

20. Meranie vzoriek zo životného prostredia pomocou polovodičovej spektrometrie žiarenia gama

1. Všeobecná časť

Nízke aktivity

Oblasť merania nízkych aktivít nemusí byť jednoznačne vymedzená len nízkou meranou aktivitou, merania na úrovni citlivosti meracej aparatury môžu byť dosiahnuté aj ďalšími limitujúcimi faktormi merania ako napr. krátke meracie časy, nízka detekčná účinnosť, neoptimálna geometria merania, vysoké prírodné alebo umelé interferencie a pod.

V prípade meraní vzoriek zo životného prostredia (ŽP) sa do problematiky meraní nízkych aktivít dostávajú okrem nízkych hodnôt meraných aktivít hneď z niekoľkých ďalších dôvodov a to najmä: vysoká interferencia prírodného pozadia, nehomogénnosť objemových prírodných vzoriek a rozptyly v objeme vzorky, veľký počet energetických komponent zodpovedajúcich veľkému počtu rádionuklidov z prirodzených rozpadových radov, sumačný efekt kaskádnych prechodov gama a iné.

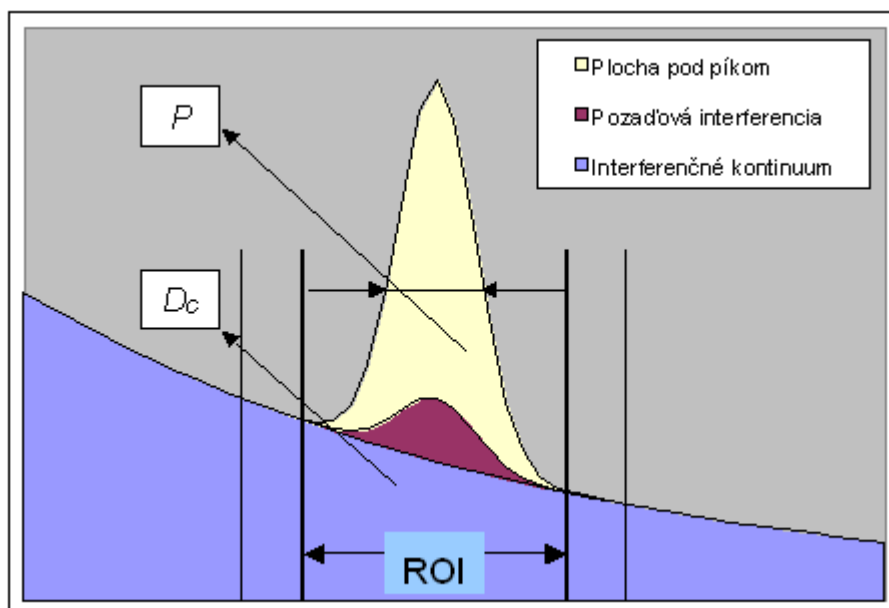
V súčasnosti sa pre merania vzoriek zo ŽP najrozšírenejšie používa metodika založená na polovodičovej spektrometrickej technike na báze detektorov z vysokočistého germánia (HPGe), ktoré vďaka dobrému energetickému rozlíšeniu (pod 2 keV) umožňujú komplexnú analýzu multikomponentových spektier. Merania sa vykonávajú v nízkopozadovej tieniacej kobke, ktorá významne znižuje pozadovú interferenciu. Niekedy sa navyše používa aj systém elektronického znižovania pozadia založeného na antikoincidenčnom (AKO) tienení. Optimálna detekcia je založená na tzv. Marinelliho geometrii (cylindrická vzorka so studňovou dutinou pre zasunutie detektora).

Metóda plochy pod píkom

Pri aplikácii HPGe spektrometrie je najrozšírenejšia vyhodnocovacia metóda založená na analýze píku úplnej absorpcie. Táto tzv. metóda plochy pod píkom je graficky znázornená na obr. 20.1 a môže byť matematicky formulovaná ako skálarne lineárny spektrometrický model merania aktivity:

$$a = \frac{1}{\epsilon y} \left(\frac{D}{t_D} - \frac{B}{t_B} - d_I \right) = \frac{d - b - d_I}{\epsilon y} = \frac{p}{\epsilon y} \quad (20.1)$$

kde $D = \sum_{c_1}^{c_2} D_i$ je integrálna početnosť impulzov od vzorky v rámci spektrálnej oblasti analyzovaného píku $\langle c_1, c_2 \rangle$ (ROI). Integrálna početnosť impulzov od prírodného pozadia je daná potom ako $B = \sum_{c_1}^{c_2} B_i$, d_i je príkon početnosti impulzov od interferencie, ktorú určíme pomocou (20.2) ako kontinuum pod píkom, t_D a t_B sú časy merania vzorky a pozadia, $k = c_2 - c_1$ je počet kanálov pod píkom, ε je detekčná účinnosť v oblasti píku a y je výťažnosť fotónov pre vyšetovaný prechod gama.



Obr. 20.1: Grafické znázornenie metódy plochy pod píkom (ROI – oblasť analyzovaného píku).

Interferenčný člen d_i môžeme odhadnúť pomocou tzv. techniky PNA (Peak Net Area). Tento člen odpovedá interferenciám impulzov pochádzajúcich z ďalších interakčných efektov ako napríklad fotoefekt pre energie blízko susediacich s energiou analyzovaného píku (multiplet), Comptonov efekt od vyšších energií, viacnásobný rozptyl, brzdné žiarenie a pod. Príkon od interferenčného pozadia d_i môžeme teda matematicky napísať ako:

$$d_i = \frac{D_P}{t_D} + \frac{D_C}{t_D} - \frac{B_C}{t_B} = d_P + d_C - b_C \quad (20.2)$$

kde D_P reprezentuje interferenciu od prípadného multipletu, pre singlety je $D_P = 0$, D_C a B_C zahŕňajú spojité Comptonove príspevky do oblasti píku od vzorky a od pozadia. Väčšina odhadov pre tieto interferenčné kontinua je založená na:

- a) priemere početností v krajných kanáloch píku:

$$\hat{D}_C = k \frac{D_{c_1} + D_{c_2}}{2} \quad (20.3)$$

b) priemere početností v m krajných kanáloch píku:

$$\hat{D}_C = \frac{k}{2m} \left(\sum_{i=c_0}^{c_1} D_i + \sum_{i=c_2}^{c_3} D_i \right) \quad (20.4)$$

c) parabolických alebo iných nelineárnych fitovacích algoritmoch.

Energetická kalibrácia

Prvým krokom pri komplexnej analýze spektier žiarenia gama je energetická kalibrácia, ktorá umožňuje určenie energie pre danú lokalizáciu kanálov v spektre. Pre 4000 a viac kanálové spektrá sa používa kalibračná krivka druhého rádu:

$$E = C_2 K^2 + C_1 K + C_0 \quad (20.5)$$

kde E je energia, K je číslo kanála a C_i sú kalibračné koeficienty. Energetická kalibrácia umožňuje kvalitatívnu analýzu zahrňujúcu identifikáciu nuklidov pomocou zistenej energie a tabelovaných knižníc rádionuklidov.

Účinnosť kalibrácia

Neznáma detekčná účinnosť ε sa určuje pomocou kalibračných meraní známych štandardov. V súlade so skalárnou formuláciou modelu merania (20.1) potom účinnosť ε pre konkrétnu energiu píku (píková účinnosť) môže byť priamo určená ako:

$$\varepsilon = \frac{1}{s_0 Y} \left(\frac{S}{t_S} - \frac{B}{t_B} - s_I \right) = \frac{s - b - s_I}{s_0 Y} = \frac{q}{s_0 Y} \quad (20.6)$$

kde $S = \sum_{c_1}^{c_2} S_i$ je integrálna početnosť od štandardu v oblasti analyzovaného píku (ROI), t_S a t_B sú časy merania štandardu a pozadia, $s_I = S_C/t_S - B_C/t_B = s_C - b_C$ je príkon početnosti impulzov, ktorý interferuje so štandardnou plochou q . Hodnoty S_C a B_C sú kontinuálne príspevky určené sprimerovaním krajných kanálov píkov pre merania štandardu a pozadia a s_0 je známa referenčná aktivita štandardu.

Pri komplexnej spektrometrickej analýze vo väčšine nie je priamo dostupný štandard zodpovedajúci analyzovanému nuklidu vo vzorke. V tomto prípade sa píková účinnosť pre danú energiu stanoví na základe kalibračnej účinnostnej funkcie $\varepsilon(E)$, ktorej najpoužívanejší tvar je:

$$\log(\varepsilon) = A_4 \log(E)^4 + A_3 \log(E)^3 + A_2 \log(E)^2 + A_1 \log(E) + A_0 \quad (20.7)$$

2. Zadanie a postup merania

Základným cieľom riešenia tejto úlohy je urobiť komplexnú analýzu vybranej vzorky zo ŽP. Vzorka je meraná v Marinelliho geometrii. Na energetickú kalibráciu použite zmes bodových žiaričov (^{137}Cs a ^{60}Co). Účinnosťnú kalibráciu urobte pomocou objemového referenčného štandardu ^{152}Eu . Štandardná vzorka je umiestnená v Marinelliho nádobe o rozmeroch odpovedajúcim geometrii vzorky. Pri meraní pozadia taktiež použite Marinelliho nádobu naplnenú destilovanou vodou, aby ste zohľadnili absorpciu pozadia v hmotnom prostredí vzorky pri použitej geometrii detekcie.

Vzhľadom na komplexnosť potrebnej analýzy vzorky zo ŽP, je vhodné použiť pre účely energetickej a účinnostnej kalibrácie, vyhľadávanie pík, výpočty PNA a identifikáciu nuklidov plne alebo čiastočne automatizované komerčné produkty na spracovanie spektier žiarenia gama.

Postupnosť riešenia úlohy je nasledovná:

- 1) Meranie zmesi bodových žiaričov (^{137}Cs a ^{60}Co) pre účely energetickej kalibrácie
- 2) Meranie štandardu ^{152}Eu v Marinelliho geometrii
- 3) Meranie vzorky zo ŽP v Marinelliho geometrii
- 4) Meranie pozadia s Marinelliho nádobou s destilovanou vodou
- 5) Energetická kalibrácia pomocou nameranej zmesi (^{137}Cs a ^{60}Co), prípadné upresnenie použitím spektra ^{152}Eu
- 6) Účinnosťná kalibrácia pomocou nameraného spektra ^{152}Eu (20.7)
- 7) Analýza spektra meranej vzorky zo ŽP zahrňujúca lokalizáciu pík, výpočty PNA a identifikáciu nuklidov
- 8) Zistite, či vzorka zo ŽP nie je kontaminovaná umelými rádionuklidmi, ak áno stanovte ich aktivitu a výsledok ohodnoďte chybou merania.