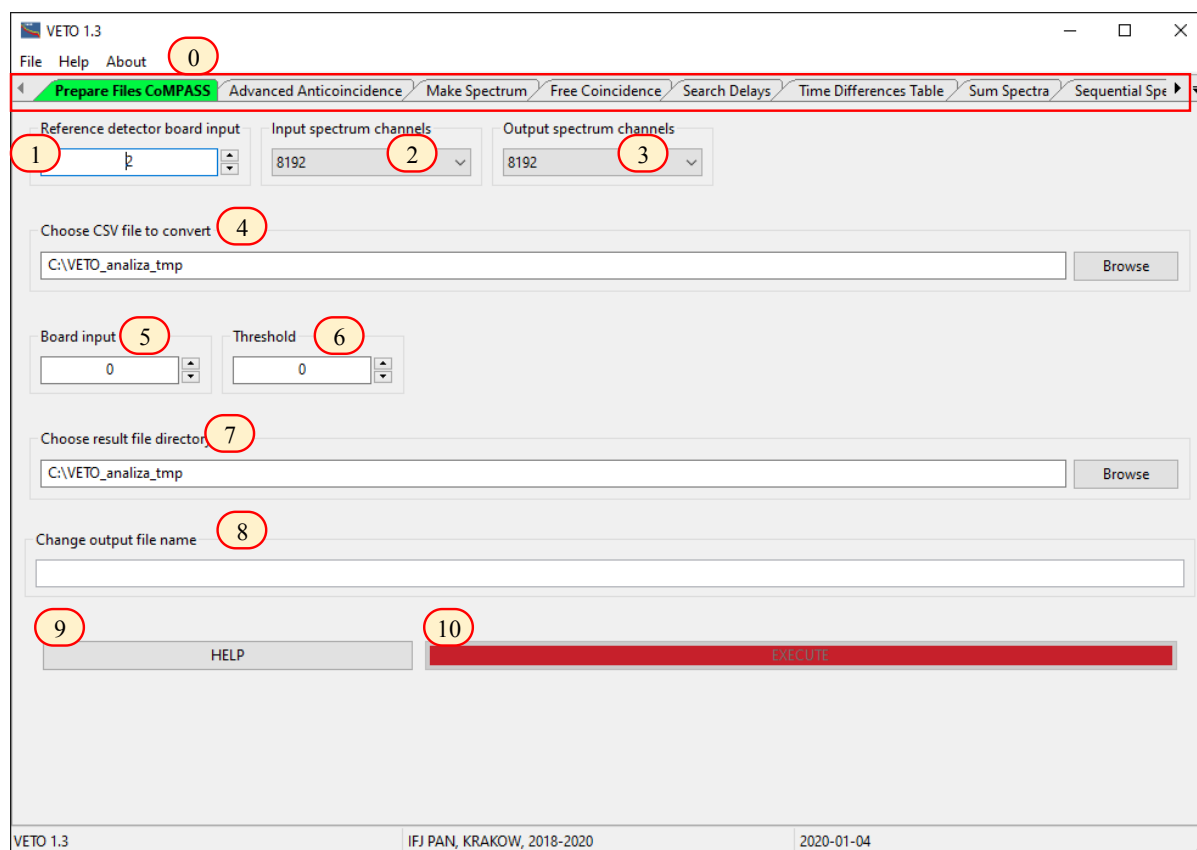
W dalszej części dodatku zostaną przedstawione wyżej wymienione podprogramy oraz zaprezentowane schematy ideowe stworzonych algorytmów.

Prepare Files CoMPASS

Rysunek A.4 przedstawia zakładkę *Prepare Files CoMPASS* części *Advanced VETO*. Zadaniem tego programu jest przygotowanie plików `{.csv}` do dalszej analizy m.in. poprzez usunięcie uszkodzonych rekordów i sprawdzenie monotonicznego wzrostu wartości znaczników czasowych. Wszystkie inne zakładki części *Advanced VETO* pracują wyłącznie z plikami `{.ssv}` (z wyjątkiem *Prepare Files (CAEN MC2)*) co pozwala na uproszczenie stosowanych algorytmów (poprzez zmniejszenie liczby wyrażeń warunkowych) i skrócenie czasu ich wykonania.

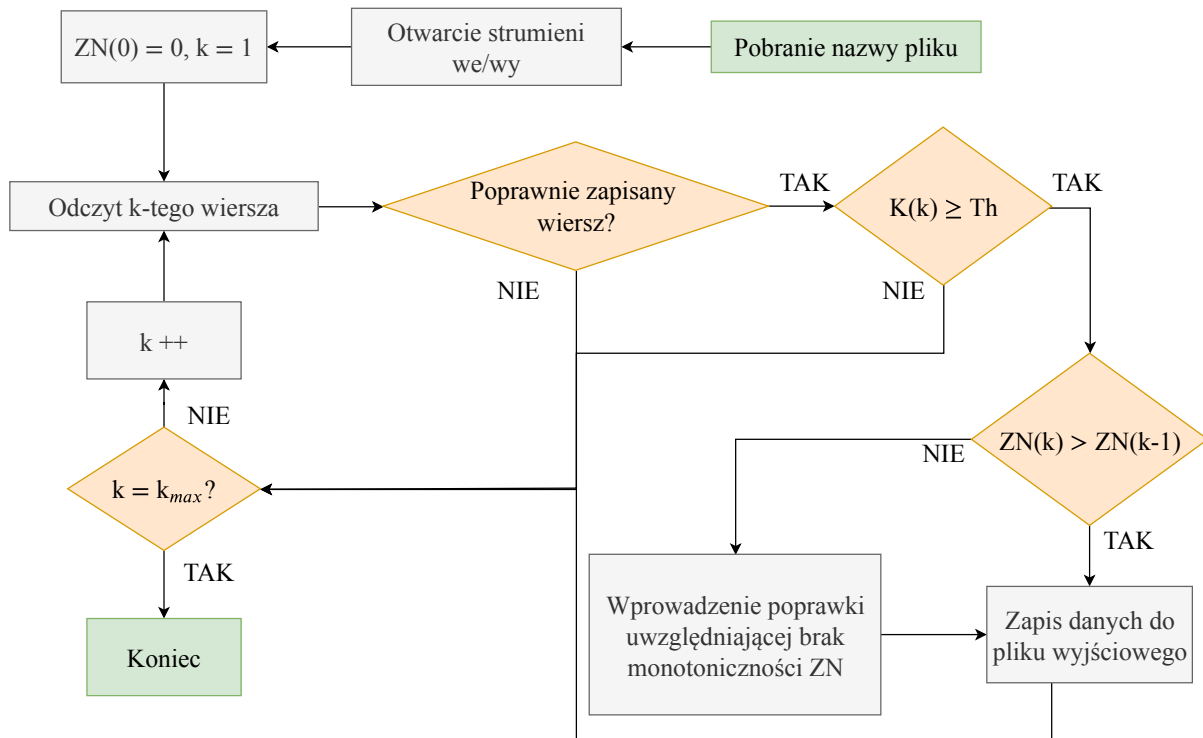
Elementy paska zakładek części *Advanced VETO* i otwartej zakładki *Prepare Files CoMPASS*:

0. **Pasek z zakładkami Advanced VETO** - pozwalający przechodzić między funkcjami tej części programu,



Rysunek A.4 Ekran *Advanced VETO - Prepare Files CoMPASS*

1. **Reference detector board input** - numer wejścia detektora referencyjnego,
2. **Input spectrum channels** - liczba kanałów widma wejściowego (ustalana w programie sterującym digitizerem - CAEN CoMPASS),
3. **Output spectrum channels** - liczba kanałów widma wyjściowego,
4. **Choose CSV file to convert** - przycisk otwierający okno wyboru pliku `{.csv}` do konwersji na format `{.ssv}`,
5. **Board input** - kontrolka wyboru numeru wejścia digitizera zajętego przez detektor, którego plik będzie konwertowany (wypełniana automatycznie, gdy nazwa pliku zaczyna się od numeru wejścia),
6. **Threshold** - kontrolka wyboru poziomu progowego energii impulsów (w kanałach),
7. **Choose result file directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu dla pliku wynikowego,
8. **Change output file name** - pozwala zmienić nazwę pliku wynikowego, domyślnie będzie to nazwa pliku wejściowego z rozszerzeniem `{.ssv}`,
9. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
10. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części programu.

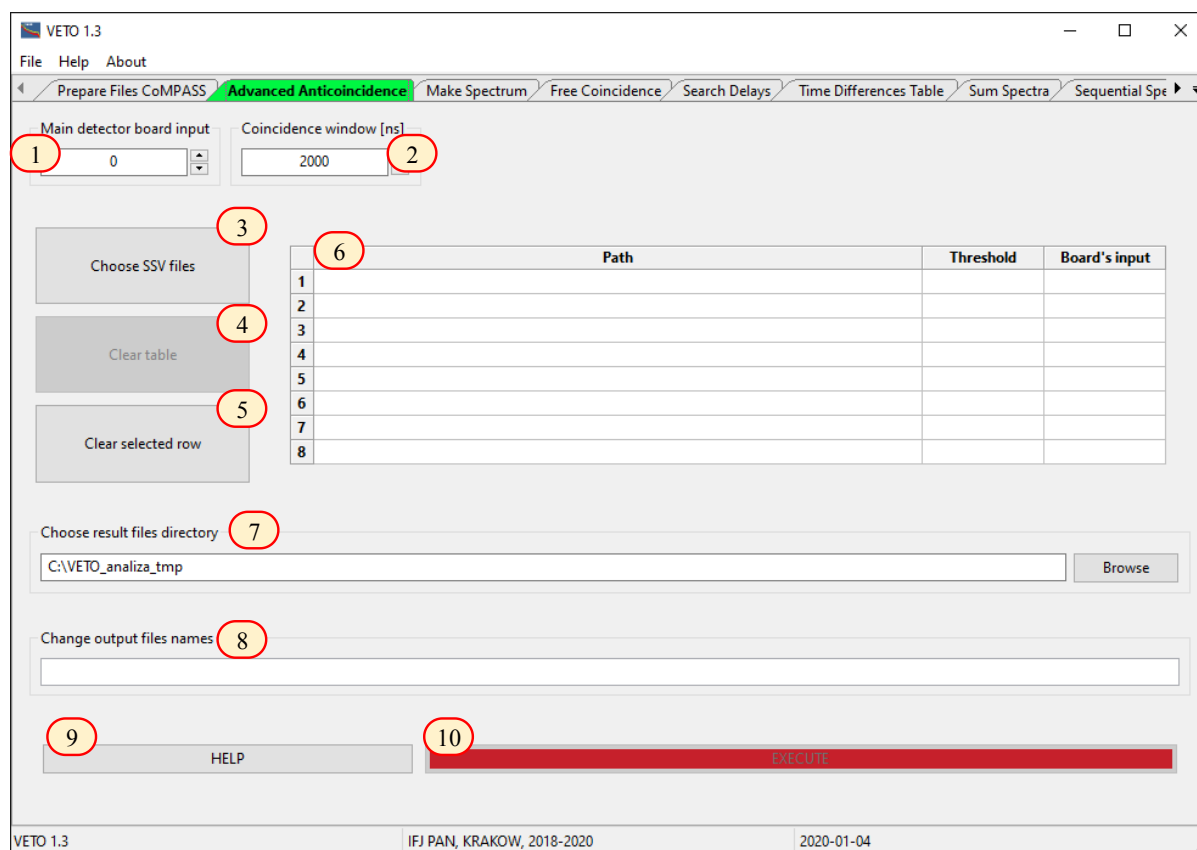


Rysunek A.5 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Prepare Files CoMPASS*. $K(k)$ - energia (wyrażona w kanałach) aktualnie przetwarzanego rekordu (k), Th - wybrany poziom progowy sygnału, $ZN(k)$ - znacznik czasowy k -tego impulsu, $ZN(k-1)$ - znacznik czasowy $k-1$ impulsu

Rysunek A.5 przedstawia schemat algorytmu stosowanego w *Prepare Files CoMPASS*, którego wykonywanie rozpoczyna się od pobrania nazwy pliku przeznaczonego do konwersji oraz otwarcia odpowiednich strumieni wejścia/wyjścia. Następnie odczytywany jest wiersz danych i sprawdzane jest ewentualne wystąpienie błędów zapisu. Jeśli rekord jest zapisany niepoprawnie, program przechodzi do kolejnego wiersza w pliku, natomiast w przeciwnym przypadku sprawdzana jest monotoniczność wzrostu wartości znaczników czasowych. Gdy jest ona właściwa (aktualny znacznik czasowy jest większy od poprzedniego), dane dotyczące impulsu: czas rejestracji (z uwzględnieniem opóźnienia względem detektora referencyjnego) oraz jego energia są zapisywane w pliku wynikowym. Jeśli natomiast aktualny znacznik czasowy jest mniejszy od poprzedniego, do wartości tego pierwszego dodawana jest wartość znacznika czasowego z ostatniego wiersza, dla którego nie nastąpiło przerwanie monotonicznego wzrostu wartości znaczników czasowych, a następnie dane zapisywane są do pliku wynikowego. W kolejnym kroku algorytm przechodzi do kolejnego wiersza, lub jeśli dotarł do końca pliku, kończy pracę, której wynikiem jest plik w formacie `{.ssv}`.

Advanced Anticoincidence

Rysunek A.6 przedstawia ekran programu *Advanced Anticoincidence* służącego do przygotowania widm antykoincydencyjnych z plików `{.ssv}` wygenerowanych wcześniej za pomocą programu *Prepare Files CoMPASS*. Głównym zadaniem tego podprogramu jest tworzenie widm antykoincydencyjnych, które ze względu na błędy w strukturze plików wyjściowych digitizera, nie mogą być procedowane za pomocą *Basic Veto*. Elementy ekranu

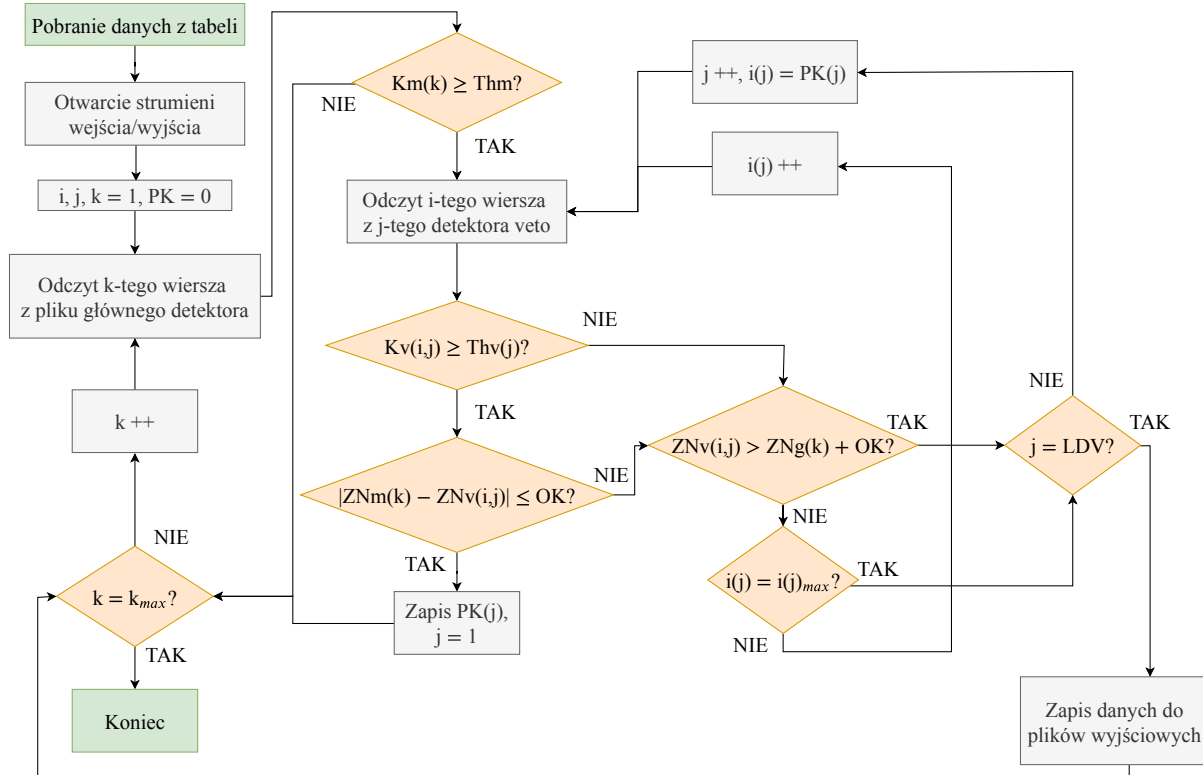


Rysunek A.6 Ekran *Advanced VETO - Advanced Anticoincidence*

są następujące:

1. **Main detector board input** - kontrolka wyboru numeru wejścia digitizera zajętego przez detektor, którego widmo antykoincydencyjne będzie tworzone,
2. **Coincidence window [ns]** - długość okna koincydencji wyrażona w nanosekundach,
3. **Choose SSV files** - przycisk wyboru plików `{.ssv}` do przygotowania widma antykoincydencyjnego,
4. **Clear table** - przycisk czyszczący tablicę (6), jest nieaktywny w przypadku pustej tabeli,
5. **Clear selected row** - przycisk czyszczący wybrany wiersz tabeli,
6. **Tabela plików .ssv** - tabela przechowująca ścieżki wybranych plików `{.ssv}`. Po załadowaniu nazw plików, program automatycznie wybierze odpowiedni poziom progowy widma energetycznego (ang. **Threshold**, na podstawie ustawień domyślnych z pliku `settings.cnf`) oraz numer wejścia digitizera zajętego przez dany detektor (pobranego z nazwy pliku (pierwszy znak w nazwie) lub wprowadzonego przez użytkownika),
7. **Choose result files directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu plików wynikowych,

8. **Change output files names** - kontrolka pozwalająca zmienić nazwy plików wynikowych,
9. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
10. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części programu.

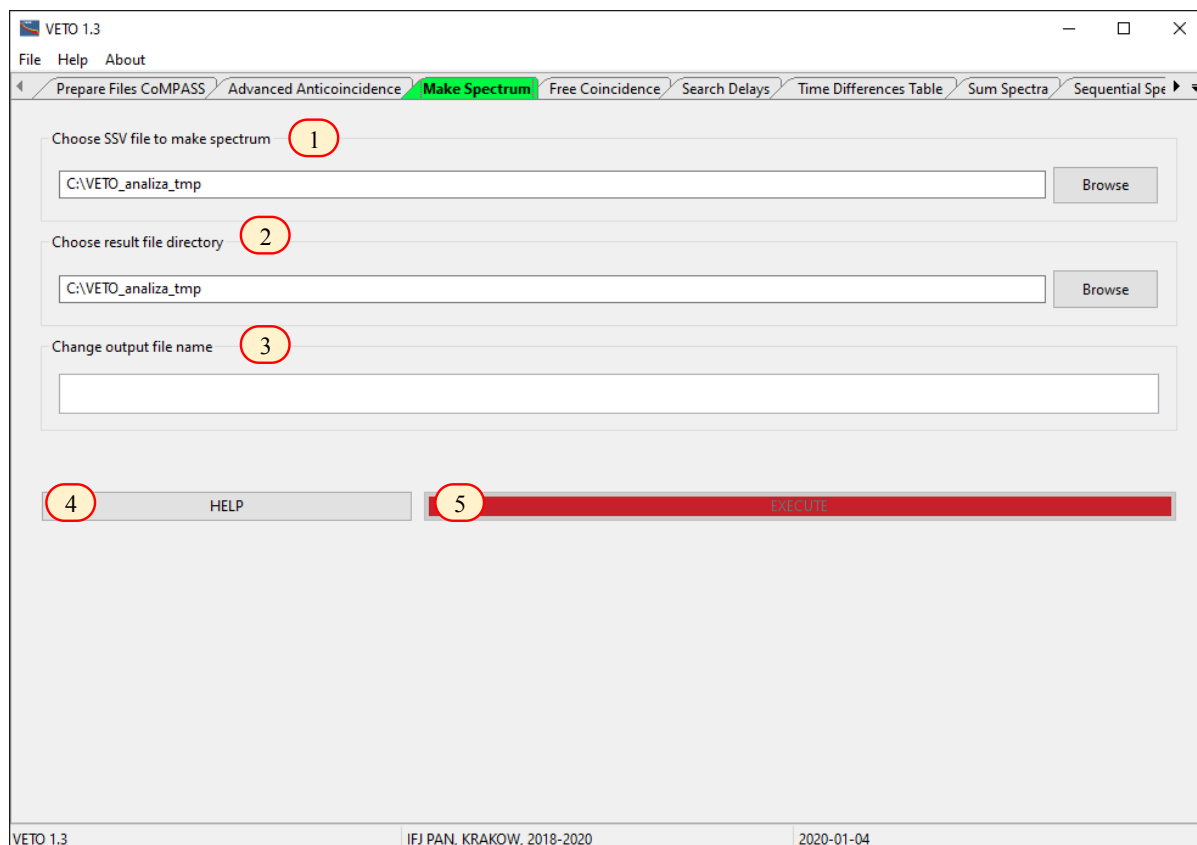


Rysunek A.7 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Advanced Anticoincidence*. $Km(k)$ - energia k -tego rekordu (wyrażona w kanałach) detektora głównego (ang. *main*), Thm - próg sygnału dla detektora głównego, $Kv(i,j)$ - energia i -tego zliczenia j -tego detektora veto (*v*), $Thv(j)$ - próg sygnału dla j -tego detektora veto, $ZNm(k)$ - znacznik czasowy k -tego zliczenia detektora głównego, $ZNv(i,j)$ - znacznik czasowy i -tego zliczenia j -tego detektora veto, OK - długość okna koincydencji, $PK(j)$ - Pozycja Koincydencji w strumieniu j -tego detektora veto, LDV - liczba detektorów veto

Rysunek A.7 przedstawia schemat algorytmu *Advanced Anticoincidence*. Podobnie jak Basic VETO, podprogram rozpoczyna pracę od pobrania nazw plików oraz otwarcia strumieni wejścia/wyjścia. Następnie pobierany jest k -ty rekord detektora głównego (ang. *main*) i sprawdzane jest czy energia zliczenia, wyrażona w kanałach, jest większa bądź równa od zadanego poziomu progowego (Thm). Jeśli test wypadnie negatywnie, pobierany jest następny rekord lub kończona jest praca algorytmu (gdy $k = k_{max}$). W przeciwnym przypadku pobierany jest i -ty wiersz z j -tego detektora veto i sprawdzane czy i ten sygnał jest wyższy bądź równy odpowiedniej wartości progowej. W następnym kroku, sprawdzana jest koincydencja pomiędzy pobranymi rekordami. Jeśli dane impulsy zostały zarejestrowane w czasie trwania okna koincydencji, algorytm zapisuje wskaźnik danego strumienia w PK i powraca do punktu poboru danych detektora głównego, natomiast

w przeciwnym przypadku, badana jest możliwość wystąpienia koincydencji w następnym wierszu j-tego detektora lub następuje przejście do następnego pliku detektorów veto. Jeśli program przeszuka wszystkie wiersze wszystkich detektorów pracujących jako osłona aktywna detektora głównego (zarejestrowane nie później niż długość OK) i nie napotka przypadków koincydencji, dokonywany jest zapis danych do plików wynikowych (w formacie $\{.ssv\}$ z rekordami antykoincydencyjnymi oraz $\{.tka\}$ z widmem energetycznym) i program odczytuje kolejny wiersz detektora głównego lub kończy pracę.

Make Spectrum

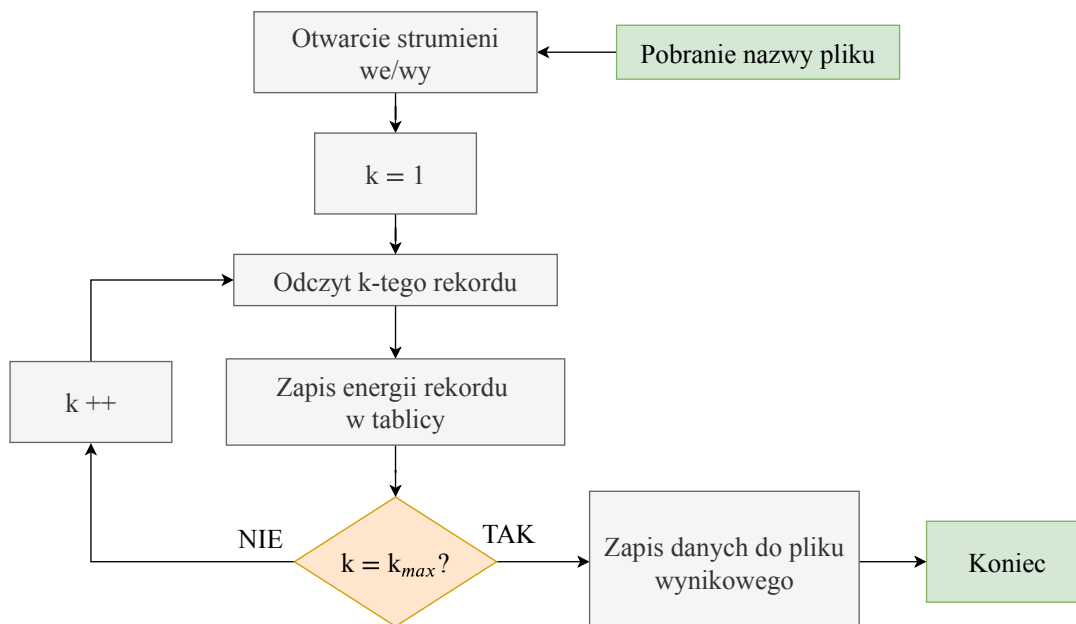


Rysunek A.8 Ekran *Advanced VETO - Make Spectrum*

Rysunek A.8 przedstawia okno podprogramu *Make Spectrum* służącego do tworzenia widma energetycznego z pliku $\{.ssv\}$. Długość widma (4096, 8192 lub 16384 kanałów) oraz czas pomiaru pobierane są z nagłówka pliku wejściowego. Elementy ekranu są następujące:

1. **Choose SSV file to make spectrum** - przycisk wyboru plików $\{.ssv\}$ do przygotowania widma energetycznego,
2. **Choose result file directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu pliku wynikowego,
3. **Change output file name** - kontrolka pozwalająca zmienić nazwę pliku wynikowego,
4. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,

5. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części programu.



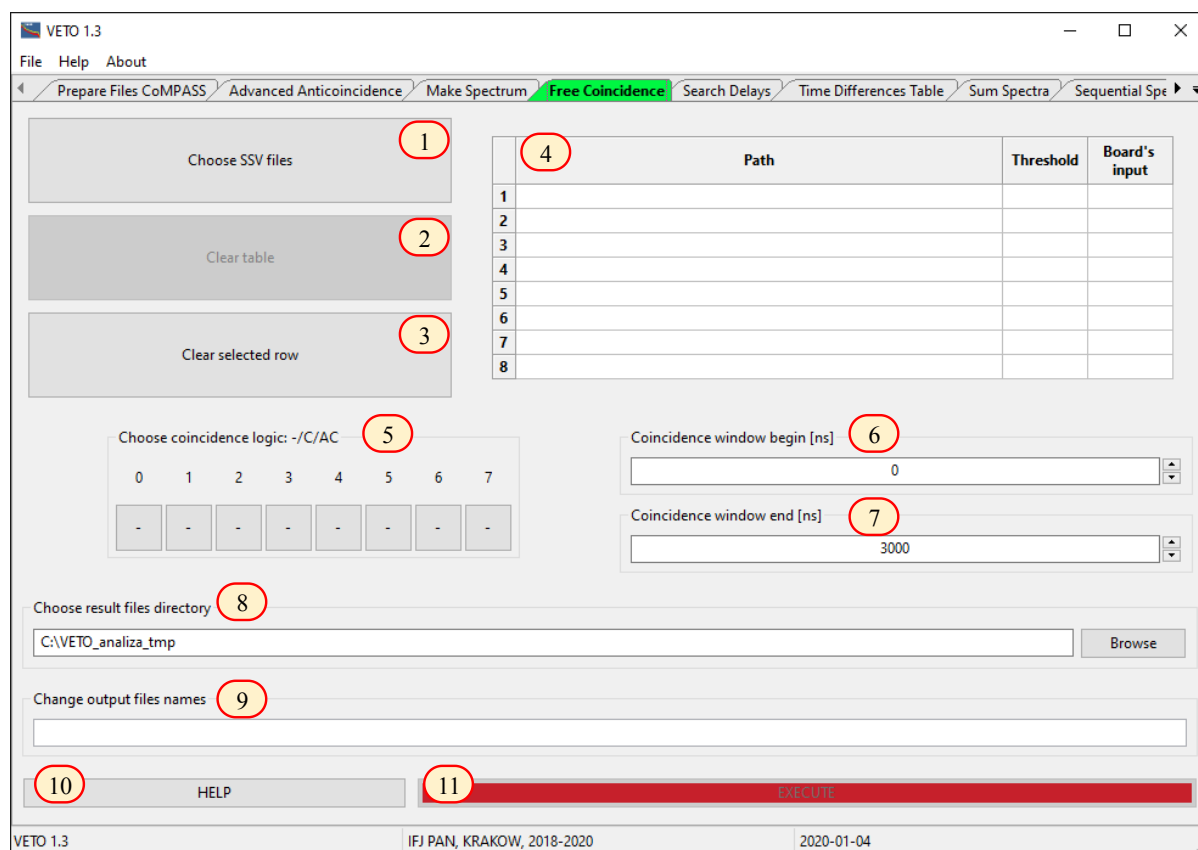
Rysunek A.9 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Make Spectrum*

Algorytm podprogramu *Make Spectrum* (Rysunek A.9) rozpoczyna pracę od pobrania nazwy pliku wejściowego oraz otwarcia strumieni wejścia/wyjścia danych. Następnie odczytywany jest k-ty wiersz pliku, pobierana jego energia (w kanałach) i zapisywana do tablicy. Jeśli jest to możliwe, algorytm odczytuje kolejny wiersz i powtarza powyższe kroki, aż do końca pliku wejściowego. Wtedy następuje zapis tablicy danych do pliku wyjściowego i program kończy pracę. Wynikiem pracy programu jest plik w formacie `{.tka}`.

Free Coincidence

Rysunek A.10 przedstawia okno podprogramu *Free Coincidence* przeznaczonego do badania koincydencji i antykoincydencji między dowolnie wybranymi detektorami. Elementy ekranu są następujące:

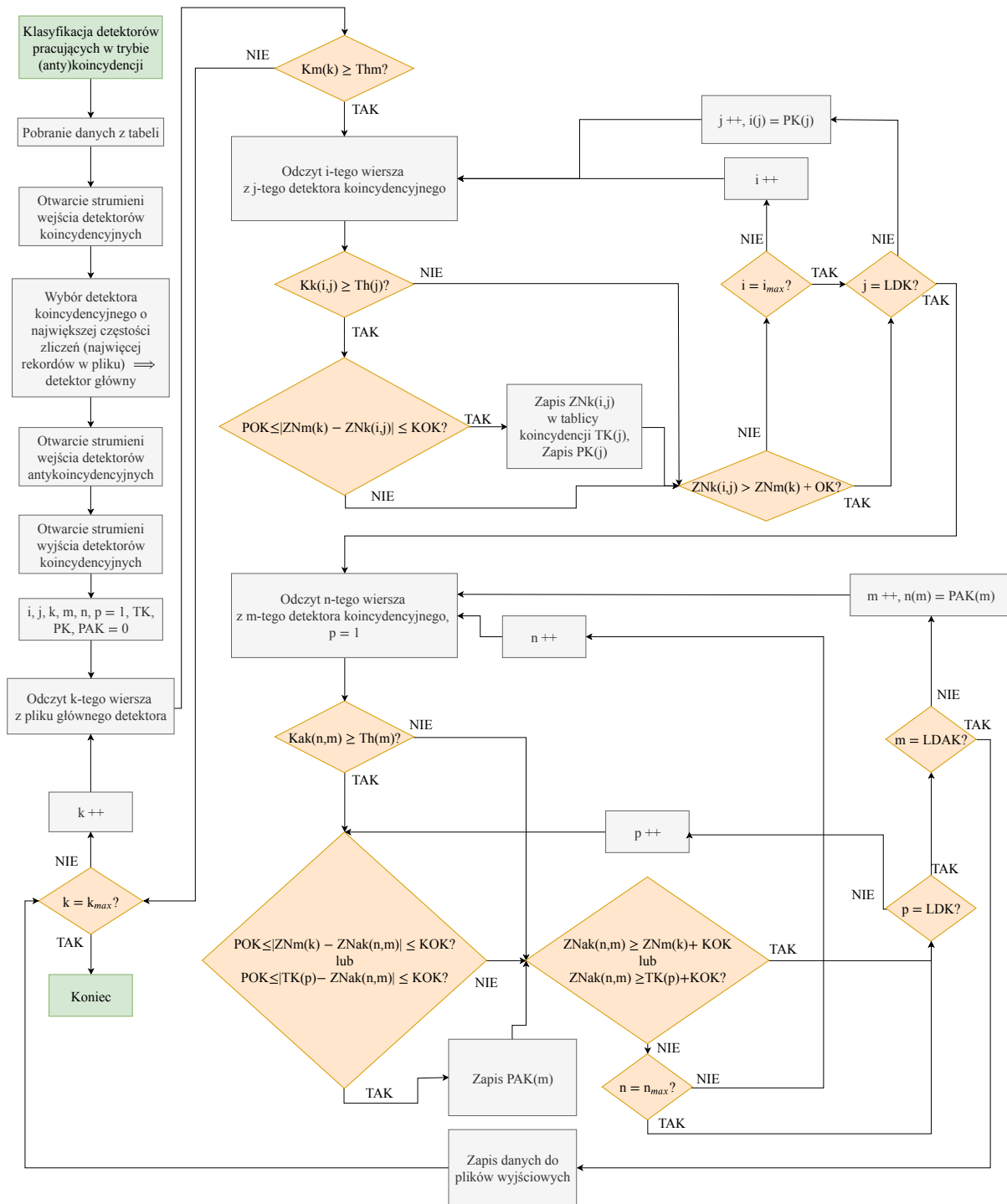
1. **Choose SSV files** - przycisk wyboru wejściowych plików `{.ssv}`,
2. **Clear table** - przycisk czyszczący tablicę (4), jest nieaktywny w przypadku pustej tabeli,
3. **Clear selected row** - przycisk czyszczący wybrany wiersz tabeli,
4. **Tabela plików .ssv** - tabela przechowująca ścieżki wybranych plików `{.ssv}`. Po załadowaniu nazw plików, program automatycznie wybierze odpowiedni poziom progowy widma energetycznego (ang. *Threshold*, na podstawie ustawień domyślnych z pliku *settings.cnf*) oraz numer wejścia digitizera zajętego przez dany detektor (pobranego z nazwy pliku lub wprowadzonego przez użytkownika),



Rysunek A.10 Ekran *Advanced VETO - Free Coincidence*

5. **Choose coincidence logic: -/C/AC** - tablica wyboru logiki pracy detektorów: **C** - detektor pracujący w trybie koincydencji (musi być wybrany przynajmniej jeden), **AC** - detektor pracujący w trybie antykoincydencji, - - detektor niebiorący udziału w pracy algorytmu,
6. **Coincidence window begin [ns]** - początek okna koincydencji liczony od znacznika czasowego detektora głównego, wyrażony w nanosekundach,
7. **Coincidence window end [ns]** - koniec okna koincydencji, wyrażony w nanosekundach
8. **Choose result files directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu plików wynikowych,
9. **Change output files names** - kontrolka pozwalająca zmienić nazwę plików wynikowych,
10. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
11. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części programu.

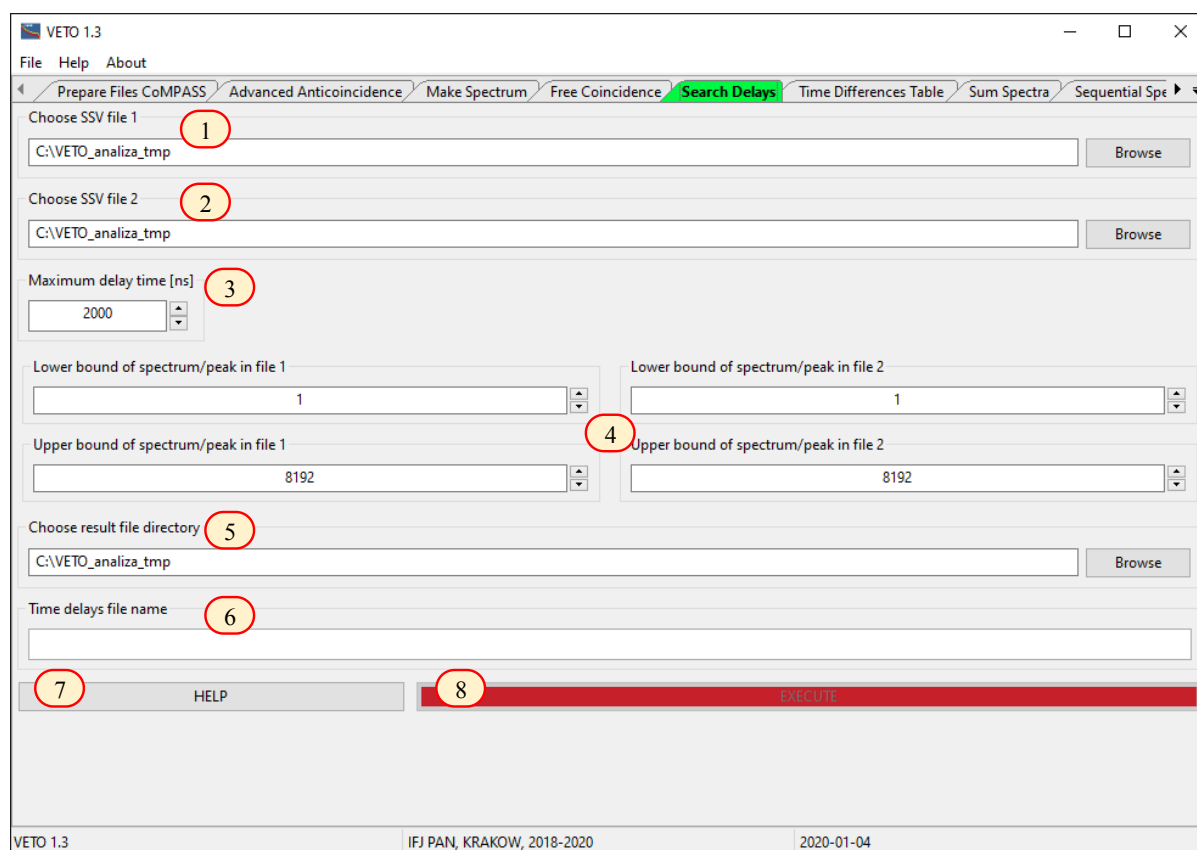
Po wprowadzeniu wymaganych danych i kliknięciu przycisku **EXECUTE** algorytm *Free Coincidence* (Rysunek A.11) pobiera informacje o wyborze funkcji detektorów (koincydencja lub antykoincydencja), ścieżki do plików na podstawie których otwiera odpowiednie strumienie wejścia/wyjścia oraz ze zbioru detektorów pracujących w trybie



Rysunek A.11 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Free Coincidence*. $Km(k)$ - energia k-tego rekordu (wyrażona w kanałach) detektora głównego (m), Thm - próg sygnału dla detektora głównego, $Kk(i,j)$ - energia i -tego zliczenia j -tego detektora koincydencyjnego (k), $Th(j)$ - próg sygnału dla j -tego detektora koincydencyjnego, POK - Początek Okna Koincydencji, KOK - Koniec Okna Koincydencji, $ZNm(k)$ - znacznik czasowy k -tego zliczenia detektora głównego, $ZNk(i,j)$ - znacznik czasowy i -tego zliczenia j -tego detektora koincydencyjnego, $TK(j)$ - Tablica Koincydencji, $PK(j)$ - Pozycja Koincydencji w strumieniu j -tego detektora koincydencyjnego, $Kak(n,m)$ - energia n -tego zliczenia m -tego detektora antykoincydencyjnego (ak), $Th(m)$ - próg sygnału dla m -tego detektora antykoincydencyjnego, $PAK(m)$ - Pozycja Koincydencji w strumieniu m -tego detektora antykoincydencyjnego, LDK - liczba detektorów koincydencyjnych, $LDAK$ - liczba detektorów antykoincydencyjnych

koincydencji, wyznacza detektor główny (ten który ma największą częstość zliczeń). Następnie odczytywany jest wiersz z pliku detektora głównego i sprawdzany jest poziom odpowiadającego mu sygnału (który musi być nie mniejszy od poziomu progowego Th_m , w przeciwnym przypadku pobiera kolejny rekord detektora głównego). W kolejnym kroku, pobierany jest i -ty wiersz j -tego detektora pracującego w koincydencji z detektorem głównym, sprawdzany jest poziom jego sygnału i wystąpienie koincydencji, w czasie trwania okna koincydencji. Jeśli warunek jest spełniony, dany rekord jest zapisywany w tablicy TK, a algorytm przechodzi do sprawdzenia możliwości wystąpienia koincydencji w następnym kroku i przechodzi do następnego rekordu lub kolejnego detektora koincydencyjnego. Po przeszukaniu plików detektorów koincydencyjnych, sprawdzane jest wystąpienie koincydencji między detektorem głównym i rekordami zapisanym w tablicy TK z detektorami antykoincydencyjnymi. Jeśli algorytm nie znajdzie przypadków antykoincydencji, a dla danego rekordu pliku głównego koincydencje wystąpiły z każdym detektorem koincydencyjnym, do plików wynikowych (w formacie $\{.ssv\}$) zapisywane są dane z tych detektorów. Prace optymalizacyjne wykazały, iż przy stosowanym systemie detekcyjnym, sprawdzanie wystąpienia koincydencji między wszystkimi parami detektorów znacząco wydłuża czas wykonania algorytmu, a różnica w liczbie znalezionych koincydencji jest na poziomie jedynie 0,01%.

Search Delays



Rysunek A.12 Ekran *Advanced VETO - Search Delay*

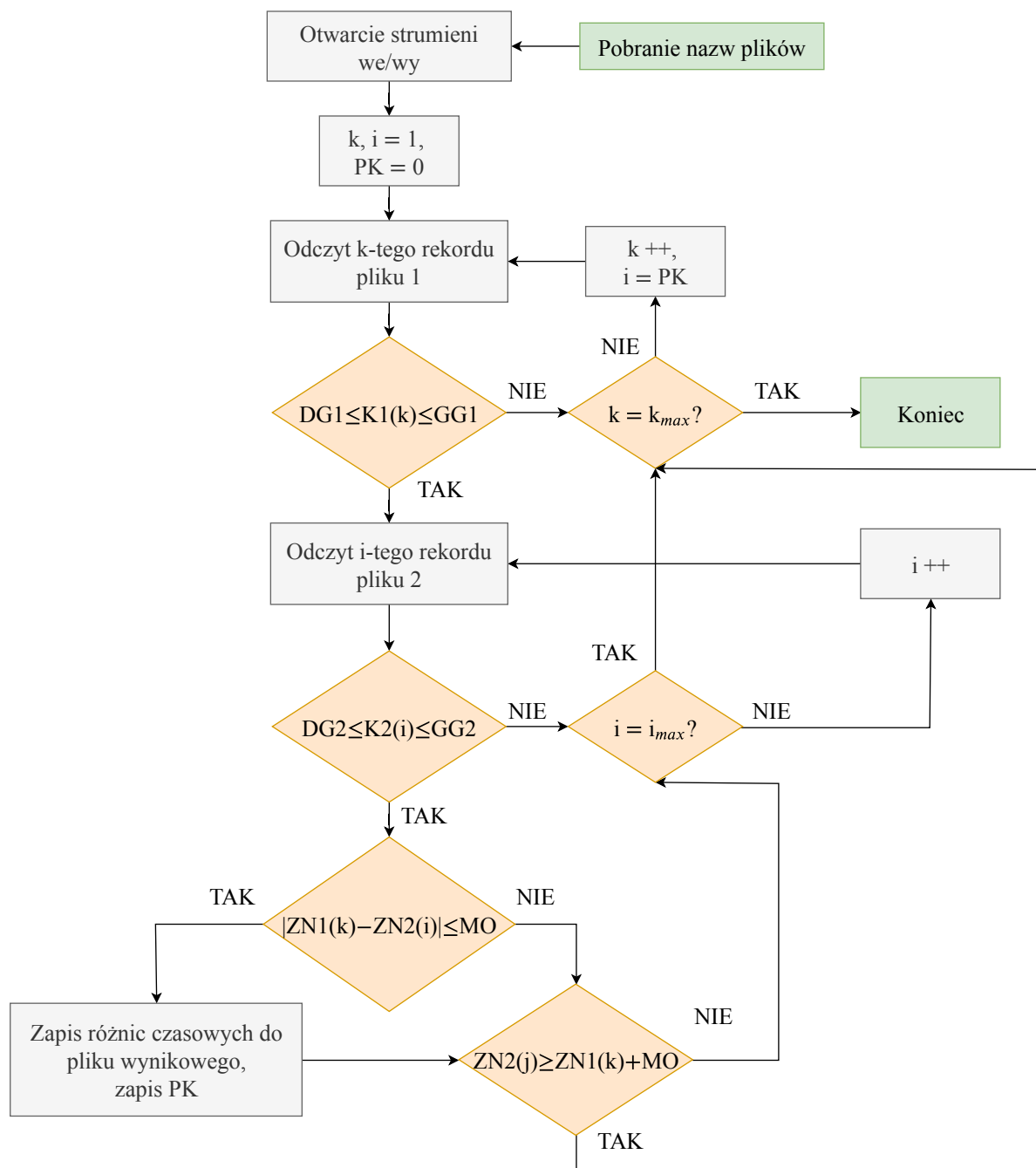
Rysunek A.12 przedstawia ekran podprogramu *Search Delay* służącego do wyznaczenia

nia opóźnień między detektorami pracującymi w systemie spektrometrycznym.

1. **Choose SSV file 1** - ścieżka do pliku detektora pierwszego (względem tego detektora będzie liczne opóźnienie),
2. **Choose SSV file 2** - ścieżka do pliku detektora drugiego,
3. **Maximum delay time [ns]** - maksymalne opóźnienie między detektorami, wyrażone w nanosekundach,
4. **Lower/Upper bound of spectrum/peak in file 1/2** - dolny/górny próg sygnału detektora pierwszego/drugiego. Kontrolki pozwalają wybrać obszar energetyczny (np. pików anihilacyjnego), z którego zliczenia będą użyte do wyznaczenia opóźnień,
5. **Choose result file directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu pliku wynikowego,
6. **Time delays file name** - nazwa pliku wynikowego,
7. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
8. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części programu.

Po wprowadzeniu niezbędnych danych przez użytkownika i rozpoczęcia pracy (wciśnięcie przycisku **EXECUTE**), algorytm pobiera nazwy plików detektorów których opóźnienie względne ma być wyznaczone i otwiera odpowiednie strumienie wejścia/wyjścia. Następnie odczytywany jest rekord z pliku detektora pierwszego i sprawdzany jest poziom jego sygnału. Jeśli zawiera się on w zadanym przez użytkownika zakresie, pobierany jest rekord z pliku detektora drugiego, dla którego również sprawdzane jest czy sygnał ma odpowiednią wartość. Jeśli test wypadnie pozytywnie, algorytm wyznacza różnicę między znacznikami czasowymi ($ZN1(k) - ZN2(i)$) i jeśli jej moduł jest mniejszy bądź równy maksymalnemu opóźnieniu sygnałów, jest ona zapisywana do pliku wynikowego, jak również zapisywana jest pozycja koincydencji, która pozwala rozpocząć wyznaczanie opóźnień dla następnego wiersza pliku detektora 1 od tego miejsca. Następnie sprawdzane jest przekroczenie wartości maksymalnego opóźnienia przez $ZN2(i)$, które jeśli nie nastąpiło i algorytm nie dotarł do końca pliku detektora 2, pobierany jest kolejny wiersz ($i++$) pliku drugiego detektora. W przeciwnym wypadku, aplikacja pobiera kolejny wiersz pliku detektora 1 lub, w przypadku dotarcia do końca pliku, kończy pracę.

W rezultacie wykonywania algorytmu powstaje plik wynikowy w formacie $\{.dat\}$ zawierający kolumnę z wyznaczonymi różnicami między znacznikami czasowymi przypadków koincydencyjnych, na podstawie którego można określić wzajemne opóźnienia między detektorami, na przykład poprzez wykreślenie histogramów tych opóźnień.

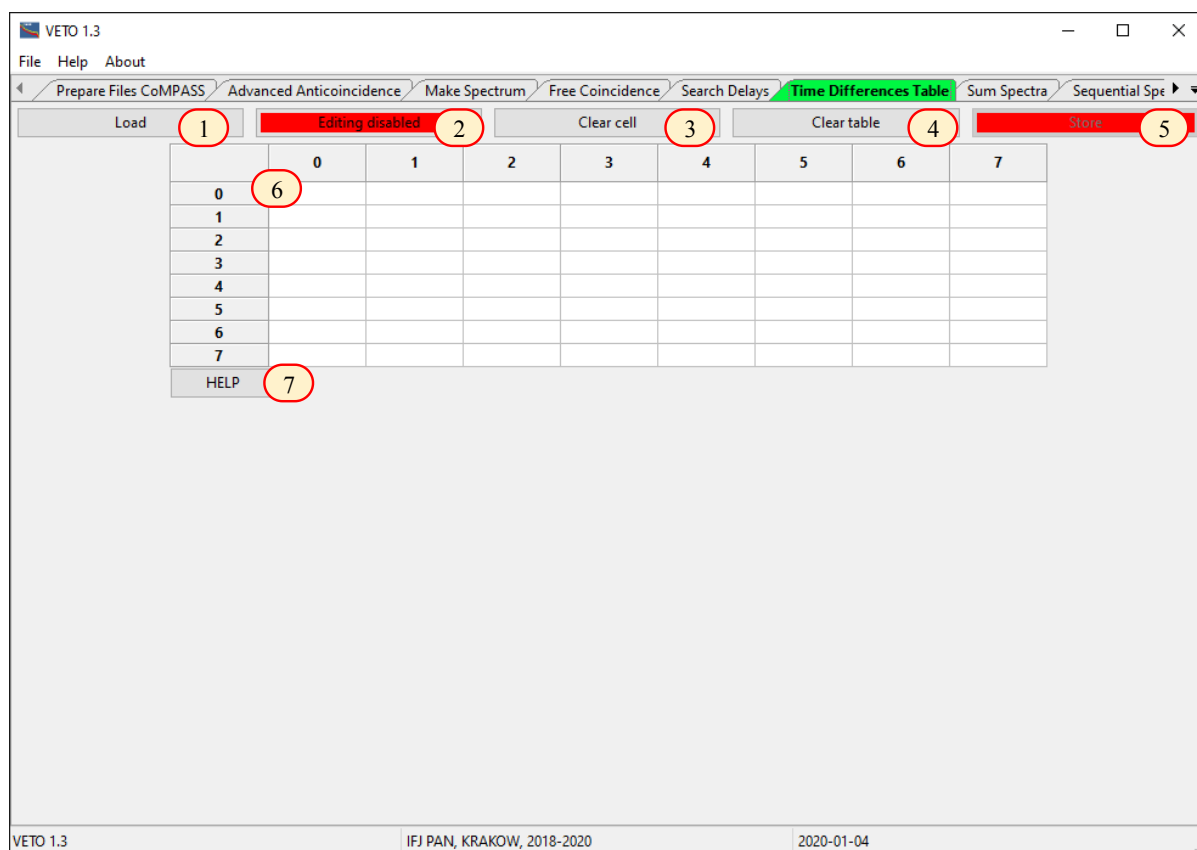


Rysunek A.13 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Search Delay*. DG1 - dolny próg sygnału detektora 1, GG1 - górny próg sygnału detektora 1, DG2 - dolny próg sygnału detektora 2, GG2 - górny próg sygnału detektora 2, ZN1(k) - znacznik czasowy k-tego rekordu detektora 1, ZN2(i) - znacznik czasowy i-tego rekordu detektora 2, PK - pozycja koincydencji, MO - Maksymalne Opóźnienie między detektorami

Time Differences Table

Rysunek A.14 przedstawia ekran podprogramu *Time Differences Table* służącego do tworzenia i aktualizacji tablicy opóźnień (w nanosekundach) między detektorami pracującymi w systemie spektrometrycznym. Składa się on z następujących elementów:

1. **Load** - przycisk pobierania danych (opóźnień między detektorami) zapisanych w pliku *settings.cnf*,



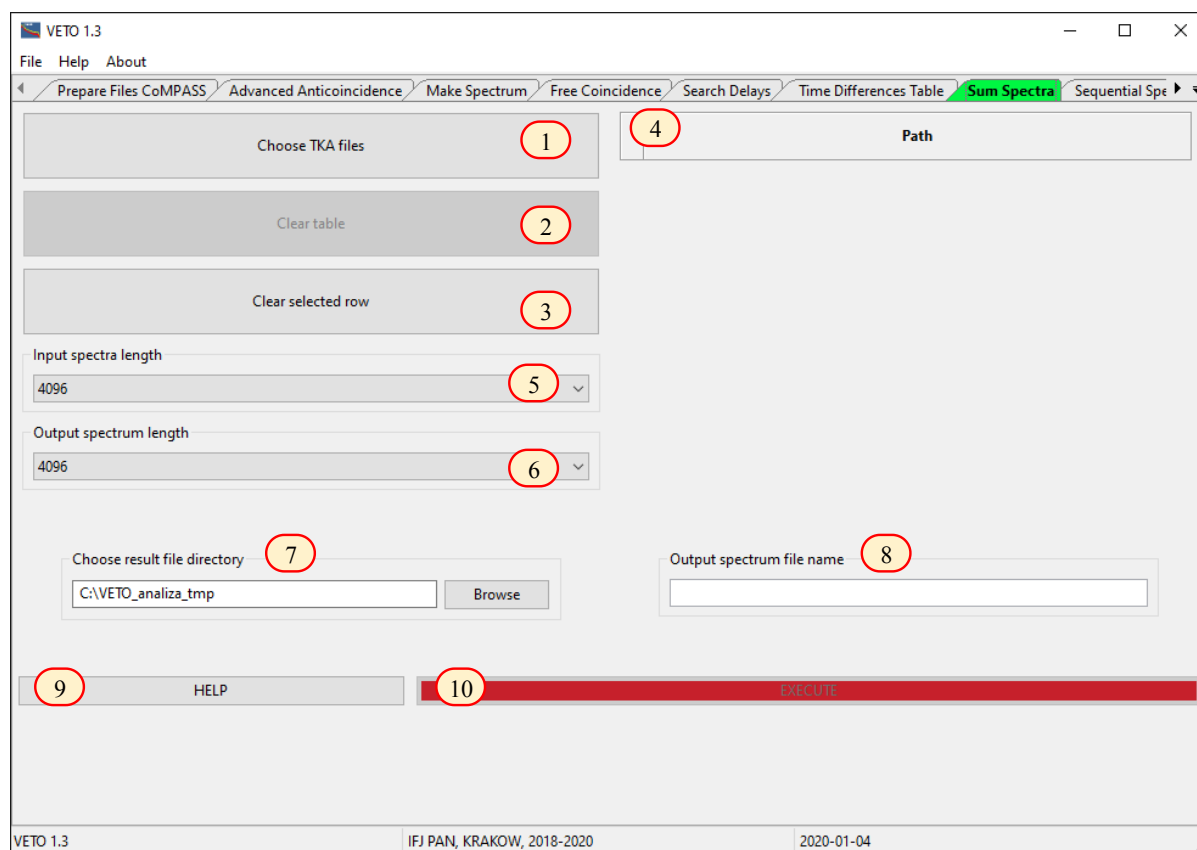
Rysunek A.14 Ekran *Advanced VETO - Time Differences Table*

2. **Editing disabled/Editing enabled** - przycisk aktywacji i dezaktywacji możliwości edycji i zapisu tablicy opóźnień. Gdy jest on czerwony, nie jest możliwe wprowadzanie i zapisywanie zmian.
3. **Clear cell** - przycisk czyszczący wybraną komórkę tablicy,
4. **Clear table** - przycisk czyszczący całą tablicę,
5. **Store** - przycisk zapisu danych z tablicy do pliku *settings.cnf*. Jest on aktywny (zielony) tylko po wcześniejszym wciśnięciu **Editing disabled**.
6. **Tablica opóźnień** - zawiera wyznaczone wartości opóźnień. Wartość w danej komórce oznacza opóźnienie między numerem detektora z wiersza, a numerem detektora z kolumny. Po wprowadzeniu wartości, program sam wypełni komórkę po drugiej stronie diagonalni tablicy wartością przeciwną.
7. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu.

Sum Spectra

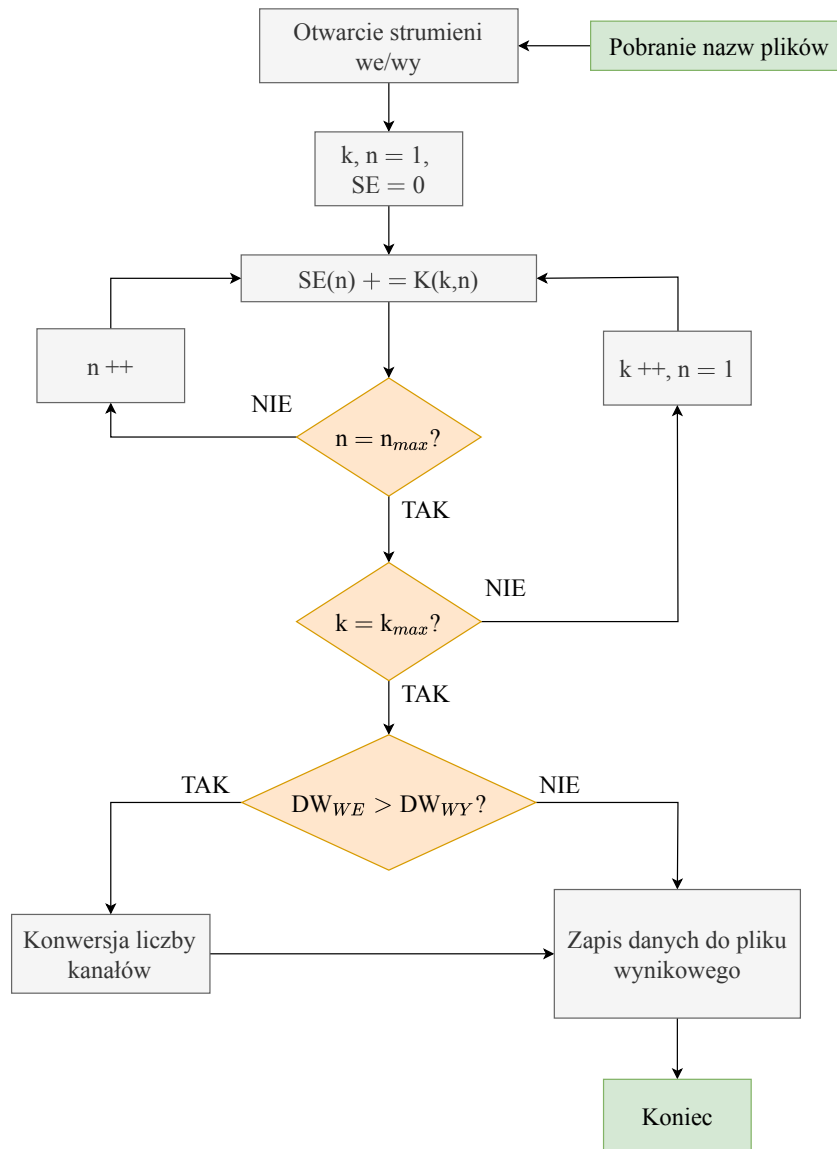
Rysunek A.15 przedstawia ekran podprogramu *Sum Spectra* służącego do sumowania widm energetycznych (w formacie *{.tka}*).

Elementy okna są następujące:



Rysunek A.15 Ekran *Advanced VETO - Sum Spectra*

1. **Choose TKA files** - przycisk wyboru plików z widmami energetycznymi w formacie $\{.tka\}$,
2. **Clear table** - przycisk czyszczący tablicę (4), jest nieaktywny w przypadku pustej tabeli,
3. **Clear selected row** - przycisk czyszczący wybrany wiersz tabeli,
4. **Tabela plików .tka** - zawierająca ścieżki do wybranych plików, rozmiar tablicy dobierany jest automatycznie do liczby plików,
5. **Input spectra length** - długość (w kanałach: 4096, 8192 lub 16384) wybranych widm. Widma **muszą** mieć tę samą długość.
6. **Output spectrum length** - długość widma wynikowego. Wybór innej długości niż widm wejściowych umożliwia konwersję liczby kanałów widma,
7. **Choose result file directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu pliku wynikowego,
8. **Output spectrum file name** - nazwa widma wynikowego,
9. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
10. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części aplikacji.



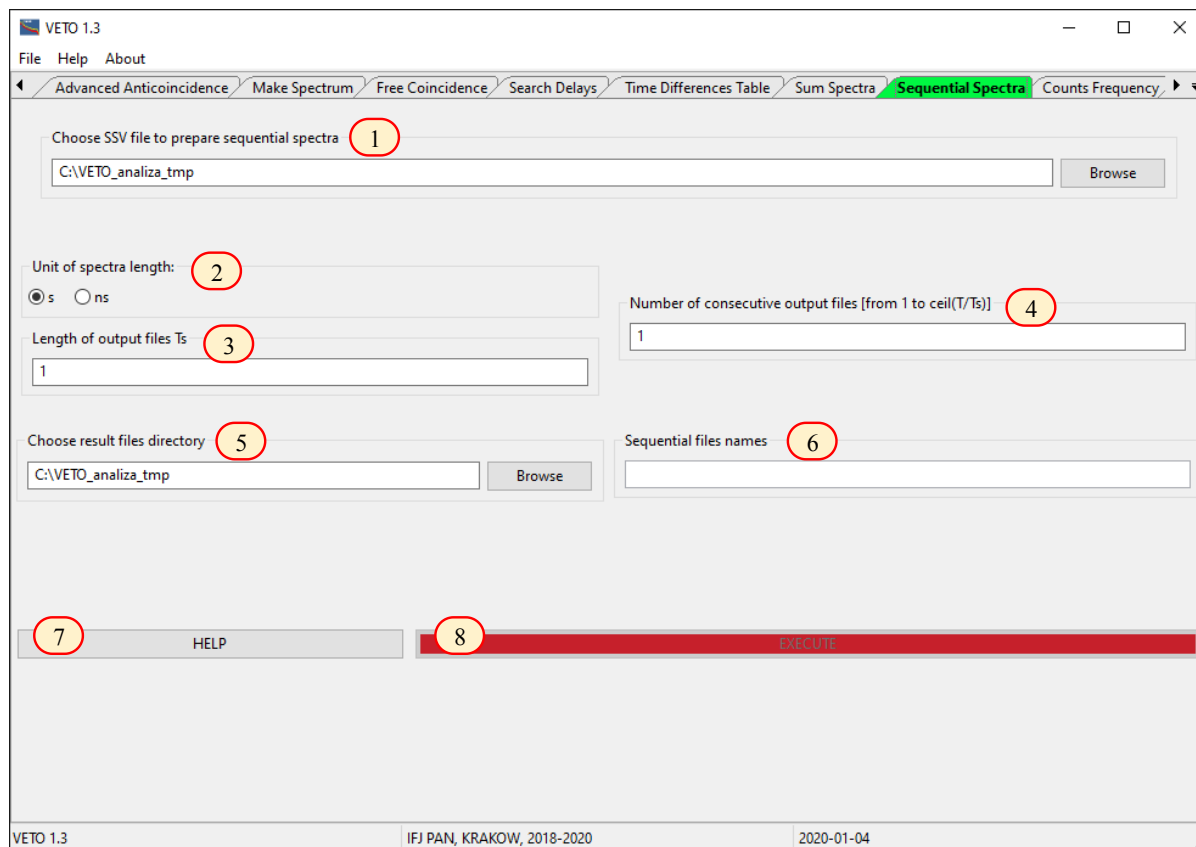
Rysunek A.16 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Sum Spectra*. $SE(n)$ - suma energii zarejestrowana w n -tym kanale, operator $x+ = y$ oznacza $x = x + y$, $K(k,n)$ - energia w n -tym kanale k -tego pliku, n_{max} liczba kanałów widm wejściowych, DW_{WE} - Długość Widm WEjściowych, DW_{WY} - Długość Widma WYjściowego

Po wybraniu plików do sumowania, ich długości oraz liczby kanałów i nazwy pliku wynikowego użytkownik może rozpocząć wykonywanie algorytmu (Rysunek A.16). Po pobraniu nazw plików i otwarciu strumieni wejścia/wyjścia, program sumuje odpowiednie kanały w plikach wejściowych. Jeśli długość widm wejściowych jest większa od długości widma wyjściowego, program dokonuje konwersji długości widma wynikowego (możliwe stopnie konwersji: $16384 \rightarrow 8192$, $16384 \rightarrow 4096$, $8192 \rightarrow 4096$), a wynik następnie zapisuje do utworzonego pliku w formacie $\{.tka\}$ o nazwie podanej w kontrolce **Summed spectrum file name**.

Sequential Spectra

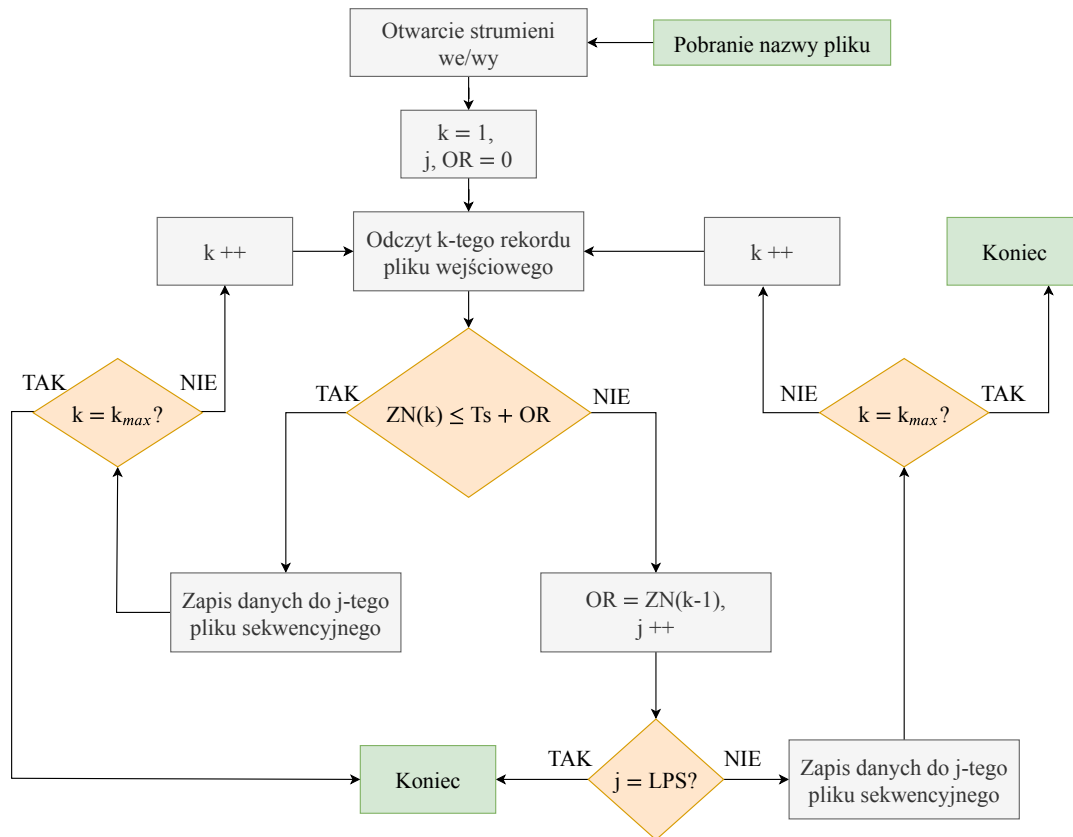
Rysunek A.17 przedstawia okno podprogramu *Sequential Spectra* służącego do tworzenia sekwencji plików $\{.ssv\}$ o zadanej długości z jednego pliku wejściowego w tym samym

formacie. Elementy ekranu są następujące:



Rysunek A.17 Ekran *Advanced VETO - Sequential Spectra*

1. **Choose SSV file to prepare sequential spectra** - przycisk wyboru pliku wejściowego,
2. **Unit of spectra length** - przycisk wyboru jednostki długości T_s plików sekwencyjnych. Możliwy wybór: sekundy [s] i nanosekundy [ns].
3. **Length of output files T_s** - długość T_s plików wynikowych,
4. **Number of consecutive output files [from 1 to $\text{ceil}(T/T_s)$]** - liczba kolejnych plików wynikowych, zawierająca się w przedziale od 1 do $\text{ceil}(T/T_s)$ gdzie T to czas trwania widma wejściowego (ceil to funkcja zaokrąglająca liczby rzeczywiste do liczb całkowitych w górę),
5. **Choose result files directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu plików wynikowych,
6. **Sequential files names** - nazwy widm wynikowych. Kolejne nazwy plików numerowane są od zera, liczbami dodanymi na końcu nazwy wpisanej w tej kontrolce,
7. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
8. **EXECUTE** - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części aplikacji.

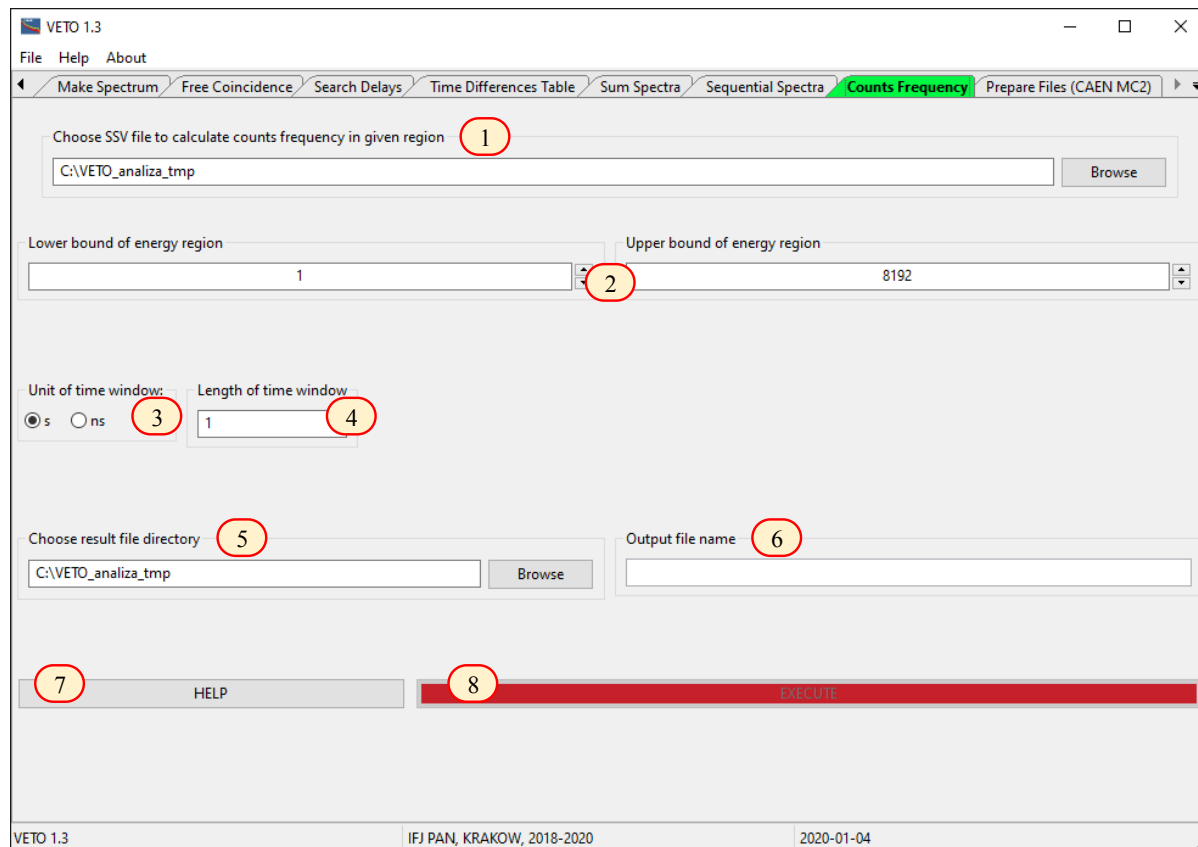


Rysunek A.18 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Sequential Spectra*. OR - **O**statni **R**ekord - pozwala na poprawne wyznaczenie czasu trwania kolejnych widm sekwencyjnych, $ZN(k)$ - znacznik czasowy k-tego rekordu pliku wejściowego, T_s - wybrany czas trwania widm sekwencyjnych, LPS - liczba plików sekwencyjnych - pobrana z kontrolki **Number of consecutive output files**

Po wprowadzeniu przez użytkownika niezbędnych danych, algorytm (Rysunek A.18) pobiera nazwę pliku wejściowego oraz otwiera strumień wejścia/wyjścia danych. Następnie program przechodzi do k-tego rekordu pliku wejściowego oraz sprawdza czy pobrany znacznik czasowy jest mniejszy od podanego przez użytkownika czasu trwania widm sekwencyjnych (powiększonego o ostatni rekord pliku poprzedniego, co pozwala na poprawne wyznaczenie czasów trwania kolejnych widm sekwencyjnych; $OR = 0$ dla pierwszego pliku wynikowego). Jeśli test wypadnie pozytywnie, dany rekord zapisywany jest w j-tym pliku wyjściowym, a algorytm przechodzi do kolejnego wiersza pliku wejściowego (lub kończy pracę w przypadku dotarcia do końca pliku). W przeciwnym wypadku, program zapisuje poprzedni znacznik czasowy jako OR i próbuje przejść do kolejnego pliku wynikowego ($j++$), zapisać w nim obecny wiersz oraz przejść do kolejnego rekordu pliku wejściowego, o ile nie osiągnięto już wskazanej przez użytkownika liczby plików sekwencyjnych (LPS), co kończy pracę programu. Wynikiem pracy programu są pliki w formacie $\{.ssv\}$ (w liczbie **Number of consecutive output files [from 1 to $\text{ceil}(T/T_s)$]**) zawierające podzielony na odpowiednią długość plik wejściowy.

Counts Frequency

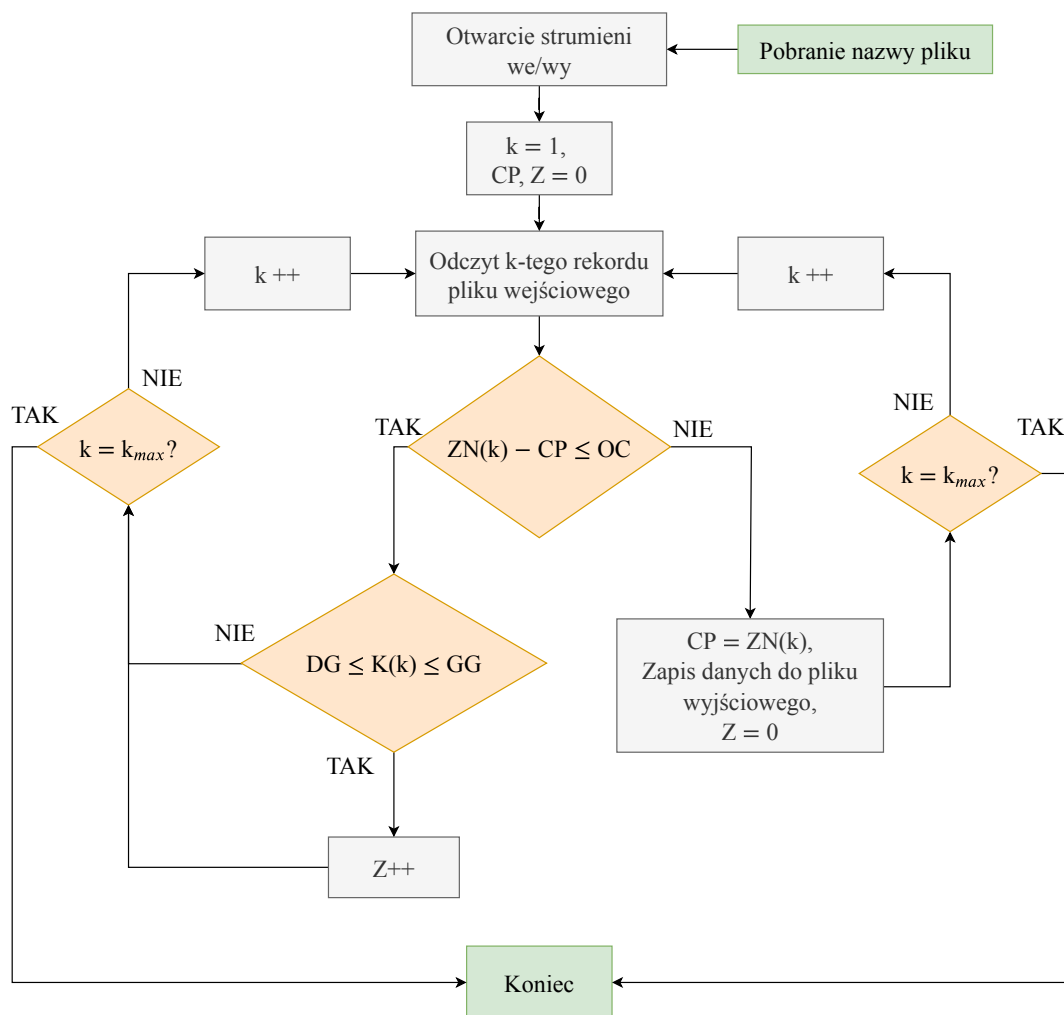
Rysunek A.19 przedstawia ekran podprogramu *Counts Frequency* przeznaczonego do wyznaczania liczby zliczeń w zadanym przedziale energetycznym w czasie trwania okna czasowego. Elementy ekranu są następujące:



Rysunek A.19 Ekran *Advanced VETO - Counts Frequency*

1. **Choose SSV file to calculate counts frequency in given region** - przycisk wyboru pliku wejściowego,
2. **Lower/Upper bound of energy region** - dolna/górna granica obszaru energetycznego, w którym wyznaczana jest częstość zliczeń,
3. **Unit of time window** - przycisk wyboru jednostki długości okna czasowego. Możliwy wybór: sekundy [s] i nanosekundy [ns].
4. **Length of time window** - długość okna czasowego,
5. **Choose result file directory** - kontrolka pozwalająca wybrać lokalizację folderu pliku wynikowego,
6. **Output file name** - nazwa pliku wynikowego. W przypadku nie podania innej nazwy, domyślna nazwa będzie zawierała nazwę pliku wejściowego rozszerzoną o `_cfreq`,
7. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,

8. EXECUTE - przycisk rozpoczynający wykonywanie algorytmu tej części aplikacji.



Rysunek A.20 Schemat algorytmu *Advanced VETO - Counts Frequency*. CP - Czas Początkowy od którego liczona jest długość kolejnego okna czasowego, Z - liczba zliczeń w danym obszarze energetycznym w czasie trwania okna czasowego, OC - wybrana długość Okna Czasowego, DG/GG - dolna/górna granica obszaru energetycznego

Algorytm podprogramu (Rysunek A.20) rozpoczyna pracę od pobrania nazwy pliku wejściowego oraz otwarcia strumieni wejścia/wyjścia. Następnie pobierany jest pierwszy rekord z pliku i sprawdzane jest czy znacznik czasowy jest mniejszy od wybranej długości trwania okna czasowego. Jeśli test wypadnie pozytywnie, algorytm sprawdza czy wartość energii danego rekordu zawiera się w zadanym przedziale (pomiędzy dolną a górną granicą obszaru energetycznego), i jeśli tak, licznik zliczeń zwiększany jest o jeden ($Z++$). W przeciwnym wypadku, program próbuje pobrać kolejny ($k+1$) rekord pliku wejściowego lub kończy pracę. Natomiast jeśli wartość danego znacznika czasowego przekroczy czas trwania okna czasowego, jest ona przypisywana do zmiennej CP (stanowiącej początek kolejnego okna czasowego) oraz do pliku wyjściowego zapisywane są dane i zerowany jest licznik zliczeń. Następnie algorytm próbuje odczytać kolejny wiersz pliku wejściowego lub, w przypadku dotarcia do jego końca, zatrzymuje się.

Plik wynikowy zapisywany jest w formacie $\{.dat\}$ i zawiera trzy kolumny: **Time start** - początek danego okna czasowego, **Time stop** - koniec danego okna czasowego oraz

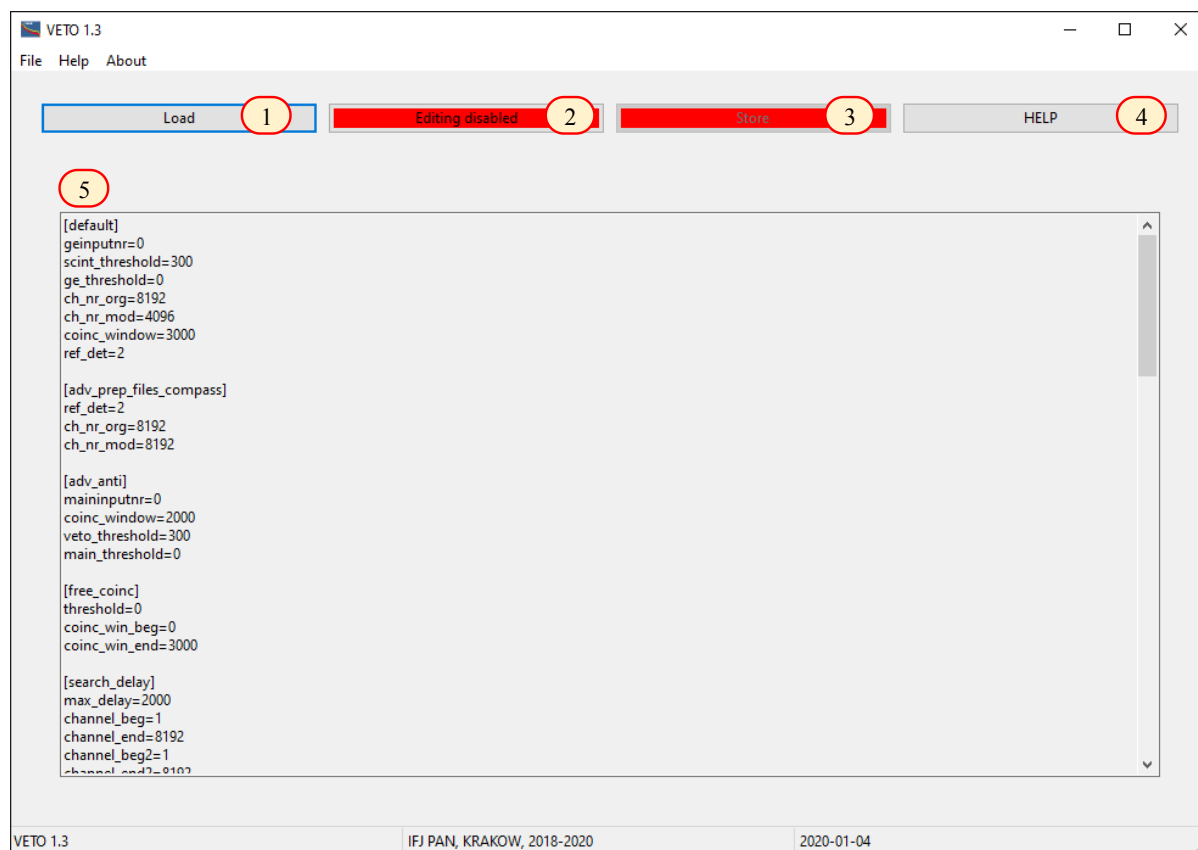
Counts - przedstawiającą liczbę zliczeń zarejestrowaną w danym obszarze energetycznym w czasie trwania okna czasowego.

Prepare Files (CAEN MC2)

Podprogram *Prepare Files (CAEN MC2)* służy do obsługi plików wyjściowych programu CAEN MC², stosowanego przed wprowadzeniem przez producenta digitizera, programu akwizycji danych CAEN CoMPASS. Mając na uwadze uniwersalność stworzonego programu VETO, użytkownik może go stosować także do obsługi plików generowanych przez program CAEN MC². Pliki te (zapisywane w formacie {*.txt*}) zawierają pięć wierszy nagłówka, a dane pomiarowe, zapisywane w kolejnych wierszach to: czas rejestracji (w nanosekundach), energia i kod błędu, a oddzielone są jedną spacją. Algorytm *Prepare Files (CAEN MC2)* dokonuje ich konwersji na pliki formatu {*.ssv*}, przygotowując do dalszej analizy. Zarówno elementy ekranu, jak i algorytm tej części aplikacji są analogiczne jak w przypadku *Prepare Files CoMPASS*.

A.3 Settings

Rysunek A.21 przedstawia ekran ustawień domyślnych wartości kontrolki programu VETO *Settings* służącego do wyświetlania i zmiany wartości parametrów zapisanych w pliku *settings.cnf*. Elementy ekranu są następujące:



Rysunek A.21 Ekran *Settings*

1. **Load** - przycisk wyboru pliku *settings.cnf*,
2. **Editing disabled/Editing enabled** - przycisk aktywacji i dezaktywacji możliwości edycji i zapisu zmian wprowadzonych w pliku *settings.cnf*,
3. **Store** - przycisk zapisu danych do pliku *settings.cnf*. Jest on aktywny (zielony) tylko po wcześniejszym wciśnięciu **Editing disabled**.
4. **Help** - wyświetla okno dialogowe z pomocą dotyczącą danej części programu,
5. **Pole edycji** - wyświetla oraz umożliwia edycję wartości domyślnych kontrolki programu VETO.

Po wyborze pliku *settings.cnf* za pomocą okna dialogowego uruchamianego przyciskiem **Load**, program ładuje jego treść do **Pola edycji**. Wprowadzanie zmian jest możliwe po wcześniejszym aktywowaniu przycisku **Editing disabled** (zmiana nazwy kontrolki na **Editing enabled** i koloru na zielony). Wtedy też można zapisać wprowadzone zmiany do pliku *{.cnf}*. Tabela A.1 zawiera zestawienie wartości domyślnych kontrolki programu VETO.

Tabela A.1 Zestawienie wartości domyślnych kontrolki programu VETO zapisywanych w pliku *settings.cnf*

Nazwa w pliku <i>settings.cnf</i>	Kontrolka w programie VETO	Wartość domyślna
[default]		
BASIC VETO		
geinputnr	Ge detector board input	0
scint_threshold	Threshold (dla detektorów scyntylicyjnych)	300
ge_threshold	Threshold (dla detektora germanowego)	0
ch_nr_org	Input spectrum channels	8192
ch_nr_mod	Output spectrum channels	4096
coinc_window	Coincidence window length	3000
ref_det	Reference detector	2
[adv_prep_files_compass]		
Prepare files CoMPASS		
ref_det	Reference detector board input	2
ch_nr_org	Input spectrum channels	8192
ch_nr_mod	Output spectrum channels	8192
[adv_anti]		
Advanced Anticoincidence		
maininputnr	Main detector board input	0
coinc_window	Coincidence window	2000
veto_threshold	Threshold (dla detektorów veto)	300
main_threshold	Threshold (dla detektora głównego)	0
[free_coinc]		
Free Coincidence		
threshold	Threshold	0

coinc_win_beg	Coincidence window begin [ns]	0
coinc_win_end	Coincidence window end [ns]	3000
<hr/>		
[search_delay]	Search Delays	
max_delay	Maximum delay time [ns]	2000
channel_beg	Lower bound of spectrum/peak in file 1	1
channel_end	Upper bound of spectrum/peak in file 1	8192
channel_beg2	Lower bound of spectrum/peak in file 2	1
channel_end2	Upper bound of spectrum/peak in file 2	8192
<hr/>		
[sum_spectra]	Sum Spectra	
length	Spectra length / Summed spectrum length	4096
<hr/>		
[cfreq]	Counts Frequency	
channel_beg	Lower bound of energy region	1
channel_end	Upper bound of energy region	8192
<hr/>		
[adv_prep_files_mc2]	Prepare Files (CAEN MC2)	
ref_det	Reference detector board input	2
ch_nr_org	Input spectrum channels	8192
ch_nr_mod	Output spectrum channels	8192
<hr/>		
[t_diff_table]	Time Differences Table	
det00 (detXY)	Opóźnienie X - Y	0.00
det01		1720.00
det02		1645.00
det03		1694.00
det04		1635.00
det05		1615.00
det06		0.00
det07		0.00
det10		-1720.00
det11		0.00
det12		-76.75
det13		-36.76
det14		-77.87
det15		-102.89
det16		0.00
det17		0.00
det20		-1645.00
det21		76.75
det22		0.00
det23		43.10
det24		-1.83
det25		-26.26

det26	0.00
det27	0.00
det30	-1694.00
det31	36.76
det32	-43.10
det33	0.00
det34	-43.60
det35	-68.18
det36	0.00
det37	0.00
det40	-1635.00
det41	77.87
det42	1.83
det43	43.60
det44	0.00
det45	-24.54
det46	0.00
det47	0.00
det50	-1615.00
det51	102.89
det52	26.26
det53	68.18
det54	24.54
det55	0.00
det56	0.00
det57	0.00
det60	0.00
det61	0.00
det62	0.00
det63	0.00
det64	0.00
det65	0.00
det66	0.00
det67	0.00
det70	0.00
det71	0.00
det72	0.00
det73	0.00
det74	0.00
det75	0.00
det76	0.00
det77	0.00

Dodatek B

Dane techniczne scyntylatorów EJ-200

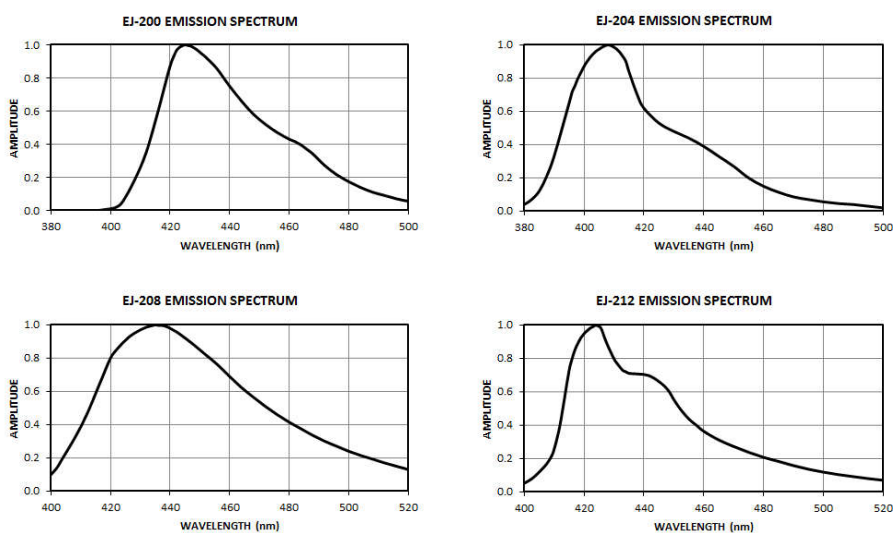
PROPERTIES	EJ-200	EJ-204	EJ-208	EJ-212
Light Output (% Anthracene)	64	68	60	65
Scintillation Efficiency (photons/1 MeV e ⁻)	10,000	10,400	9,200	10,000
Wavelength of Maximum Emission (nm)	425	408	435	423
Light Attenuation Length (cm)	380	160	400	250
Rise Time (ns)	0.9	0.7	1.0	0.9
Decay Time (ns)	2.1	1.8	3.3	2.4
Pulse Width, FWHM (ns)	2.5	2.2	4.2	2.7
H Atoms per cm ³ (×10 ²²)	5.17	5.15	5.17	5.17
C Atoms per cm ³ (×10 ²²)	4.69	4.68	4.69	4.69
Electrons per cm ³ (×10 ²³)	3.33	3.33	3.33	3.33
Density (g/cm ³)	1.023	1.023	1.023	1.023
Polymer Base	Polyvinyltoluene			
Refractive Index	1.58			
Softening Point	75°C			
Vapor Pressure	Vacuum-compatible			
Coefficient of Linear Expansion	7.8 × 10 ⁻⁵ below 67°C			
Temperature Range	-20°C to 60°C			
Light Output (L.O.) vs. Temperature	At 60°C, L.O. = 95% of that at 20°C No change from -60°C to 20°C			

CHEMICAL COMPATIBILITY

Attacked By: Aromatic solvents, Chlorinated solvents, Ketones, Solvent bonding cements, etc.

Stable In: Water, Dilute acids and alkalis, Lower alcohols, Silicone greases.

It is safe to use most epoxies with these scintillators.



Rysunek B.1 Parametry scyntylatorów plastikowych typu EJ (w tym EJ-200) [63]

Dodatek C

Parametry akwizycji programu CAEN CoMPASS

Tabela C.1 Wybrane parametry akwizycji danych programu CAEN *CoMPASS Multiparametric DAQ Software for Physics Applications* wykorzystywane w trakcie prac nad niskotłowym, cyfrowym spektrometrem promieniowania gamma

Zakładka	Parametr	Opis
Input	Enable	Włączenie / Wyłączenie kanału digitizera
	Record length	Długość okna akwizycji wyrażona w ns
	Pre-Trigger	Ustawia część przebiegu impulsu zachowywaną przed zadziałaniem wyzwalacza
	Polarity	Polarność sygnału wejściowego
	Ns baseline	Liczba próbek sygnału używana do wyznaczenia poziomu odniesienia
	DC Offset	Przesunięcie wartości poziomu odniesienia
	Calib. ADC	Wykonuje kalibrację ADC
	Input dynamic	Maksymalna wielkość sygnału
Discriminator	Threshold	Wartość progowa sygnału
	Trigger holdoff	Wstrzymanie kolejnego wyzwalacza
	Fast Discriminator smoothing	Stopień wygładzania drugiej różniczki filtru RC-CR2
	Input rise time	Czas narastania sygnału filtru RC-CR2
Trapezoid	Trap. rise time	Czas narastania trapezu
	Trap. flat top	Czas trwania płaskiej części trapezu
	Trap. pole zero	Kompensacja biegun-zero
	Peaking time	Miejsce ewaluacji wysokości trapezu w jego płaskiej części
	Ns peak	Liczba próbek płaskiej części trapezu używana do wyznaczenia jego wysokości
	Peak holdoff	Wyznacza minimalną odległość między dwoma trapezami

Spectra	Energy N channels Saturation rejection eneble PUR enable	Wykorzystywana liczba kanałów konwertera ADC Włącza / wyłącza odrzucanie przypadków przekroczenia wartości Input dynamic Włącza / wyłącza odrzucanie przypadków spiętrzenia impulsów
Energy calibration	Energy fine gain C0, C1, C2 Calibration units	Cyfrowe wzmocnienie sygnału Współczynniki krzywej kalibracji energetycznej Jednostka kalibracji energetycznej
Sync/Trg	Start mode TRG OUT Mode	Wybór metody rozpoczęcia / zakończenia akwizycji Wybór metody propagacji sygnału wyzwalacza
Miscellaneous	Label Rate optimization	Oznaczenie kanału digitizera Optymalizacja pracy algorytmów, dla niskich częstości zliczeń należy wybrać niską wartość
Register		Umożliwia zmianę wartości parametrów poprzez bezpośrednią modyfikację bitów danego adresu

Dodatek D

Analiza widm energetycznych badanych próbek

Analiza uzyskanego w wyniku pomiaru widma energetycznego, pozwala na wyznaczenie aktywności oraz stężeń aktywności izotopów gamma-promieniotwórczych zawartych w materiale badawczym. W tym celu wykorzystuje się rozszerzony wzór 3.6:

$$A = \frac{N(E_\gamma) - N'_{tlo}(E_\gamma)}{T\varepsilon(E_\gamma)p(E_\gamma)} K... \quad [Bq], \quad (D.1)$$

gdzie:

$N'_{tlo}(E_\gamma)$ - liczba zliczeń netto w pikie fotoelektrycznym o energii E_γ w widmie tła, znormalizowana na czas pomiaru próbki:

$$N'_{tlo}(E_\gamma) = N_{tlo}(E_\gamma) \cdot \frac{T}{T_{tlo}}, \quad (D.2)$$

$N_{tlo}(E_\gamma)$ - liczba zliczeń netto w linii widmowej o energii E_γ w widmie tła,

T_{tlo} - czas pomiaru widma tła.

W przypadku wyznaczania aktywności izotopów w widmie tła za pomocą próbek ślepych (tzw. blank, czyli niezawierających promieniotwórczego materiału badawczego) stosuje się również normalizację liczby zliczeń netto w danym pikie fotoelektrycznym ze względu na stosunek mas badanej próbki i próbki blank.

W przypadku pomiarów izotopów dla których czas poboru próbki, czas jaki upływa między poborem a pomiarem, jak również czas samego pomiaru są porównywalne z ich czasem połowicznego zaniku $T_{1/2}$, istotnym staje się zastosowanie opisanych poniżej czynników korekcyjnych.

K_S to czynnik poprawkowy uwzględniający rozpad jąder danego izotopu w czasie trwania poboru próbki zdefiniowany jako:

$$K_S = \frac{\lambda t_S}{1 - \exp(-\lambda t_S)}, \quad (D.3)$$

gdzie:

λ - stała rozpadu danego izotopu, $\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$,

t_S - czas poboru próbki (w przypadku filtrów powietrza - czas ekspozycji) [152].

K_W to poprawka na rozpad jąder danego izotopu od momentu zakończenia poboru do momentu rozpoczęcia pomiaru danej próbki:

$$K_W = \exp(\lambda t_W), \quad (\text{D.4})$$

gdzie t_W to czas jaki upłynął od zakończenia poboru do rozpoczęcia pomiaru [152].

K_C z kolei to czynnik poprawkowy uwzględniający rozpad jąder danego izotopu w czasie trwania pomiaru próbki T i zdefiniowany następująco [152]:

$$K_C = \frac{\lambda T}{1 - \exp(-\lambda T)}. \quad (\text{D.5})$$

Stężenie aktywności danego izotopu obliczane jest jako jego aktywność w danej próbce przypadająca na jednostkę miary danego materiału badawczego V taką jak masa [kg] lub objętość [m³].

$$C = \frac{A}{V} \quad [Bq/(m^3 \text{ lub } kg)], \quad (\text{D.6})$$

Dla filtrów powietrza stężenie aktywności wyrażane jest jako aktywność izotopu przypadająca na jeden metr sześcienny przepompowanego powietrza, podczas gdy np. dla próbek gleby stężenie aktywności definiuje się jako liczba rozpadów danego izotopu w jednostce czasu, przypadająca na jeden kilogram masy próbki.

Minimalna mierzalna aktywność (ang. *minimum detectable activity*, *MDA*) danego izotopu, dla przedziału ufności 95%, wyznaczana jest za pomocą formuły Currie [40, 152]:

$$MDA = \left(2,706 + 2 \cdot 1,645 \cdot \sqrt{dS^2 - S}\right) \frac{K...}{T\varepsilon(E_\gamma)p(E_\gamma)} \quad [Bq], \quad (\text{D.7})$$

gdzie:

$S = N(E_\gamma) - N'_{tlo}(E_\gamma)$ - liczba zliczeń netto w pikie o energii E_γ po odjęciu tła promieniowania,

$dS = \sqrt{dN(E_\gamma)^2 + dN'_{tlo}(E_\gamma)^2}$ - niepewność liczby zliczeń S ,

$dN(E_\gamma)$ - niepewność liczby zliczeń netto linii widmowej o energii E_γ w widmie próbki,

$dN'_{tlo}(E_\gamma)$ - niepewność liczby zliczeń netto linii widmowej o energii E_γ w widmie tła, znormalizowana na czas pomiaru próbki.

Z kolei minimalne mierzalne stężenie aktywności (ang. *minimum detectable concentration*, *MDC*) definiowane jest jako:

$$MDC = \frac{MDA}{V} \quad [Bq/(m^3 \text{ lub } kg)]. \quad (\text{D.8})$$

gdzie V zdefiniowane jest analogicznie jak dla wzoru D.6.

W niektórych badaniach, na przykład przeprowadzanych na potrzeby monitoringu radiologicznego powietrza, za granicę oznaczalności przyjmuje się wartość MDA (a w konsekwencji i MDC) wyznaczoną dla przedziału ufności 70%, co skutkuje następującą modyfikacją wzoru D.7:

$$MDA_{70} = \left(0,276 + 2 \cdot 0,525 \cdot \sqrt{dS^2 - S}\right) \frac{K...}{T\varepsilon(E_\gamma)p(E_\gamma)} \quad [Bq], \quad (\text{D.9})$$

Powoduje to wzrost możliwości identyfikacji obecności radionuklidu jednak zwiększa też prawdopodobieństwo popełnienia błędu pierwszego rodzaju (ang. *false positive*).

Dodatek E

Dane szczegółowe filtrów powietrza zebranych na terenie Bazy Marambio

Tabela E.1 Dane szczegółowe filtrów powietrza zebranych na terenie Bazy Marambio w okresie od 26.01.2005 r. do 19.05.2006 r.

Nazwa próbki	Okres ekspozycji		Przepływ [m ³]	Przepływ sumaryczny [m ³]	Masa [g]
	Od	Do			
FM123	26.01.05	28.01.05	9774	184103	24,56
	28.01.05	31.01.05	18163		
	31.01.05	02.02.05	10646		
	02.02.05	04.02.05	10466		
	04.02.05	07.02.05	15730		
	07.02.05	10.02.05	15781		
	10.02.05	14.02.05	21118		
	14.02.05	17.02.05	15694		
	17.02.05	21.02.05	20892		
	21.02.05	24.02.05	13986		
	24.02.05	28.02.05	21187		
	28.02.05	02.03.05	10667		
	FM4	02.03.05	07.03.05		
07.03.05		10.03.05	8008		
10.03.05		14.03.05	20994		
14.03.05		17.03.05	15838		
17.03.05		21.03.05	21127		
21.03.05		24.03.05	12807		
24.03.05		28.03.05	18075		
28.03.05		31.03.05	16344		
31.03.05	04.04.05	21061			
FM5	04.04.05	07.04.05	12951	136721	15,47
	07.04.05	11.04.05	10239		
	11.04.05	14.04.05	16128		

	14.04.05	19.04.05	26580		
	19.04.05	21.04.05	10560		
	21.04.05	25.04.05	21888		
	25.04.05	28.04.05	16488		
	28.04.05	02.05.05	21888		
	02.05.05	05.05.05	16308		
	05.05.05	09.05.05	21610		
	09.05.05	12.05.05	15732		
FM6	12.05.05	16.05.05	brak filtru	127042	13,41
	16.05.05	19.05.05	15768		
	19.05.05	23.05.05	21264		
	23.05.05	25.05.05	10320		
	25.05.05	30.05.05	26040		
	30.05.05	02.06.05	16092		
	02.06.05	06.06.05	21820		
	06.06.05	09.06.05	16304		
	09.06.05	13.06.05	awaria		
FM7	13.06.05	23.06.05	awaria	114471	15,22
	23.06.05	27.06.05	21204		
	27.06.05	30.06.05	16731		
	30.06.05	01.07.05	5580		
	01.07.05	04.07.05	16740		
	04.07.05	06.07.05	11304		
	06.07.05	08.07.05	11040		
	08.07.05	11.07.05	16308		
	11.07.05	13.07.05	10655		
	13.07.05	15.07.05	10848		
FM8	15.07.05	18.07.05	16236	142118	23,10
	18.07.05	20.07.05	10872		
	20.07.05	22.07.05	10680		
	22.07.05	25.07.05	4995		
	25.07.05	27.07.05	11184		
	27.07.05	29.07.05	11256		
	29.07.05	01.08.05	16740		
	01.08.05	03.08.05	11280		
	03.08.05	05.08.05	10608		
	05.08.05	08.08.05	16452		
	08.08.05	10.08.05	10688		
FM9	10.08.05	12.08.05	10463	191903	28,78
	12.08.05	15.08.05	16380		
	15.08.05	17.08.05	11016		

	17.08.05	19.08.05	10848		
	19.08.05	22.08.05	17388		
	22.08.05	25.08.05	15889		
	25.08.05	26.08.05	5685		
	26.08.05	29.08.05	16983		
	29.08.05	31.08.05	10603		
	31.08.05	02.09.05	11131		
	02.09.05	05.09.05	16491		
	<hr/>				
	05.09.05	07.09.05	10970		
	07.09.05	09.09.05	11049		
	09.09.05	12.09.05	16505		
	12.09.05	14.09.05	11040		
	14.09.05	16.09.05	11011		
FM10	16.09.05	19.09.05	20304	160688	23,02
	19.09.05	21.09.05	13321		
	21.09.05	23.09.05	11308		
	23.09.05	26.09.05	16314		
	26.09.05	28.09.05	11208		
	28.09.05	30.09.05	11112		
	30.09.05	03.10.05	16545		
	<hr/>				
	03.10.05	05.10.05	10927		
	05.10.05	07.10.05	10710		
	07.10.05	10.10.05	16045		
	10.10.05	12.10.05	10935		
	12.10.05	14.10.05	11035		
FM11	14.10.05	17.10.05	16408	152664	23,41
	17.10.05	19.10.05	10800		
	19.10.05	21.10.05	11223		
	21.10.05	24.10.05	16273		
	24.10.05	26.10.05	11052		
	26.10.05	28.10.05	10535		
	28.10.05	31.10.05	16722		
	<hr/>				
	31.10.05	02.11.05	10675		
	02.11.05	05.11.05	15114		
	05.11.05	07.11.05	11835		
	07.11.05	09.11.05	10322		
	09.11.05	11.11.05	10835		
	11.11.05	14.11.05	16075		
	14.11.05	16.11.05	10370		
FM12	16.11.05	18.11.05	11335	188435	28,75
	18.11.05	21.11.05	15727		
	21.11.05	23.11.05	10937		

	23.11.05	25.11.05	10870		
	25.11.05	28.11.05	16171		
	28.11.05	30.11.05	11034		
	30.11.05	02.12.05	10864		
	02.12.05	05.12.05	16272		
	<hr/>				
	05.12.05	07.12.05	11063		
	07.12.05	09.12.05	10906		
	09.12.05	12.12.05	16385		
	12.12.05	14.12.05	10992		
	14.12.05	16.12.05	10896		
FM13	16.12.05	19.12.05	16452	153703	23,32
	19.12.05	21.12.05	11155		
	21.12.05	23.12.05	10810		
	23.12.05	26.12.05	16566		
	26.12.05	28.12.05	10901		
	28.12.05	30.12.05	11155		
	30.12.05	02.01.06	16421		
	<hr/>				
	02.01.06	04.01.06	10640		
	04.01.06	06.01.06	10813		
	06.01.06	09.01.06	16335		
	09.01.06	11.01.06	10920		
	11.01.06	13.01.06	11066		
FM14	13.01.06	16.01.06	16409	151961	23,70
	16.01.06	18.01.06	11343		
	18.01.06	20.01.06	10500		
	20.01.06	23.01.06	16193		
	23.01.06	25.01.06	10752		
	25.01.06	27.01.06	10656		
	27.01.06	30.01.06	16333		
	<hr/>				
	30.01.06	01.02.06	10959		
	01.02.06	03.02.06	10792		
	03.02.06	06.02.06	16315		
	06.02.06	08.02.06	10434		
	08.02.06	10.02.06	10776		
FM15	10.02.06	13.02.06	15624	150976	23,38
	13.02.06	15.02.06	10824		
	15.02.06	17.02.06	10872		
	17.02.06	20.02.06	16604		
	20.02.06	22.02.06	11184		
	22.02.06	24.02.06	10461		
	24.02.06	27.02.06	16131		

	27.02.06	03.03.06	16000		
	03.03.06	06.03.06	15857		
	06.03.06	08.03.06	10896		
	08.03.06	10.03.06	11180		
	10.03.06	13.03.06	15369		
FM16	13.03.06	15.03.06	10806	182037	26,89
	15.03.06	17.03.06	11034		
	17.03.06	20.03.06	16373		
	20.03.06	22.03.06	10864		
	22.03.06	24.03.06	10877		
	24.03.06	27.03.06	16349		
	27.03.06	29.03.06	11300		
	29.03.06	31.03.06	10920		
	31.03.06	03.04.06	14212		
<hr/>					
	03.04.06	05.04.06	awaria		
	05.04.06	15.04.06	awaria		
	15.04.06	17.04.06	11633		
	17.04.06	19.04.06	9962		
FM17	19.04.06	21.04.06	11175	89036	15,29
	21.04.06	24.04.06	16522		
	24.04.06	26.04.06	11169		
	26.04.06	28.04.06	11440		
	28.04.06	01.05.06	17136		
<hr/>					
	01.05.06	03.05.06	11766		
	03.05.06	05.05.06	10440		
	05.05.06	08.05.06	17191		
FM18	08.05.06	10.05.06	11069	100697	15,14
	10.05.06	12.05.06	11543		
	12.05.06	15.05.06	17128		
	15.05.06	17.05.06	10587		
	17.05.06	19.05.06	10972		
<hr/>					
FMBL1	próbka blank bez filtrów				-
FMBL2	próbka blank z nieeksponowanymi filtrami				13,21