

Zur Auswertung von Lebensdauermessungen nach der Methode der verzögerten Koinzidenzen

F. W. RICHTER und J. SCHÜTT

Physikalisches Institut der Universität Marburg

Eingegangen am 13. Oktober 1966

The various methods of evaluating delayed γ — γ coincidence time spectra are discussed and used to determine the half-life of the 81 keV-level in ^{133}Cs . A value of $T_{\frac{1}{2}} = (6,25 \pm 0,05)$ ns was obtained.

It will be shown, that in the case of a momentum-analysis of background subtracted and strongly asymmetric time spectra one has to extrapolate the measured time spectrum in order to get consistent results.

1. Einleitung

Bei der Methode der verzögerten Koinzidenzen zur Bestimmung der mittleren Lebensdauer τ eines angeregten Kernzustandes mißt man die Häufigkeit des zeitlichen Unterschiedes der Strahlungsemission von Bildung und Zerfall dieses Zustandes. Wie man aus solchen Zeitspektren die beste Information über die mittlere Lebensdauer τ bzw. die Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ des angeregten Zustandes gewinnt, ist von mehreren Autoren¹⁻⁵ diskutiert worden.

Diesen Verfahren liegen zunächst die theoretischen Zeitspektren zugrunde. Die Messung ergibt immer einen abzuziehenden Untergrund zufälliger Koinzidenzen und ggf. einen Anteil prompter Koinzidenzen. Selbst bei richtigem Abzug dieser Korrekturen besteht bei der Momentenanalyse, sofern das Zeitspektrum unsymmetrisch ist, das Problem der Extrapolation. Je nachdem, ob und wie man extrapoliert, erhält man verschiedene Werte für die Halbwertszeit. Die Arbeit setzt sich daher zum Ziel, die verschiedenen Auswerteverfahren an einem Beispiel zu vergleichen, insbesondere die Frage der Extrapolation bei der Momentenanalyse, zu untersuchen.

¹ NEWTON, T. D.: Phys. Rev. **78** 490 (1950).

² BAY, Z.: Phys. Rev. **77**, 419 (1950).

³ BIRK, M., GOLDRING, and Y. WOLFSON: Phys. Rev. **116** 730 (1959).

⁴ WEAVER, R. S., u. R. E. BELL: Nuclear Instr. and Meth. **9**, 149 (1960).

⁵ BASHANDY, E.: Nuclear Instr. and Meth. **12**, 227 (1961).

2. Die mathematische Form des Zeitspektrums ohne Untergrund

Das Zeitspektrum ohne Untergrund $F(t)$ ergibt sich aus der Faltung der normierten radioaktiven Zerfallsfunktion¹

$$f(t') = \begin{cases} 0 & \text{für } t' < 0 \\ e^{-\frac{t'}{\tau}} & \text{für } t' \geq 0 \end{cases} \quad (1)$$

mit der auf eins normierten Apparatfunktion $P(t-t')$ zu

$$F(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t') P(t-t') dt' = \frac{1}{\tau} \int_0^{\infty} e^{-\frac{t'}{\tau}} P(t-t') dt'. \quad (2)$$

Dabei bedeutet τ die mittlere Lebensdauer, und es wird angenommen, daß der angeregte Zustand zur Zeit $t'=0$ gebildet worden ist. $P(t-t')$ * ist die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Emissionsereignis, welches zur Zeit t' stattgefunden hat, zur Zeit t registriert wird. Die Funktion $P(t)$ ist zugleich das Zeitspektrum eines prompten Zerfalls, d. h., die zu gleichzeitigen Emissionsereignissen gehörende zeitliche Koinzidenzverteilung. Aus Gl. (2) ergibt sich durch partielle Integration

$$\frac{dF}{dt} = -\frac{1}{\tau} [F(t) - P(t)] \quad (3)$$

oder

$$\frac{d \ln F(t)}{dt} = -\frac{1}{\tau} \left[1 - \frac{P(t)}{F(t)} \right]. \quad (4)$$

Gl. (4) zeigt, daß sich die Lebensdauer τ aus dem linearen Abfall des halblogarithmisch dargestellten Zeitspektrums $F(t)$ einfach bestimmen läßt, wenn das Verhältnis $P(t)/F(t)$ klein gegen 1 ist, zumindest so klein, daß der dadurch entstehende Fehler unter die Meßfehlerschranke fällt. Dieses einfache Auswerteverfahren ist dann nicht anwendbar, wenn das verzögerte Zeitspektrum $F(t)$ nur wenig über das prompte Zeitspektrum hinausreicht, weil dann in dem Gebiet, wo $P(t) \ll F(t)$ ist, der statistische Meßfehler erheblich ist. Natürlich könnte man das Korrekturglied $P(t)/F(t)$ berücksichtigen; das setzt aber voraus, daß der absolute Zeitmaßstab für die zu messenden Funktionen $P(t)$ und $F(t)$ der gleiche ist. Diese Forderung ist jedoch experimentell sehr schwer zu realisieren.

* An dieser Stelle sei vermerkt, daß $P(t-t')$ die mathematisch richtige Form der Apparatfunktion ist. Damit entfällt auch der von E. BODENSTEDT⁶ geäußerte Unterschied zwischen „time resolution function“ und „prompt curve“.

⁶ BODENSTEDT, E.: Effects of internal perturbation. In: Perturbed angular correlations, p. 220. Amsterdam: North-Holland Publishing Company 1964.

Nach Gl. (3) liegt das Maximum des verzögerten Zeitspektrums $F(t)$ im Schnittpunkt t_0 der Spektren $P(t)$ und $F(t)$ (Fig. 1). Integriert man Gl. (3) von $t=t_0$ bis zu einem Zeitpunkt $t_1 > t_0$ so ergibt sich

$$\tau = \frac{\int_{t_0}^{t_1} [F(x) - P(x)] dx}{F(t_0) - F(t_1)}. \quad (5)$$

Man sieht aus Gl. (5), daß man die Lebensdauer bestimmen kann, indem man aus den gemessenen Kurven die in Fig. 1 schraffierte Fläche und die

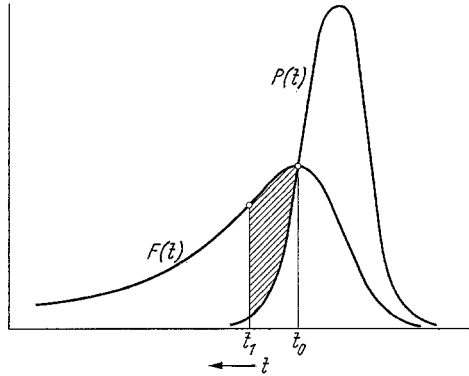


Fig. 1. Zur Bestimmung der mittleren Lebensdauer nach NEWTON [vgl. Gl. (5)] aus dem schraffierten Flächenstück unter der Kurve $F(t)$

zu t_0 und t_1 gehörigen Ordinatenwerte ermittelt. Dieses von NEWTON¹ vorgeschlagene Verfahren setzt einen absoluten Zeitmaßstab für $P(t)$ und $F(t)$ voraus, anders ausgedrückt, es müssen sich $P(t)$ und $F(t)$ im Maximum von $F(t)$ schneiden. Nun liefert gerade diese Bedingung eine Korrekturmöglichkeit in Form einer relativen Verschiebung der Kurven $P(t)$ und $F(t)$, die allerdings recht ungenau wird, wenn das verzögerte Zeitspektrum $F(t)$ nur eine schwache Neigung hat.

Mit der *Momentenanalyse* wurde zuerst von BAY² ein weiteres Auswerteverfahren vorgeschlagen und von BIRK et al. auf höhere Momente erweitert³.

Definiert man das k -te Moment $M_k^{(a)}(F)$ einer Funktion $F(t)$, bezogen auf die Achse $t=a$, durch die Gleichung

$$M_k^{(a)}(F) = \int_{-\infty}^{+\infty} (t-a)^k \cdot F(t) dt, \quad (6)$$

so folgt für ein Faltungsintegral $F(t)$ nach Gl. (2)

$$M_k^{(a)}(F) = \sum_{r=0}^{r=k} \binom{k}{r} M_r^{(0)}(f) \cdot M_{k-r}^{(a)}(P). \quad (7)$$

Da für $f(t)$ nach Gl. (1)

$$M_r^{(0)}(f) = r! \cdot \tau^r \quad (8)$$

gilt, ergibt sich in diesem Spezialfall

$$M_k^{(a)}(F) = \sum_{r=0}^{r=k} \frac{k!}{(k-r)!} \tau^r \cdot M_{k-r}^{(a)}(P). \quad (9)$$

Dabei bedeuten $M_0^{(a)}(F)$ die Fläche unter der Kurve $F(t)$, $M_1^{(a)}(F) = t_F - a$ ihre Schwerpunktslage und $M_2^{(a)}(F)$ das Flächenträgheitsmoment dieser Fläche mit Bezug auf die Achse a . $M_3^{(t_F)}(F)$ ist ein Maß für die Asymmetrie von $F(t)$ bezüglich des eigenen Schwerpunktes t_F . Entsprechendes gilt für $P(t)$. Bezieht man alle Momente von $F(t)$ und $P(t)$ auf $a = t_p$, den Schwerpunkt des prompten Zeitspektrums $P(t)$, so ergeben sich mit der Normierung $M_0(P) = 1$ und $M_0(F) = 1$ die Gln. (10), (11), (12), die jede für sich eine Bestimmung von τ ermöglichen.

$$M_1^{(t_p)}(F) = \tau, \quad (10)$$

$$M_2^{(t_p)}(F) = M_2^{(t_p)}(P) + 2\tau^2, \quad (11)$$

$$M_3^{(t_p)}(F) = M_3^{(t_p)}(P) + 3M_2^{(t_p)}(P) + 6\tau^3. \quad (12)$$

Da jedoch die Momente der Fläche F auf die Schwerpunktslage t_p der Fläche P bezogen sind, setzt auch dieses Verfahren für die aus getrennten Messungen zu bestimmenden Funktionen $P(t)$ und $F(t)$ einen absoluten Zeitmaßstab voraus.

Unabhängig vom absoluten Zeitmaßstab und damit einer relativen Verschiebung der Kurven $P(t)$ und $F(t)$ wird man, wenn man nach WEAVER und BELL⁴ die höheren Momente der Kurven $P(t)$ und $F(t)$ bezüglich ihres eigenen Schwerpunktes heranzieht. Für diese kann man aus den Gln. (10), (11) und (12) die Beziehungen

$$M_2^{(t_F)}(F) = M_2^{(t_F)}(P) + \tau^2, \quad (13)$$

$$M_3^{(t_F)}(F) = M_3^{(t_F)}(P) + 2\tau^3 \quad (14)$$

herleiten, die außer der unbekannten Lebensdauer τ nur noch aus den *einzelnen* Meßkurven bestimmbare Momente enthalten.

3. Korrekturen am gemessenen Zeitspektrum

Selbst wenn das zu messende Zeitspektrum $F(t)$ keine prompten Beimischungen enthält, ist es von einem konstanten Untergrund überlagert (vgl. Fig. 2), der durch zufällige Koinzidenzen bedingt ist. Die folgenden Untersuchungen haben gezeigt, daß die Nichtberücksichtigung dieses Untergrundes zu erheblichen Fehlern führen kann.

Sind die Zeitspektren $F(t)$ und $P(t)$ stark asymmetrisch, so reicht aber eine Subtraktion des Untergrundes allein nicht aus, wenn man eine Momentenanalyse durchführen will.

Man hat, wie in Ziff. 5.3 bzw. 5.4 gezeigt wird, die Zeitspektren bis zu sehr kleinen Kanalraten, die schon im Untergrund liegen, zu extra-

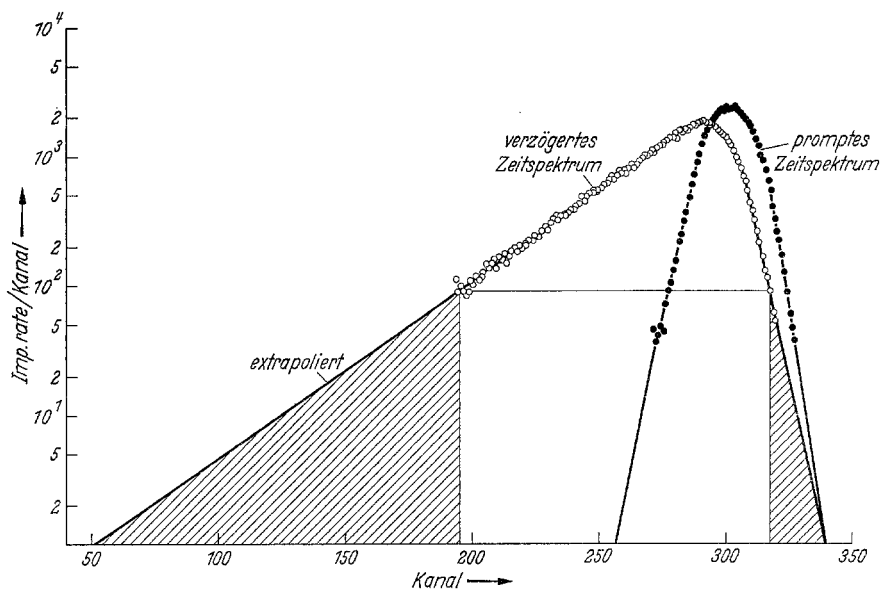


Fig. 2. Zur Auswertung stark asymmetrischer Zeitspektren nach der Momentenanalyse. Die Figur zeigt ein untergrundkorrigiertes extrapoliertes Zeitspektrum des 81 keV-Niveaus in ^{133}Cs und ein untergrundkorrigiertes, extrapoliertes promptes Zeitspektrum einer ^{22}Na -Quelle unter gleichen Bedingungen ($E_{\gamma_1} = 355 \text{ keV}/E_{\gamma_2} = 81 \text{ keV}$). Beide Spektren sind auf gleiche Fläche normiert

polieren. Das wird verständlich, weil vor allem bei den höheren Momenten die Ausläufer der Kurven sehr stark bewertet werden, um so mehr, je höher die Ordnung k der Momente ist. Daß die Berechnung der Momente verfälschte Werte ergibt, wenn nur der unvollständige aus Meßpunkten bestehende Kurvenverlauf berücksichtigt wird, wird aus Fig. 2 deutlich; es werden an den beiden Ausläufern einer Kurve verschieden große Flächen abgeschnitten.

Enthält das zu messende verzögerte Zeitspektrum noch Beimischungen prompter Koinzidenzen, so hat die in Gl. (1) eingeführte normierte Zerfallsfunktion die Form³

$$\bar{f}(t') = \begin{cases} 0 & \text{für } t' < 0 \\ \frac{\varepsilon}{\tau} e^{-\frac{t'}{\tau}} + (1 - \varepsilon) \delta(t') & \text{für } t' \geq 0. \end{cases} \quad (15)$$

tionsdetektoren, Tunneldiodenimpulsformerstufen, einem Zeit-Impulshöhen-Konverter nach dem Überlappungsprinzip und einem Vielkanalanalysator ND 180. Die Energieselektion der interessierenden γ - γ -Kaskade wurde mit DD2-Verstärkern, Nulldurchgangsdiskriminatoren und einer Koinzidenzstufe vorgenommen, deren Signale auf den Gate-Eingang des Vielkanalanalysators gegeben wurden. Die Zeiteichung wurde mit Hilfe einer geeichten Impulsverzögerungsleitung Lumatron 1202 A durch Messung an einer prompten Zerfallskaskade gewonnen.

5. Die Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ des 81 keV-Niveaus im ^{133}Cs

Um die verschiedenen Auswerteverfahren zu vergleichen und die Ergebnisse zu diskutieren, haben wir die Halbwertszeit des 81 keV-Niveaus im ^{133}Cs nachgemessen. Die Messung erfolgte an der 355 keV-81 keV-Kaskade. Als Quelle diente ein 10 μCi starkes in Wasser gelöstes BaSO_4 -Präparat.

Fig. 4 zeigt das mit einem $1'' \varnothing \times 1''$ NaJ(Tl)-Kristall gemessene γ -Spektrum sowie das Termschema des ^{133}Cs . Die schraffierten Bereiche

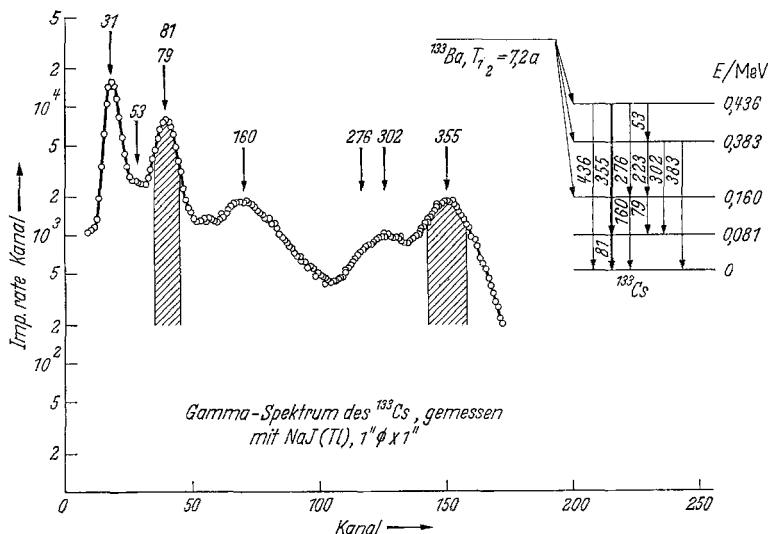


Fig. 4. Termschema und γ -Spektrum des ^{133}Cs . Die schraffierten Bereiche geben die Stellen der beiden Einkanal-Analysatoren an

im Spektrum geben die Stellung der beiden Einkanal diskriminatoren an. Fig. 5 zeigt die Eichkurve der Meßapparatur. Der Eichfaktor betrug $q = (3,68 \pm 0,06)$ Kanäle/ns. In Fig. 6 ist ein gemessenes Zeitspektrum dargestellt. Durch geeignete Signalverzögerung war es möglich, den kon-

stanten von zufälligen Koinzidenzen herrührenden Anteil des Zeitspektrums zu bestimmen. Eine Ausgleichsrechnung lieferte aus dem Kanalbereich 176 ... 256 einen mittleren Untergrund von 32 Ereignissen je Kanal. Fig. 2 zeigt das untergrundkorrigierte und normierte Zeitspektrum zusammen mit dem normierten prompten Zeitspektrum, welches mit einer ^{22}Na -Quelle bei unveränderter Einstellung der Meßapparatur gewonnen wurde. Die Auswertung der Messung nach den verschiedenen oben angeführten Methoden ergab folgendes:

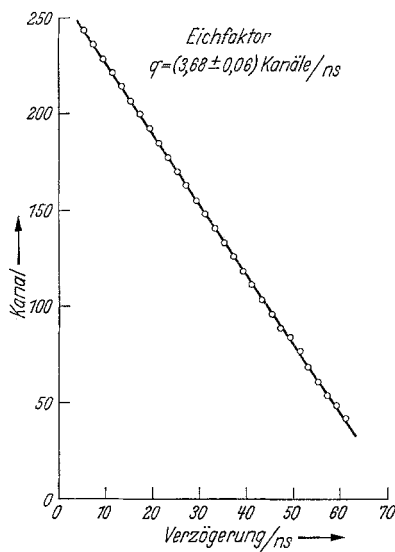
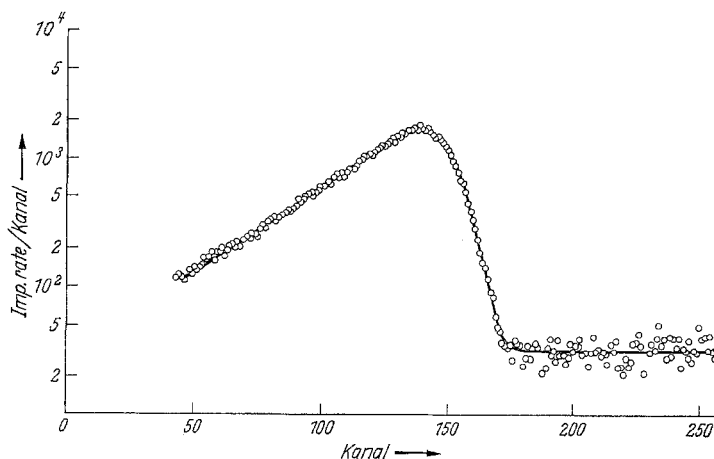


Fig. 5. Die Kanal-Zeit-Eichkurve


 Fig. 6. Gemessenes Zeitspektrum zur Bestimmung der mittleren Lebensdauer des 81 keV-Niveaus im ^{133}Cs . Die horizontale Untergrundgerade ist durch Ausgleichsrechnung gewonnen

5.1. Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ aus der Neigung des halblogarithmisch aufgetragenen Zeitspektrums

Durch eine Ausgleichsrechnung im Kanalbereich 48...112 ergab sich bei *Nichtberücksichtigung des Untergrundes* zufälliger Koinzidenzen für die Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$

$$T_{\frac{1}{2}} = (6,52 \pm 0,06) \text{ ns}^*.$$

Bei *Berücksichtigung eines konstanten Untergrundes* von 32 zufälligen Koinzidenzen je Kanal erhalten wir

$$T_{\frac{1}{2}} = (6,28 \pm 0,06) \text{ ns}.$$

Den Auswertebereich haben wir durch die Schranke $P(t)/F(t) = 5\%$ festgelegt.

5.2. Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ nach NEWTON

Die Auswertung nach NEWTON ergibt bei *Nichtberücksichtigung des Untergrundes* den Wert $T_{\frac{1}{2}} = 4,76 \text{ ns}$ und bei *Berücksichtigung des Untergrundes* wie in 5.1 den Wert $T_{\frac{1}{2}} = 4,68 \text{ ns}$, also gegenüber dem in 5.1 ermittelten sowie den aus der Literatur bekannten Werten⁷⁻¹⁰ zu kleine Werte für die Halbwertszeit. Das liegt daran, daß die Zeitspektren $P(t)$ und $F(t)$ sich nicht genau im Maximum von $F(t)$ schneiden (vgl. Fig. 2), was bei ideal verlaufenden Messungen der Fall sein sollte. Durch eine Abweichung von etwa 0,5 Kanälen wird die Halbwertszeit bereits um etwa 7% verändert. Da sowohl die statistischen Fehler als auch das flache Maximum von $F(t)$ eine so genaue Festlegung des „theoretischen Schnittpunktes“ verbieten, erkennt man, daß dieses Verfahren mit sehr hohen Fehlern behaftet sein muß.

5.3. Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ nach BAY und BIRK *et al.*

Tab. 1 zeigt die Werte der Halbwertszeit, die nach Gl.n. (10), (11), (12) aus den 1., 2. und 3. Momenten von prompter und verzögerter Kurve bezüglich des Schwerpunktes t_p der prompten Kurve berechnet wurden. Der gemessene Kurvenverlauf im Kanalbereich 48...112 wurde dabei unter Zugrundelegung der durch Ausgleichsrechnung in 5.1 bestimmten Neigung extrapoliert.

* Die Fehlerangaben beziehen sich, wie auch im folgenden, auf den statistischen Fehler.

⁷ ALVÄGER, T., B. JOHANSSON u. W. ZUK: Arkiv Fysik **14**, 373 (1958).

⁸ BODENSTEDT, E., H. J. KÖRNER, and E. MATHIAS: Nuclear Phys. **11**, 584 (1959).

⁹ FLAUGER, W., u. H. SCHNEIDER: Atomkernenergie **8**, 453 (1963).

¹⁰ BLOESS, D., A. KRUSCHE u. F. MÜNNICH: Z. Physik **734**, **192** (1966).

Tabelle 1. *Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ nach BAY u. BIRK et al.*

$T_{\frac{1}{2}}/\text{ns}$	Gl. (10)	Gl. (11)	Gl. (12)
Gemessenes und untergrundkorrigiertes Zeitspektrum	$6,09 \pm 0,34$	$5,61 \pm 0,03$	$5,28 \pm 0,02$
bis 1 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,50 \pm 0,50$	$6,18 \pm 0,03$	$6,04 \pm 0,03$
bis 0,1 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,29 \pm 0,56$	$6,28 \pm 0,04$	$6,24 \pm 0,04$
bis 0,01 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,36 \pm 0,79$	$6,29 \pm 0,04$	$6,28 \pm 0,04$

5.4. Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ nach WEAVER und BELL

Bei diesem Verfahren werden die Momente auf den Schwerpunkt *der Kurven selbst* bezogen. $T_{\frac{1}{2}}$ wurde nach Gln. (13) und (14) berechnet; die erhaltenen Werte sind in Tabelle 2 zusammengestellt.

Tabelle 2. *Bestimmung der Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2}}$ nach WEAVER und BELL*

$T_{\frac{1}{2}}/\text{ns}$	Gl. (13)	Gl. (14)
Gemessenes und untergrundkorrigiertes Zeitspektrum	$5,08 \pm 0,03$	$4,38 \pm 0,02$
bis 1 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,11 \pm 0,04$	$6,00 \pm 0,04$
bis 0,1 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,22 \pm 0,04$	$6,21 \pm 0,04$
bis 0,01 Impuls je Kanal extrapoliertes Zeitspektrum	$6,22 \pm 0,04$	$6,25 \pm 0,04$

6. Diskussion der Ergebnisse

Ein Vergleich der Ergebnisse untereinander und mit den Literaturwerten (Tabelle 3) zeigt erhebliche Unterschiede, läßt aber eine kritische Wertung der Auswerteverfahren zu.

Tabelle 3. *Literaturwerte*

Autor	$T_{\frac{1}{2}}/\text{ns}$	Methode
ALVÄGER et al. ⁷	$6,3 \pm 0,2$	verzögerte β - γ -Koinzidenzen
BODENSTEDT et al. ⁸	$6,31 \pm 0,05$	verzögerte γ - γ -Koinzidenzen. $T_{\frac{1}{2}}$ aus Neigung
FLAUGER et al. ⁹	$6,30 \pm 0,15$	verzögerte γ - γ -Koinzidenzen. $T_{\frac{1}{2}}$ aus Neigung
BLOESS et al. ¹⁰	$6,25 \pm 0,05$	verzögerte γ - γ -Koinzidenzen. $T_{\frac{1}{2}}$ aus Neigung

Da im vorliegenden Fall das verzögerte Zeitspektrum breit gegen das prompte Zeitspektrum ist, läßt sich die Halbwertszeit einfach aus der Neigung des halblogarithmisch aufgetragenen Zeitspektrums entnehmen; das Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit den Literaturwerten.

Das Verfahren nach NEWTON erweist sich zumindest im vorliegenden Fall als außerordentlich empfindlich gegenüber der relativen Lage der gemessenen Zeitspektren $F(t)$ und $P(t)$ und daher als ungeeignet.

Sind die Neigungen der halblogarithmisch aufgetragenen Zeitspektren $P(t)$ und $F(t)$ vergleichbar, so empfiehlt sich die Auswertung nach der Momentenanalyse. Hier ist dem Verfahren nach WEAVER und BELL gegenüber demjenigen von BAY der Vorzug zu geben, da es von der relativen Schwerpunktslage der beiden Kurvenflächen von $P(t)$ und $F(t)$ unabhängig ist. Die hier durchgeführte Auswertung eines Zeitspektrums nach der Momentenanalyse hat gezeigt, daß es zur richtigen Berechnung der Kurvenmomente unter Umständen notwendig ist, die gemessenen und untergrundkorrigierten Zeitspektren zu extrapolieren. Im vorliegenden Fall des ^{133}Cs erwies es sich als notwendig und ausreichend, die Extrapolation bis zu 0,1 Impuls je Kanal durchzuführen.

Im vorliegenden Fall scheinen aber alle „komplizierten“ Verfahren gegenüber dem einfachen Verfahren der Neigungsbestimmung in der halblogarithmischen Auftragung des Zeitspektrums keinen Vorteil zu bringen.

Wir danken Herrn Prof. Dr. W. WALCHER für anregende Diskussionen und sein förderndes Interesse an dieser Arbeit.