

**stichting
mathematisch
centrum**



AFDELING TOEGEPASTE WISKUNDE

TN 104/83

AUGUSTUS

J. GRASMAN

KARAKTERISERING VAN SPECTRA BIJ IJKING VAN TRACERS

*characterization of spectra while measuring
tracers*

kruislaan 413 1098 SJ amsterdam

Karakterisering van spectra bij ijking van tracers

J. Grasman

Samenvatting

Energiespectra van gemeten stralingseenheden van tracers worden benaderd door exponentiële curves. De parameters van deze curves blijken polynomiale functies van de doving te zijn. Op deze wijze is het mogelijk energiespectra te karakteriseren voor alle voorkomende gradaties van doving.

Verantwoording Het onderzoek, waarover in dit rapport verslag wordt gedaan, is uitgevoerd in opdracht van het Biologisch Laboratorium van de Vrije Universiteit, Amsterdam. Dit rapport bevat slechts die aspecten van de probleemstelling van het radiobiologisch onderzoek, welke bij de mathematische analyse naar voren komen.

1. De gegevens

Gemeten is de straling van twee tracers, Tritium (^3H) en Koolstof 14 (^{14}C), welke afzonderlijk in een viertal media geplaatst zijn, te weten media met zoutzuur, ethanol, water en chloroform. In de experimentele opstelling bevatte Tritium 148.000 en Koolstof 14 45.000 stralingseenheden. In de metingen werd hiervan een zekere fractie, verdeeld over 128 energiekanalen, geregistreerd. Deze fractie is een maat voor de efficiëntie van de meting. Ter beschikking staan series metingen met samplingtijden van 1, 3, 5 en 10 minuten. In de wiskundige analyse is slechts gebruik gemaakt van de series met 1 minuut samplingtijd. De verwachting is dat deze metingen de grootste fluctuaties zullen vertonen. Beide tracers waren in elk van de vier media aan 10 gradaties van doving onderhevig. De dovingfactor is geschaald van 1 tot 10 naar toenemende doving. Fig 1 laat vier metingen (energiespectra) zien. Het medium met chloroform levert uitkomsten welke duidelijk verschillen van die van de overige media.

2. Doelstelling

In praktijksituaties dient uit geregistreerde stralingseenheden het ideale energiespectrum (minimale doving) gereconstrueerd te worden. De series metingen hebben tot doel de meetapparatuur te ijken voor alle gradaties van doving, welke zich in operationele situaties kunnen voordoen. In principe is de doving de onbekende factor in de meting. Een gemeten energiespectrum zal dus met de 10 ijspectra voor de diverse dovingfactoren vergeleken moeten worden.

Om tot een schatting van de dovingfactor van een gemeten spectrum te komen, dient men de ijspectra te parametriseren. Het opstellen van een gestandaardiseerde curve en het schatten van de parameters van die curve vormt het hoofddoel van het onderzoek.

3. Gestandaardiseerde spectra en schatting van parameters

In fig.2 zijn twee karakteristieke spectra geschetst, zie ook lit., pag 220. Opgemerkt kan worden dat het spectrum in zijn begin-interval erg onbetrouwbaar is.

Onderzocht is de nauwkeurigheid waarmee curven van het type

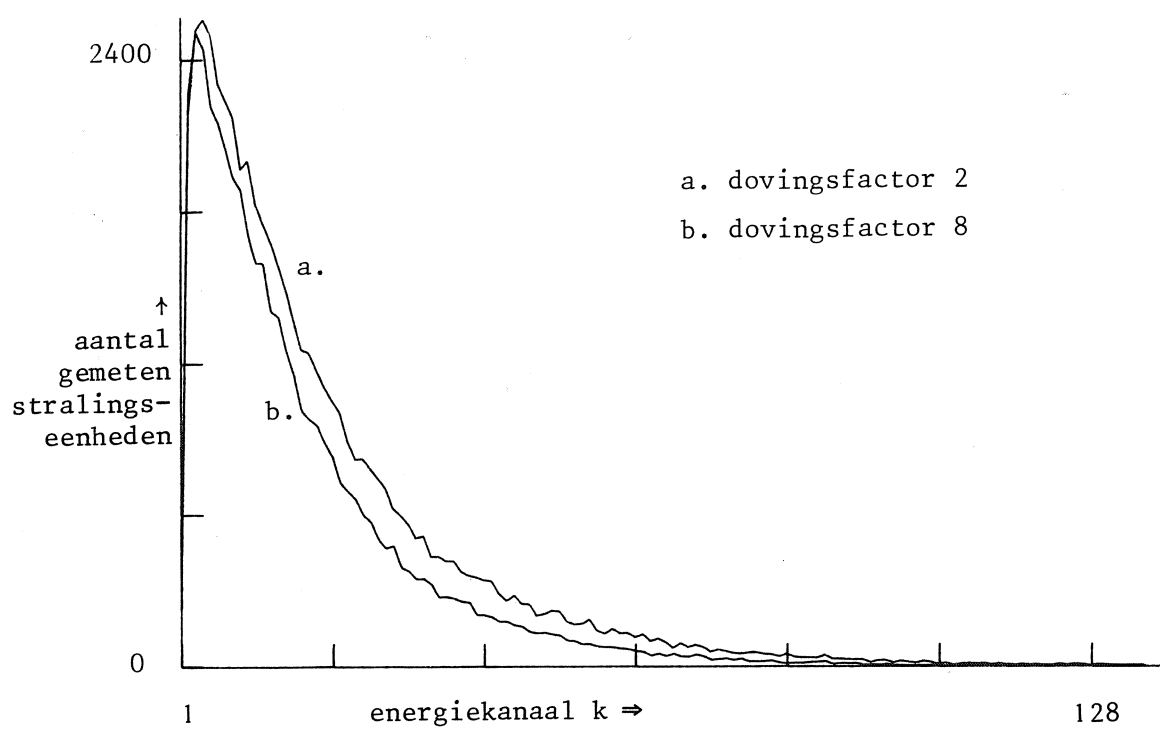
$$f(k) = (a + b k) \exp(-c k - d k^2), \quad a, b, c, d \geq 0 \quad (1)$$

de gemeten spectra beschrijven. Daarbij is belangrijk om het aantal parameters zo laag mogelijk te houden. Dit heeft geleid tot de keuze

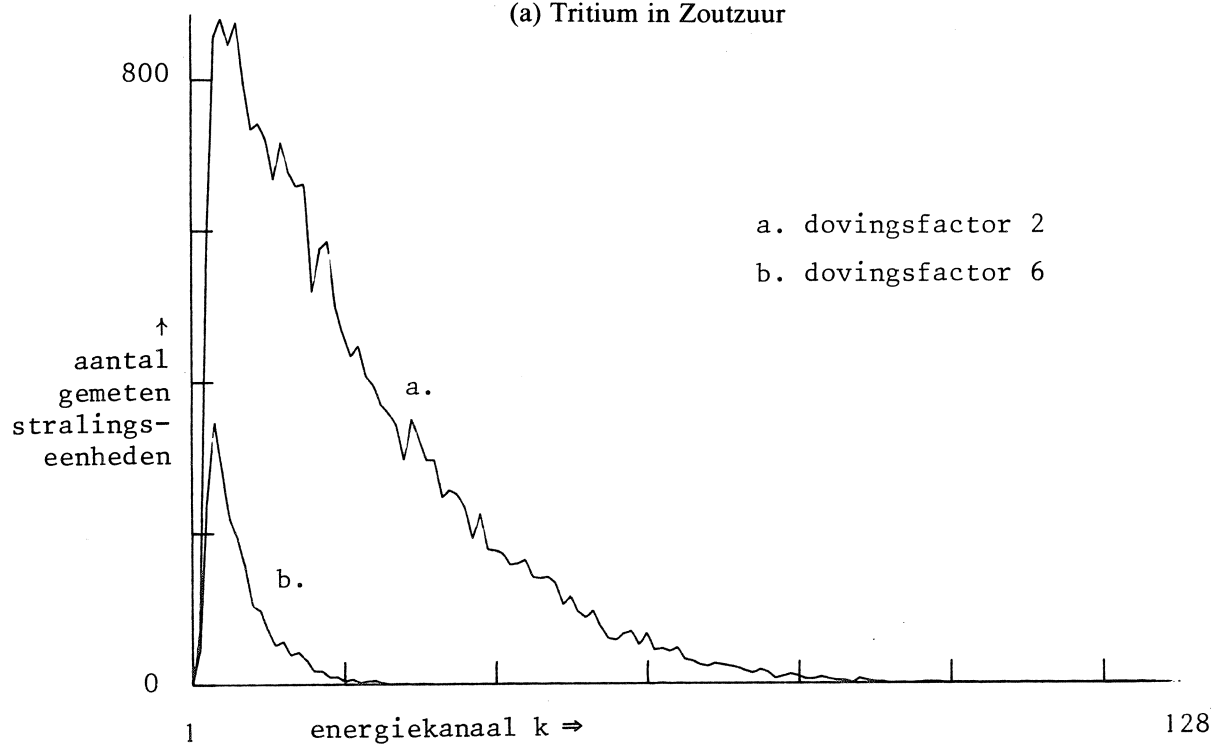
$$f(k) = a \exp(-c k), \quad (2)$$

waarbij alleen die metingen betrokken werden, welke liggen op het interval $[k_{\max}, k_{\min}]$. De ondergrens $k_{\max}$ is het kanaal waar het spectrum z'n maximum heeft. De bovengrens wordt bepaald door het hoogste kanaal $k_{\min}$ dat, op het oog, boven de ruis uit nog stralingseenheden van de tracer registreert. De keuze (2) vertoont over het beschouwde interval geen systematische afwijkingen.

Ook leidt invoering van extra parameters, bij de thans onderzochte spectra, tot slechts een geringe verbetering van de nauwkeurigheid. Voor het volledige interval over de 128 kanalen gaven de curven met meer dan twee parameters redelijke uitkomsten. Het proces van niet-lineaire parameterschatting convergeerde dan echter niet altijd of soms erg langzaam. De indruk bestaat dat dit mede veroorzaakt werd door de geringe betrouwbaarheid van de waarden voor de gemeten stralingseenheden in het lage deel van het spectrum



(a) Tritium in Zoutzuur



(b) Koolstof 14 in Chloroform

Fig.1. Energiespectrum van gemeten stralingseenheden
van een tracer in een medium

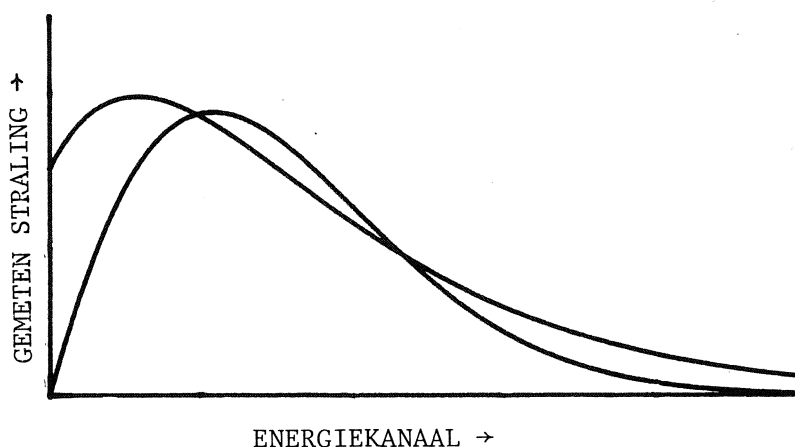


Fig.2 Karakteristieke curven van energiespectra van een tracer in een medium.

Bepaling van de parameters

De geregistreeerde stralingseenheden over de kanalen $k \in [k_{\max}, k_{\min}]$ worden bij elkaar opgeteld en leveren een totaal S . Tussen de parameters a en c wordt een zodanige vaste relatie gekozen dat de integraal van $f(k)$ over $[k_{\max}, k_{\min}]$ met S overeenkomt. Hierdoor wordt het aantal te schatten parameters teruggebracht tot 1. Het verband tussen a en c is van de vorm.

$$\{\exp(-ck_{\max}) - \exp(-ck_{\min})\}a / c = S \quad (3)$$

De parameter a is expliciet in c uit te drukken. Het ligt dus voor de hand om c als de uiteindelijk te schatten parameter te kiezen. Het residu dat geminimaliseerd dient te worden is

$$V(c) = \sum_{k=k_{\max}}^{k_{\min}} \{a(c) \exp(-ck) - y(k)\}^2, \quad (4)$$

$$a(c) = S c / \{\exp(-ck_{\max}) - \exp(-ck_{\min})\}, \quad (5)$$

waarin $y(k)$ het aantal geregistreeerde stralingseenheden in kanaal k voorstelt.

Eerst wordt een beginschatting voor c gemaakt, gebaseerd op de kanalen $k_{\max}$ en $k_{\min}$:

$$y(k_{\max}) / y(k_{\min}) = \exp\{-c(k_{\max} - k_{\min})\} \quad (6)$$

of

$$c = \log\{y(k_{\max}) / y(k_{\min})\} / (k_{\min} - k_{\max}). \quad (7)$$

Vervolgens wordt telkens, met stapgrootte Δc , de parameter c verhoogd of verlaagd afhankelijk van de richting waarin $V(c)$ afneemt. Als V in een minimum is aangekomen, wordt de stapgrootte gehalveerd. De gehele procedure wordt herhaald totdat met de vereiste nauwkeurigheid, de waarde van c bepaald is, waarvoor $V(c)$ minimaal is.

Het in Fortran geschreven computerprogramma hiervoor is opgenomen in appendix A. Het weglaten van de kanalen $k > k_{\min}$ levert een aanzienlijke besparing van rekentijd. De functie $V(c)$ kan verscheidene minima hebben. De beginschatting is dan bepalend voor het al dan niet bereiken van het gewenste minimum.

Toepassing van kleinste kwadraten methode

Het is ook mogelijk voor de keuze (2) de parameters a en c met de kleinste kwadraten methode te schatten, we beschouwen

$$\ln f(k) = \ln a - c k \quad (8)$$

en zoeken het minimum van

$$V(\hat{a}, c) = \sum_{k=k_{\max}}^{k_{\min}} \{\hat{a} - c k - \ln y(k)\}^2, \quad \hat{a} = \ln a. \quad (9)$$

De conditie $\partial V / \partial \hat{a} = \partial V / \partial c = 0$ levert

$$\hat{a} = (Y_0 K_2 - Y_1 K_1) / (K_2 K_0 - K_1^2), \quad (10)$$

$$c = (Y_0 K_1 - Y_1 K_0) / (K_2 K_0 - K_1^2) \quad (11)$$

met

$$K_i = \sum_{k_{\max}}^{k_{\min}} k^i, \quad i = 0, 1, 2, \quad (12)$$

$$Y_i = \sum_{k_{\max}}^{k_{\min}} k^i \ln y(k), \quad i = 0, 1. \quad (13)$$

Het computer programma voor deze methode is opgenomen in appendix B.

4 Resultaten voor enkele series metingen

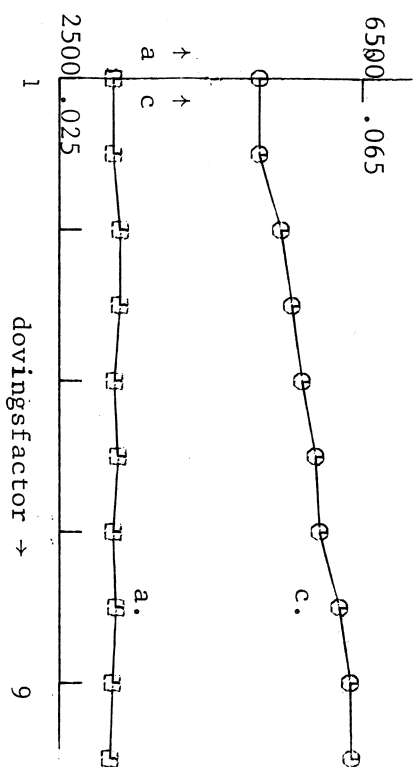
De parameterschattingmethode, zoals beschreven in (3)-(7) is toegepast op de meetseries van de twee tracers afzonderlijk in de media met zoutzuur en chloroform zie fig.3. Voor zoutzuur hangen de parameters a en c bij benadering lineair van de dovingfactor af. De parameter a is voor Tritium zelfs constant. Voor chloroform is de situatie anders. De parameter a dient door een polynomiale curve van minimaal de derde graad beschreven te worden. Voor c kan met een tweede graadcurve volstaan worden. Voor Koolstof 14 in chloroform kan de meting met dovingfactor 10 beter niet gebruikt worden.

Efficiëntiecurven

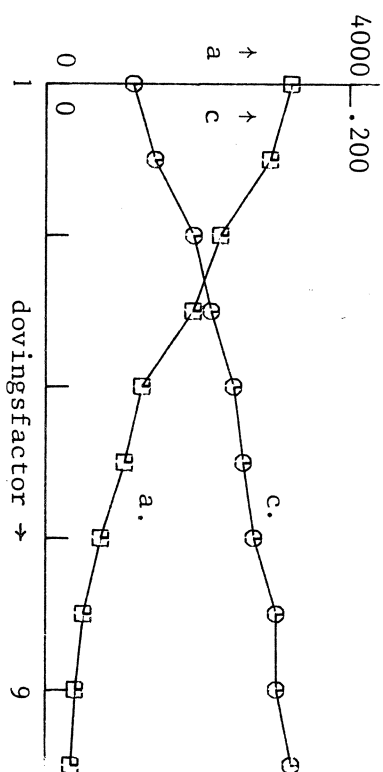
De efficiëntie van een meting wordt gedefinieerd als de fractie geregistreerde stralingseenheden van het totaal, dat in de tracer bevat is. Het volgens (2) geparametriseerde spectrum levert een fractie

$$\int_0^{\infty} a e^{-c k} dk = a / c \quad (14)$$

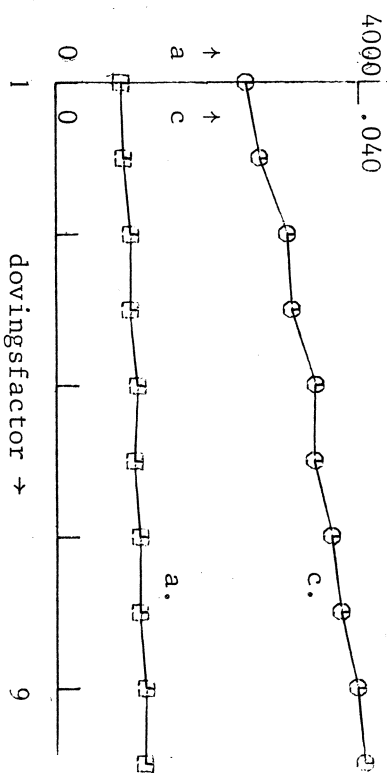
In fig.4 zijn de gemeten en geparametriseerde efficiëntie tegen de dovingfactor uitgezet. Gezien de verschillen tussen het gemeten spectrum en het geparametriseerde spectrum voor $0 < k < k_{\max}$, is het te verwachten dat de geparametriseerde efficiëntie systematisch hoger zal liggen. Gelet op de efficiëntie curven voor chloroform, vormt een exponentiele functie van het type (2) de beste benadering. Zetten we de twee efficiënties tegen elkaar uit, zie fig.5, dan levert dit bij benadering een rechte door de oorsprong. Merk op dat de helling van deze rechte vrijwel onafhankelijk van de keuze van de tracer en het medium is.



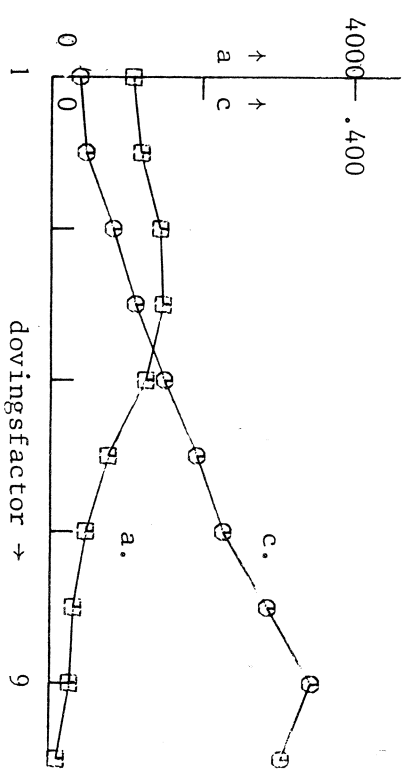
(a) Tritium in zoutzuur



(b) Tritium in chloroform



(c) Koolstof 14 in zoutzuur



(d) Koolstof 14 in chloroform

Fig.3 De parameters van het energiespectrum als functie van de diving.

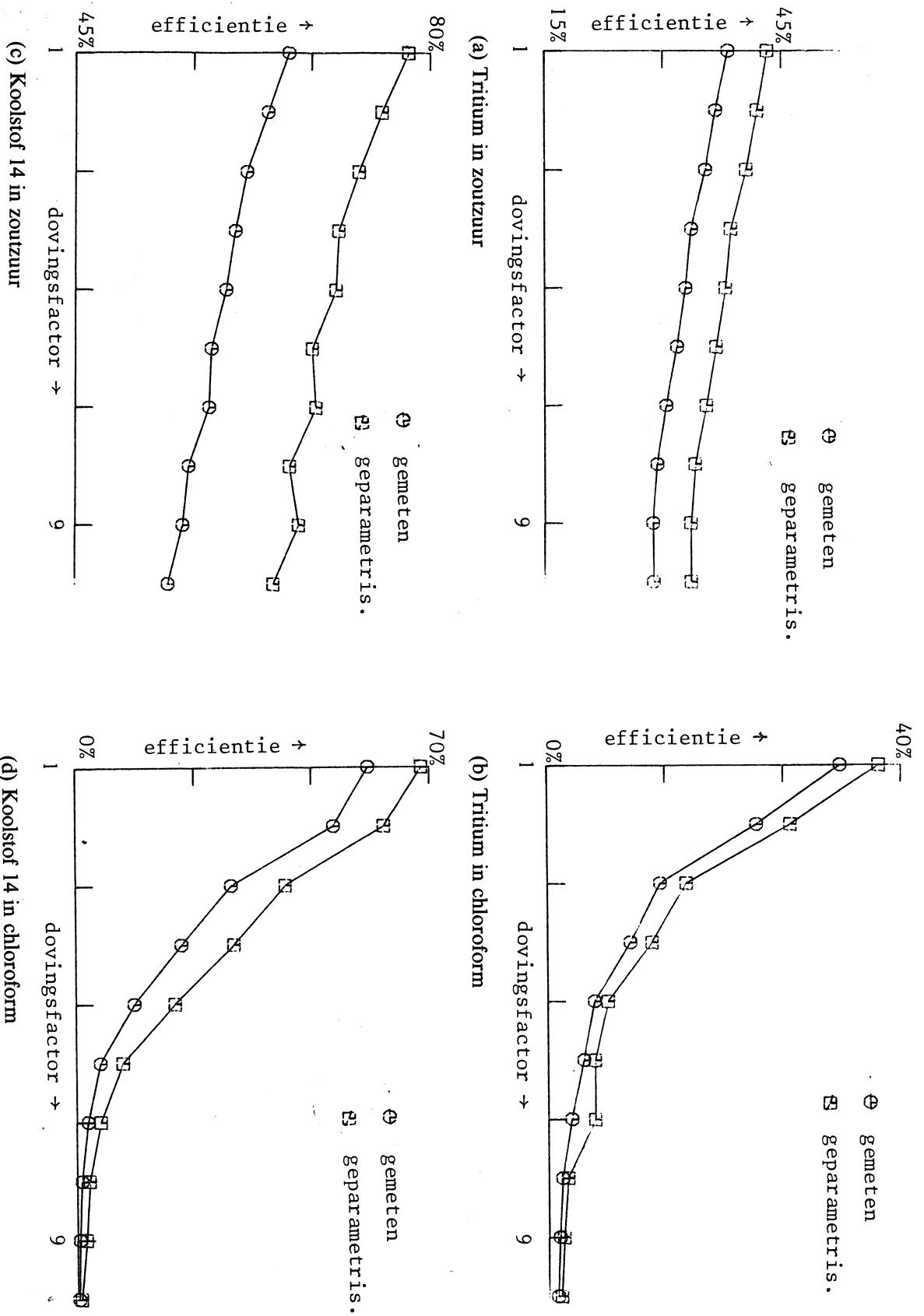


Fig.4 Gemeten en geparametriseerde efficiëntie als functie van de doving.

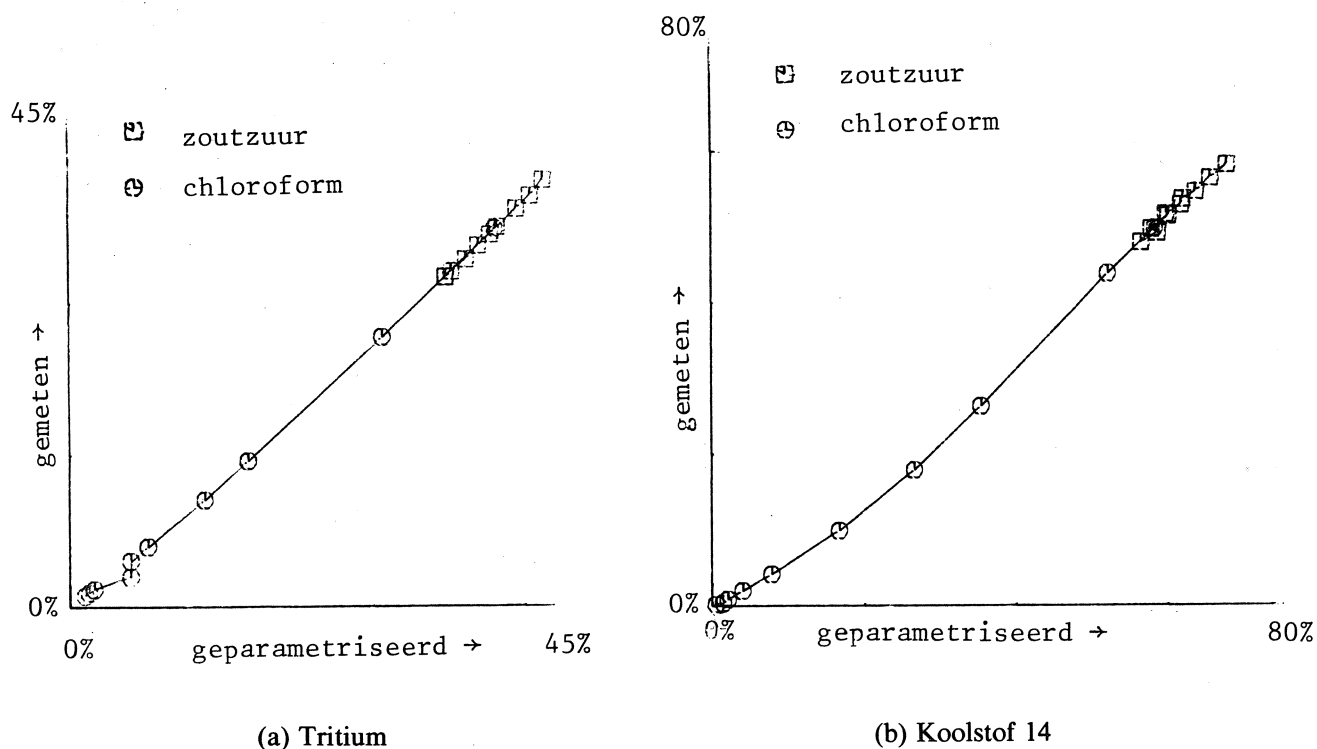


Fig.5 Gemeten efficiëntie tegen geparametriseerde efficiëntie.

5. Conclusies en opmerkingen

Het is mogelijk gebleken om voor één enkele tracer het energiespectrum van geregistreerde stralingseenheden vast te leggen in een exponentiële curve, welke bepaald wordt door twee parameters. De afhankelijkheid van deze parameters van de doving heeft de vorm van een polynomiale curve, waarvan de minimale graad varieert van 0 tot 3 bij de niet-lineaire schattingsmethode gegeven door (3)-(7). De lineaire methode (8)-(13) geeft een nauwkeuriger resultaat en is zeer efficiënt. Nadeel is dat deze methode alleen voor de exponentiële curve (2) werkt en niet van toepassing is voor het ijken van meerdere tracers te gelijk. Het voordeel van de keuze (3) in het niet-lineaire probleem is de grotere nauwkeurigheid waarmee de efficiëntie van het geparametriseerde spectrum wordt vastgelegd.

De gemeten en geparametriseerde efficiëntie zijn bij benadering exponentiële functies van de doving, welke zich eveneens in twee parameters laten vastleggen. Tussen de gemeten en geparametriseerde efficiëntie bestaat een bijna lineair verband. Deze rechte gaat door de oorsprong en hangt niet af van de keuze van de tracer en het medium.

Naar het zich laat aanzien kan de methode uitgebreid worden tot 2 (of meer) tracers in één medium. Het risico bestaat echter dat in sommige gevallen het parameterschattingsproces niet convergeert of een verkeerde waarde oplevert. Noodzakelijk voor een kans op succes is dat, over een voldoende groot aantal kanalen, het geregistreerde aantal stralingseenheden van beide tracers tesamen betrouwbaar is. Ook dienen de parameters c_1 en c_2 van de curve

$$f(k) = a_1 \exp(-c_1 k) + a_2 \exp(-c_2 k) \quad (15)$$

niet te dicht bij elkaar te liggen.

Literatuur

C.H. Wong , D.L. Willis, W.D. Loveland, Radiotracer methodology, in the biological, environmental and physical Sciences, Prentice Hall, 1975. Englewood Cliffs.

Appendix A

```

      PROGRAM PAR1(INPUT,TAPE5=INPUT,DATA,TAPE1=DATA,
      *OUTPUT,TAPE6=OUTPUT)
C INPUT WORDT   CONNECTED
C DATA BEVAT 50 SPECTRA, ELK BESTAAND UIT 128 GETALLEN
      COMMON A1,C1,IS,IE,P
      COMMON TOT
      INTEGER Y(128)
      NR=11
C NR IS HET NUMMER VAN HET INGEVOERDE SPECTRUM
      DO 555 NN=1,NR
      READ(1,100) (Y(I),I=1,128)
555   CONTINUE
100   FORMAT(7(16I5/),16I5)
      READ(1,100) (Y(I),I=1,128)
      WRITE(5,100) (Y(I),I=1,128)
      WRITE(6,100) (Y(I),I=1,128)
      WRITE(5,111)
111   FORMAT(" EERSTE EN LAATSTE KANAAL IN FORMAT 2I4")
      READ(5,2) IS,IE
C HIERMEE WORDT HET KANALEN-INTERVAL VASTGELEGD
2     FORMAT(2I4)
      WRITE(6,111)
      WRITE(6,2) IS,IE
      TOT=0
      DO 321 I=IS,IE
      TOT=TOT+Y(I)
321   CONTINUE
      C1=ALOG(Y(IS)*1./Y(IE))/(IE-IS)
      A1=TOT*C1/(EXP(-C1*IS)-EXP(-C1*IE))
      WRITE(6,5)
      WRITE(5,5)
5     FORMAT(" EERSTE SCHATTING VOOR A1 EN C1 IS")
      WRITE(6,6) A1,C1
      WRITE(5,6) A1,C1
6     FORMAT(2E10.4)
      P=1
      DP=.03
      DEND=.00001
C DP IS DE STAPGROOTTE IN HET BEGIN
C DEND IS DE STAPGROOTTE AAN HET EIND

```

```

V=10**10
301  P=P+DP
      VP=0
      A1=TOT*C1*P/(EXP(-C1*P*IS)-EXP(-C1*P*IE))
      DO 11 I=IS,IE
      VP=VP+(Y(I)-F(I))**2
11   CONTINUE
      IF (VP.GT.V) GOTO 300
      V=VP
      GOTO 301
300  P=P-2*DP
      VN=0
      A1=TOT*C1*P/(EXP(-C1*P*IS)-EXP(-C1*P*IE))
      DO 12 I=IS,IE
      VN=VN+(Y(I)-F(I))**2
12   CONTINUE
      IF (VN.GT.V) GOTO 302
      V=VN
      GOTO 301
302  P=P+DP
      DP=DP/2
      IF(DP.GT.DEND) GOTO 301
      WRITE(6,713)
      WRITE(5,713)
713  FORMAT(" EINDSCHATTING A1 EN C1 IS")
      C1=C1*P
      A1=TOT*C1/(EXP(-C1*IS)-EXP(-C1*IE))
      WRITE (6,6) A1,C1
      WRITE(5,6) A1,C1
99   STOP
      END

```

```

FUNCTION F(I)
COMMON A1,C1,IS,IE,P
COMMON TOT
F=A1*EXP(-C1*P*I)
RETURN
END

```

Appendix B

```

      PROGRAM PAR1(INPUT,TAPE5=INPUT,DATA,TAPE1=DATA,
        *OUTPUT,TAPE6=OUTPUT)
C INPUT WORDT CONNECTED
C DATA BEVAT 50 SPECTRA, ELK BESTAAND UIT 128 GETALLEN
  INTEGER Y(128)
  NR=11
C NR IS HET NUMMER VAN HET INGEVOERDE SPECTRUM
  DO 555 NN=1,NR
    READ(1,100) (Y(I),I=1,128)
555  CONTINUE
100  FORMAT(7(16I5/),16I5)
    READ(1,100) (Y(I),I=1,128)
    WRITE(5,100) (Y(I),I=1,128)
    WRITE(6,100) (Y(I),I=1,128)
    WRITE(5,111)
111  FORMAT(" EERSTE EN LAATSTE KANAAL IN FORMAT 2I4")
    READ(5,2) IS,IE
C HIERMEE WORDT HET KANALEN-INTERVAL VASTGELEGD
2    FORMAT(2I4)
    WRITE(6,111)
    WRITE(6,2) IS,IE
    K0=IE-IS
    K1=K2=0
    DO 601 I=IS,IE
      K1=K1+I
      K2=K2+I*I
601  CONTINUE
      Y0=Y1=0
      DO 603 I=IS,IE
        Y1=Y1+I*ALOG(Y(I)*1.)
        Y0=Y0+ALOG(Y(I)*1.)
603  CONTINUE
      A=(Y0*K2-Y1*K1)/(K2*K0-K1*K1)
      A1=EXP(A)
      C1=(Y0*K1-Y1*K0)/(K2*K0-K1*K1)
      WRITE(6,713)
      WRITE(5,713)
713  FORMAT(" EINDSCHATTING A1 EN C1 IS")
      WRITE (6,6) A1,C1
      WRITE(5,6) A1,C1
6    FORMAT(2E10.4)
99   STOP
      END

```