

Mieczysław F. PAZDUR, Adam WALANUS

ANALIZA DŁUGOOKRESOWEJ STABILNOŚCI WARUNKÓW PRACY
APARATURY POMIAROWEJ W LABORATORIUM C-14

Cz. I. Analiza reprodukowalności warunków pomiarów
próbek tła i standardu aktywności

Streszczenie. W pracy przeprowadzono szczegółową analizę pomiarów szybkości zliczeń tła i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery, wykonanych w okresie od 1971 r. do 1975 r. i przedstawiono wyniki analizy korelacji między parametrami pomiarów tła i standardu aktywności. Przedyskutowano mechanizmy fizyczne prowadzące do obserwowanych zmian szybkości zliczeń tła licznika proporcjonalnego L1 oraz wpływ niektórych parametrów elektronicznych i fizycznych na wartość szybkości zliczeń tła.

1. Wstęp

Dokładność pomiarów chronometrycznych zależy nie tylko od dokładności wyznaczenia szybkości zliczeń badanej próbki, tła licznika proporcjonalnego i standardu aktywności, uzyskanej w pojedynczej serii pomiarowej, lecz przede wszystkim od zapewnienia dostatecznej reprodukowalności warunków pomiarów. Problem reprodukowalności jest tym ważniejszy, że ze względów technicznych i ekonomicznych (długotrwały czas pomiaru szybkości zliczeń, pracochłonność czynności związanych ze zmianą gazu wypełniającego licznik proporcjonalny) pomiary szybkości zliczeń próbek wzorcowych nie mogą być wykonywane bezpośrednio przed i po pomiarze szybkości zliczeń każdej datowanej próbki.

O reprodukowalności warunków pomiarów może świadczyć stabilność poszczególnych parametrów fizycznych i elektronicznych aparatury pomiarowej, takich jak wartości szybkości zliczeń tła licznika proporcjonalnego i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery, wartości wysokiego napięcia na liczniku proporcjonalnym, wartości parametrów $w = s_a^2/s_p^2$ [1] i $C = L/N$ [2]. W niniejszej pracy przedstawione wyniki analizy stabilności wartości szybkości zliczeń tła i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery.

Przeprowadzona analiza obejmuje 32 pomiary szybkości zliczeń tła i 27 pomiarów szybkości zliczeń standardu aktywności C-14, wykonane w okresie blisko pięciu lat, za pomocą licznika proporcjonalnego L1, przedstawione w oddzielnej pracy [3].

Dyskusja zmian wysokiego napięcia na liczniku proporcjonalnym oraz zachowanie się parametru w , równego stosunkowi estymatorów wariancji szybkości zliczeń i parametru C , będącego miarą wydajności detekcji w liczniku proporcjonalnym, będzie omówiona w drugiej części niniejszego artykułu [4].

2. Pomiary standardu ekstrapolowanej aktywności C-14 współczesnej biosfery

Wyniki pomiarów szybkości zliczeń standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery przedstawione w [3] na rys. 2 oraz w tab. 2 nie wykazują znaczniejszych systematycznych zmian czasowych; ich rozrzut względem wartości średniej jest nieco większy niż średni błąd standardowy pojedynczego pomiaru (por. [3], wzór (6)). Z danych zamieszczonych w tab. 2 [3] można wyliczyć, że średnia wartość średniego błędu standardowego dla zamieszczonych tam pomiarów wynosi 0.136 cpm, czyli 0,90% wartości średniej szybkości zliczeń S^0 , podczas gdy rzeczywista dyspersja wyników pomiarów wynosi 0.199 cpm, czyli 1.32% wartości średniej.

Powodem tej różnicy jest uproszczony charakter wzoru (6) [3], opartego tylko na statystyce zliczeń i błędzie pomiaru ciśnienia gazu wypełniającego licznik pomiarowy, a nie uwzględniającego zmieniających się warunków pomiarów (w tym przede wszystkim zmian wydajności detekcji od pomiaru do pomiaru). Można przypuszczać, że wprowadzona do praktycznego stosowania metoda kontroli czystości gazu i wydajności detekcji [2, 5] doprowadzi do zmniejszenia tej różnicy.

Wyniki analizy korelacji pomiędzy niektórymi parametrami pomiarów szybkości zliczeń standardu przedstawia tabela 1. Obliczenia wykonano metodą najmniejszych kwadratów, zakładając identyczne wagi statystyczne dla wszystkich pomiarów. Do obliczeń wykorzystano 21 pomiarów wykonanych od maja 1971 r. do września 1974 r. Z porównania wartości współczynników korelacji dla analizowanych zależności szybkości zliczeń S^0 od: ciśnienia gazu wypełniającego licznik pomiarowy P_L , napięcia na liczniku V_L , parametru K [6], wartości $t_{\lambda B}$ użytego do obliczeń oraz szybkości zliczeń L impulsów wywołanych składową mezonową promieniowania kosmicznego, jedynie związek między S^0 i K może być uznany za istotny (na poziomie istotności 10). Z porównania wartości d

$$d = \left(\frac{1}{n} \sum (y_i - a - bx_i)^2 \right)^{1/2} \quad (1)$$

stanowiącej miarę rozrzutu punktów doświadczalnych względem prostej najmniejszych kwadratów (kol. 12; tab. 1) i dyspersji (kol. 4) dla tej zależ-

Tabela 1

Wyniki analizy korelacji pomiędzy parametrami pomiarów standardu aktywności współczesnej biosfery,
wykonanych w okresie 1971-1974 r.

Liczba pomiarów $N = 21$, (wszystkim pomiarom przypisano identyczne wagi statystyczne)

Nr	$Y = a+bX$	\bar{Y}	s_y	\bar{x}	s_x	b	s_b	r	r_{\min}	r_{\max}	d
1	$S^0 = a+bP_L$	15.075 cpm	0.197 cpm	760.2 Tr	12.5 Tr	$2.935 \cdot 10^{-3}$	$3.63 \cdot 10^{-3}$	0.187	-0.049	0.411	0.188
2	$S^0 = a+bV_L$	"	"	6527 V	166 V	$2.81 \cdot 10^{-4}$	$2.71 \cdot 10^{-4}$	0.237	0.006	0.455	0.186
3	$S^0 = a+bK$	"	"	0.685	0.040	2.079	1.055	0.421	0.214	0.606	0.174
4	$S^0 = a+bB$	"	"	10.528 cpm	0.228 cpm	0.162	0.199	0.188	-0.047	0.412	0.188
5	$S^0 = a+bL$	"	"	181.9 cpm	2.2 cpm	$2.67 \cdot 10^{-2}$	$2.02 \cdot 10^{-2}$	0.307	0.082	0.514	0.182
6	$U^0 = a+bt$	26.396 cpm	0.438 cpm	607.3 dni	348.6 dni	$6.973 \cdot 10^{-4}$	$2.462 \cdot 10^{-4}$	-0.555	-0.378	-0.708	0.308

ności, można wyliczyć, że błąd związany ze złą reprodukowalnością punktu pracy licznika proporcjonalnego przy pomiarach szybkości zliczeń standardu wynosi ok. 0.61% (przy pominięciu udziału pozostałych czynników).

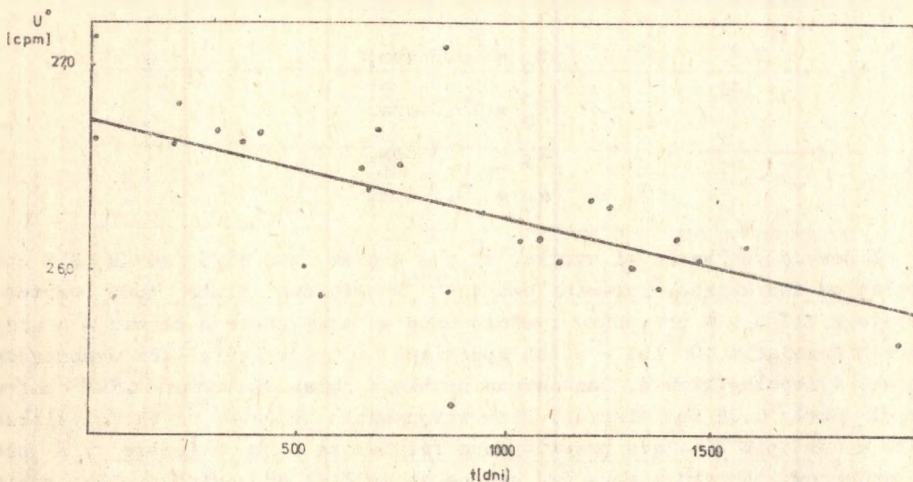
Aktywność właściwa próbek standardu jest największa ze wszystkich próbek chronometrycznych, można więc spodziewać się, że w przypadku istnienia błędu systematycznego, związanego z procesem odmierzenia ilości gazu wypełniającego licznik pomiarowy oraz redukcji mierzonej szybkości zliczeń do warunków normalnych, błąd ten powinien być szczególnie widoczny w postaci istotnie różnego od zera współczynnika korelacji dla zależności między S^0 i P_L . Wyniki obliczeń (wiersz 1, tab. 1) świadczą o zanedbywalnie małej wartości tego błędu. Podobnie praktycznie nieistotna wartość współczynnika korelacji dla zależności między S^0 i B świadczy o braku wpływu obserwowanych systematycznych zmian tła (por. rys. 1 w [3]) na wyniki pomiarów szybkości zliczeń standardu. Obliczonej wartości współczynnika korelacji między V_L a S^0 trudno jest przypisać interpretację fizyczną ze względu na obserwowane systematyczne zmiany napięcia pracy, zachodzące w omawianym okresie pomiarów (por. rys. 2 w [4]).

3. Pomiary szybkości zliczeń tła

Wyniki pomiarów szybkości zliczeń impulsów tła (przedstawione w [3] na rys. 1) wykazują istnienie znacznych, systematycznych zmian o charakterze skokowym. W okresach między skokowymi zmianami obserwuje się stosunkowo dobrą powtarzalność wyników pomiarów. Skokowe zmiany szybkości zliczeń tła mogą być w pierwszym przybliżeniu interpretowane jako wynik pewnych udoskonalień elektronicznej aparatury rejestrującej oraz oczyszczania licznika pomiarowego i aparatury próżniowej (patrz [3]). Zmiany o podobnym charakterze powinny być widoczne również na wykresie przedstawiającym wartość łącznej szybkości zliczeń impulsów tła i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery. Na rys. 1 przedstawione są wartości szybkości zliczeń U^0 otrzymane w kolejnych pomiarach szybkości zliczeń standardu "oxalic acid NBS" w funkcji czasu liczonego od pomiaru próbki S1/1 (por. tab. 2 w [3]).

Widoczny znaczny rozrzut wartości mierzonych, powodowany różnicami w ciśnieniu gazu wypełniającego licznik proporcjonalny, nie pozwala na wyciągnięcie wniosku o skokowych zmianach U^0 , można jednak łatwo zauważyć systematyczny spadek szybkości zliczeń U^0 . Linia ciągła przedstawia prostą najmniejszych kwadratów, dopasowaną do wyników pomiarów przy założeniu równych wag statystycznych dla wszystkich pomiarów. Opierając się na danych z tab. 1 (wiersz 6), otrzymuje się, że szybkość zmian U^0 wynosi

$$\frac{\Delta U^0}{\Delta t} = (-0.255 \pm 0.090) \frac{\text{CPM}}{\text{rok}} \quad (2)$$



Rys. 1. Zmierzone wartości łącznej szybkości zliczeń impulsów tła i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery w funkcji czasu liczonego od pomiaru próbki S 1/1. Linia ciągła przedstawia prostą najmniejszych kwadratów dopasowaną do wyników pomiarów

Biorąc pod uwagę wszystkie pomiary szybkości zliczeń impulsów tła, wymienione w tab. 1 w pracy [3], otrzymuje się (przy aproksymacji liniowej i zaniedbaniu okresów stabilności i skokowego charakteru zmian B), że szybkość zmian tła wynosi

$$\frac{\Delta B}{\Delta t} = (-0.231 \pm 0.017) \frac{\text{cpm}}{\text{rok}} \quad (3)$$

Z praktycznie identycznych wartości szybkości zmian U^0 i B można wnosić, że spadek szybkości zliczeń w obu przypadkach wywołany jest tym samym czynnikiem. Ponieważ wiek ołowiu, stanowiącego boczną osłonę materiałową, zespołu licznikowego L1 nie przekracza 25 ± 5 lat, musi w nim być obecna niewielka ilość radioaktywnego izotopu ^{210}Pb , o okresie połowicznego zaniku $T_{1/2} = 21$ lat. Spośród możliwych procesów, wywołujących spadek szybkości zliczeń U^0 i B, najbardziej prawdopodobne wydaje się zanikające promieniowanie izotopu ^{210}Pb , nakładające się na stałe tło B_0 . W przypadku przyjęcia tej hipotezy zmiany B i U^0 można w przybliżeniu opisać funkcjami

$$B = B_0 + \alpha_B e^{-\lambda t} \quad (4)$$

$$U^0 = U_0^0 + \alpha_U e^{-\lambda t}$$

gdzie: λ oznacza stałą zaniku promieniotwórczego izotopu ^{210}Pb .

Korzystając z wartości (2) i (3), otrzymuje się

$$\begin{aligned} B_0 &= 3.8 \text{ cpm}, \\ U_0^0 &= 18.6 \text{ cpm}, \\ \alpha_B &= 7.3 \text{ cpm}, \\ \alpha_U &= 8.1 \text{ cpm}. \end{aligned} \tag{5}$$

Z powyższych wartości wynika, że pod koniec roku 1975 (gdy $B = 9.8$ cpm) wkład od zanikającego promieniowania ^{210}Pb stanowi około 160% wartości stałego tła B_0 . W przypadku zastosowania warstwy starego ołowiu - o wieku przekraczającym 100 lat - można spodziewać się uzyskania tła wynoszącego około 4 impulsy/minutę. Oszacowana szybkość zmian tła wynosi ok. 0.25 cpm/rok, czyli około 0.02 cpm/miesiąc. Przy wykonywaniu pomiarów szybkości zliczeń tła w odstępie miesiąca przewidywane różnice są dużo mniejsze niż błąd standardowy pomiaru i mogą być uznane za możliwe do pominięcia. Dla pomiarów wykonywanych w odstępie roku zmiana szybkości zliczeń tła, przewidywana na podstawie (3) - (6), jest około trzykrotnie większa niż błąd standardowy typowego pomiaru. Dwa okresy stabilności wartości szybkości zliczeń tła, trwające odpowiednio ponad dwa lata (przy wartości średniej $B = 10.39$ cpm) i około roku (przy wartości średniej $B = 9.94$ cpm), muszą być więc interpretowane jako rezultat pewnych dodatkowych procesów, kompensujących malejący w czasie wkład od izotopu ^{210}Pb . Ponieważ skokowe zmiany szybkości zliczeń tła, przedstawione na rys. 1 w [3] pionowymi przerywanymi liniami R1 i R2, związane są z oczyszczaniem licznika proporcjonalnego i remontem aparatury próżniowej, można przypuszczać, że okresowe utrzymywanie się wartości B na stałym poziomie związane jest ze wzajemnie kompensującym się działaniem dwóch czynników - malenia wkładu od izotopu ^{210}Pb i kumulowania się trudnych do określenia zanieczyszczeń w niektórych częściach linii próżniowej (z licznikiem proporcjonalnym włącznie).

W tabeli 2 przedstawiono wyniki obliczeń korelacyjnych dla 17 pomiarów szybkości zliczeń tła, wykonanych w okresie od października 1972 r. do października 1974 r., czyli w okresie ustabilizowania się wartości szybkości zliczeń tła na poziomie 10.4 cpm. Wyniki obliczeń świadczą o istotnej zależności szybkości zliczeń tła od ciśnienia gazu wypełniającego licznik pomiarowy.

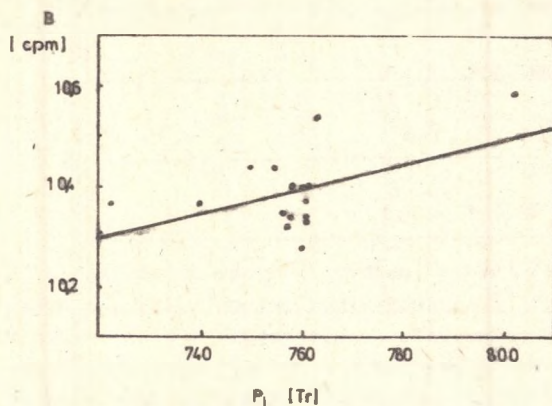
Wartości szybkości zliczeń tła z tego okresu w funkcji ciśnienia dwutlenku węgla P_L przedstawiono na rys. 2. Linia ciągła oznacza dopasowaną prostą najmniejszych kwadratów. Obserwowany wpływ ciśnienia gazu wypełniającego licznik na wartość B może być wyjaśniony wzrostem wydajności na rejestrację promieniowania gamma pochodzącego od zanieczyszczeń radioaktywnych zawartych w materiałach użytych do konstrukcji zespołu licznikowego i osłon materiałowych.

Tabela 2

Wyniki analizy korelacji między parametrami pomiarów tła licznika proporcjonalnego,
wykonanym w okresie 1972-1974 r.

Liczba pomiarów $N = 17$ (wszystkim pomiarom przypisano identyczne wagi statystyczne)

Nr	$Y = a + bX$	\bar{Y}	s_y	\bar{X}	s_x	b	s_b	r	r_{\min}	r_{\max}	d
1	$B = a + bP_L$	10.393 cpm	0.078 cpm	757.9 Tr	15.2 Tr	$0.247 \cdot 10^{-2}$	$0.115 \cdot 10^{-2}$	0.484	0.269	0.670	0.066
2	$B = a + bV_L$	"	"	6433 V	85 V	$1.16 \cdot 10^{-4}$	$2.35 \cdot 10^{-4}$	0.127	0.135	0.379	0.075
3	$B = a + bK$	"	"	0.685	0.046	0.490	0.420	0.291	0.042	0.520	0.072
4	$B = a + bL$	"	"	181.3 cpm	3.0 cpm	$4.10 \cdot 10^{-3}$	$6.55 \cdot 10^{-3}$	0.160	0.101	0.408	0.075
5	$K_B = a + bK$	0.539	0.028	0.685	0.046	0.433	0.110	0.714	0.572	0.829	0.019
6	$V_L = a + bP_L$	6433 V	85 V	757.9 Tr	15.2 Tr	4.93	1.39	0.673	0.516	0.802	62.9
7	$L = a + bK$	181.3 cpm	3.0 cpm	0.685	0.046	9.06	16.83	0.138	0.124	0.388	2.9



Rys. 2. Zależność szybkość zliczeń impulsów tła od ciśnienia dwutlenku węgla wypełniającego licznik proporcjonalny

Zależność szybkości zliczeń tła od wyboru punktu pracy licznika proporcjonalnego może być uznana za możliwą do pominięcia, biorąc pod uwagę bardzo nieznacznie różniące się od zera wartości współczynników korelacji między B i k oraz B i V_L . Bardzo ważną informacją jest stwierdzenie niezależność szybkości zliczeń tła od natężenia składowej przenikliwej promieniowania kosmicznego. Podobne wyniki otrzymano przy analizie korelacji dla pojedynczych serii pomiarowych tła i standardu [7], co potwierdza wniosek o zbliżonej do 100% wydajności osłon antykoincydencyjnych oraz o poprawności przyjętej metody wyznaczania i kontroli punktu pracy. Istotną zależność stwierdzono między parametrami K_B i k , zdefiniowanymi jako

$$K_B = \frac{B_2 + B_3}{B_1} \quad (8)$$

$$K = \frac{L_2 + L_3}{L} \quad (9)$$

Otrzymana wartość współczynnika regresji b dla tej zależności jest blisko dwukrotnie mniejsza niż w przypadku obliczeń dla pojedynczej serii pomiarowej (por. [7]), co może być efektem deformacji widma amplitudowego impulsów tła wskutek niedostatecznej reprodukowalności czystości gazu, jak też zmian kształtu widma związanych z różnicami ciśnienia gazu wypełniającego licznik proporcjonalny.

Współczynnik ciśnieniowej zależności tła otrzymany na podstawie tych pomiarów wynosi

$$\frac{\Delta B}{\Delta P_L} = 0.025 \text{ cpm/cm Hg.} \quad (7)$$

Ponieważ oszacowany doświadczalnie błąd pomiaru ciśnienia gazu w liczniku proporcjonalnym wynosi 2 mmHg, odpowiadający mu błąd określenia szybkości zliczeń tła wynosi 0.005 cpm, czyli około 0.05%, jest więc całkowicie pomijalny.

LITERATURA

- [1] Pazdur M.F., Acta Phys. Pol. A48 (1975) 175.
- [2] Pazdur M.F., Walanus A., Mościcki W., Nucl. Instruments Methods, 151 (1978) 541.
- [3] Pazdur M.F., Mościcki W., Pazdur A., Zestawny A., Pomiarzy kalibracyjne szybkości zliczeń tła licznika proporcjonalnego i standardu aktywności C-14 współczesnej biosfery. Zesz.Nauk. Pol.Sł. Seria Mat.-Fiz. (1979), z.32, 81.
- [4] Pazdur M.F., Walanus A., Analiza długookresowej stabilności warunków pracy aparatury pomiarowej w Laboratorium C-14. II. Zmiany wartości wysokiego napięcia oraz fluktuacje wydajności detekcji. Zesz.Nauk.Pol.Sł., Seria Mat.-Fiz. (1979), z. 32, 121.
- [5] Walanus A., Pazdur M.F., Statystyczne problemy kontroli wydajności detekcji licznika proporcjonalnego przy pomiarach naturalnych aktywności C-14, Zesz.Nauk.Pol.Sł., Seria Mat.-Fiz., (1979), z. 32, 131.
- [6] Zestawny A., Kostkiewicz E., Mościcki W., Pazdur A., Pazdur M., Pomykała W., Zesz.Nauk.Pol.Sł. Seria Mat.-Fiz. z. 23 (1973) 41.
- [7] Pazdur M., Kostkiewicz E., Mościcki W., Pazdur A., Pomykała W., Zestawny A., Zesz.Nauk.Pol.Sł. Seria Mat.-Fiz. z. 23 (1973) 51.

АНАЛИЗ ДОЛГОПЕРИОДИЧЕСКОЙ СТАБИЛЬНОСТИ УСЛОВИЙ РАБОТЫ
ИЗМЕРИТЕЛЬНОЙ АППАРАТУРЫ В ЛАБОРАТОРИИ С-14

Част. 1. Анализ воспроизводства условия измерений образцов
и стандарта активности

Р е з ю м е

В работе был проведён подробный анализ результатов измерений скорости счёта фона и стандарта активности С-14 современной биосферы, выполненных в период с 1971 до 1975 гг и представлены результаты анализа корреляции между параметрами измерений фона и стандарта активности.

Были рассмотрены физические механизмы, ведущие к наблюдаемым изменениям скорости счёта фона пропорционального счётчика L1, а также влияние некоторых электронных и физических параметров на результат скорости счёта фона.

LONG-TERM STABILITY OF COUNTING EQUIPMENT IN RADIOCARBON LABORATORY

I. Analysis of the reproducibility of counting conditions
in measurements of background and standard samples.

S u m m a r y

The detailed analysis of results of measurements of background and standard of contemporary C-14 activity is given for measurements performed since 1971 to 1975. The results of correlation analysis between various parameters of measurements of background and standard are presented. Basic

physical mechanisms leading to observed changes of background counting rate of proportional counter L1 are discussed and the dependence of background counting rate on some physical and electrical parameters is analysed.