

بهینه کردن زمان لازم برای طیف‌سنجی گاما در نمونه‌های خاک

سپیده شفیعی*

پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی، تهران، ایران.

*تهران، انتهای خیابان کارگر شمالی، سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، کدپستی: ۱۱۳۶۵-۳۴۸۶

پست الکترونیکی: sshafiei@aeoi.org.ir

چکیده

در این مقاله روش انتخاب بهینه‌ی زمان برای آنالیز طیف گامای نمونه‌های خاک مطالعه شده است. طیف‌سنجی گاما با استفاده از آشکارساز HPGe نوع p با بازده ۳۰٪ و تفکیک‌پذیری ۱/۷ keV (برای پیک ۱/۳۳ MeV کالت-۶۰) و بر پایه کمترین اکتیویته قابل آشکار انجام شده است. از نمونه‌های استاندارد IAEA-RGTh-1، IAEA-RGU-1 و IAEA-RGK-1 که در ظروف استوانه‌ای ریخته شده‌اند به عنوان نمونه استفاده شده است. اندازه‌گیری‌ها در ۱۲ مدت زمان مختلف از ۵ دقیقه تا ۳۶ ساعت انجام شده است. در هر اندازه‌گیری کمترین اکتیویته آشکار شده برای دخترهای ^{232}Th ، ^{238}U و ^{40}K محاسبه شد. زمان بهینه طوری انتخاب شد که در آن تغییرات کمترین اکتیویته آشکار شده نسبت به زمان کمتر از ۰/۰۵ Bq/kg·h باشد.

کلیدواژگان: طیف‌سنجی اشعه گاما، کمترین اکتیویته آشکار شده، زمان شمارش.

۱. مقدمه

نمونه‌های آنالیز زیاد است به‌منظور دست‌یابی به بیشترین اطلاعات در کمترین زمان ممکن، دانستن بهینه زمان شمارش و همچنین همبستگی بین کمترین اکتیویته آشکار شده و زمان شمارش، دارای اهمیت است [۵].

در سال ۲۰۰۹، بهینه زمان شمارش برای نمونه مایع حاوی رادیونوکلیدهای ^{60}Zn ، ^{60}Co ، ^{106}Ru ، ^{134}Cs و ^{133}Ba با استفاده از آشکارسازهای ژرمانیوم خالص با بازده ۱۵٪، ۲۳٪ و ۲۵٪ و تفکیک‌پذیری ۲، ۱/۹ و ۲/۱ در انرژی ۱۳۳۲ keV، اندازه‌گیری شد. نشان داده شد که اگر در یک زمان شمارش مشخص، کمترین اکتیویته آشکار شده برای یک نمونه با

مطالعه میزان اکتیویته اشعه گاما در مواد محیطی مانند آب و خاک برای تعیین میزان زمینه پرتوها و یا ارزیابی میزان آلودگی ناشی از فعالیت‌های انسانی انجام می‌شود. نوکلیدهایی که معمولاً به‌وسیله طیف‌سنجی گاما اندازه‌گیری می‌شوند ^{232}Th ، ^{238}U و ^{40}K هستند [۱]. اکتیویته ایزوتوپ‌های اورانیوم و همچنین ^{232}Th با استفاده از دخترهایشان اندازه‌گیری می‌شود. طیف‌سنجی محیطی به دلیل اینکه سطح اکتیویته در این نمونه‌ها خیلی پایین است، مشکل است. در این مورد حتی اگر از نظر آماری نتایج قابل قبولی بدست بیاید، زمان شمارش زیادی لازم است [۲-۴]. هنگامی که تعداد

۲. مواد و روش‌ها

در این مطالعه از آشکارساز coaxial HPGe p-Type که تفکیک‌پذیری انرژی و بازده آن برای پیک $1/33 \text{ MeV}$ کبالت-۶۰ به ترتیب برابر با $1/7 \text{ keV}$ و 30% است، برای طیف‌سنجی اشعه گاما استفاده شده است. نمونه‌های مورد آنالیز نمونه‌های خاک استاندارد IAEA-RGTh-1، IAEA-RGU-1 و IAEA-RGK-1 است که در ظرف‌های پلاستیکی استوانه‌ای شکل به ارتفاع ۶ سانتی‌متر و قطر ۷ سانتی‌متر ریخته شده‌اند. ارتفاع نمونه در داخل ظرف در حدود ۵/۵ سانتی‌متر است. درب ظرف با استفاده از پارافیلیم مهر و موم شده است. اکتیویته نمونه‌های ^{232}Th ، ^{238}U ، ^{235}U و ^{40}K در جدول ۱ آورده شده است.

جدول (۱): اکتیویته نمونه‌های استاندارد.

اکتیویته (Bq)	رادیونوکلید
۱۱۴۵/۹	^{232}Th
۱۷۲۶/۸	^{238}U
۷۹/۷	^{235}U
۵۴۰۸/۲	^{40}K

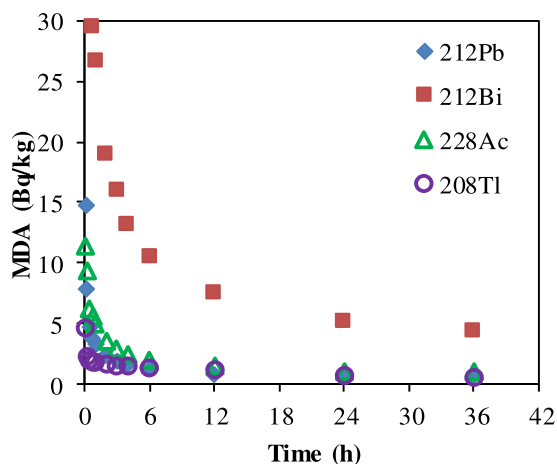
در جدول ۲ دخترهای ^{232}Th ، ^{238}U ، ^{235}U و رادیونوکلید ^{40}K همراه با انرژی اشعه گاما و شدت آن آورده شده است. نمونه‌ها در ۱۲ زمان شمارش مختلف (۵ دقیقه، ۱۰ دقیقه، ۳۰ دقیقه، ۴۵ دقیقه، ۱ ساعت، ۲ ساعت، ۳ ساعت، ۴ ساعت، ۶ ساعت، ۱۲ ساعت، ۲۴ ساعت و ۳۶ ساعت) شمارش شده است [۷]. کالیبراسیون انرژی و بازده با استفاده از طیف اشعه گاما که زمان شمارش آن ۳۶ ساعت است انجام شده و بقیه طیف‌ها با استفاده از این کالیبراسیون اندازه‌گیری شد. آنالیز طیف‌ها با استفاده نرم‌افزار Gamma Vision انجام شد. کمترین اکتیویته آشکارسازی شده از تبدیل حد آشکارسازی به اکتیویته به دست آمد. حد آشکارسازی از رابطه زیر محاسبه شد [۸].

اکتیویته مشخص اندازه‌گیری شود، می‌توان با استفاده از رابطه بین زمان شمارش و کمترین اکتیویته آشکار شده، به‌طور نسبی زمان شمارش بهینه را، برای نمونه‌ای با اکتیویته نامشخص را، به ازای مقدار از پیش تعیین شده کمترین اکتیویته آشکار شده برای آن، محاسبه کرد [۵].

در سال ۲۰۱۵، بهینه زمان شمارش در طیف‌سنجی گاما بر اساس تغییرات کمترین اکتیویته آشکار شده نسبت به زمان برای نمونه مایع حاوی رادیونوکلیدهای ^{214}Bi ، ^7Be ، ^{226}Ra ، ^{232}Th و ^{238}Ac و ^{40}K با استفاده از آشکارسازهای ژرمانیوم خالص نوع N با بازده 60% و نوع P با بازده 80% اندازه‌گیری شد [۶]. در سال ۲۰۱۷، زمان بهینه شمارش بر اساس کاهش خطای نسبی اکتیویته با استفاده از نمونه‌های استاندارد IAEA با اندازه‌گیری اکتیویته دخترهای ^{232}Th ، ^{238}U ، ^{235}U و رادیونوکلید ^{40}K در بازه‌های زمانی ۵ دقیقه تا ۷۲ ساعت اندازه‌گیری شد [۷]. تاکنون از نمونه‌های مایع برای تعیین بهینه زمان شمارش در طیف‌سنجی گاما استفاده شده است. با توجه به اینکه در طیف‌سنجی گامای نمونه‌های طبیعی، شرایط هر آزمایشگاه و سیستم آشکارسازی نقش مهمی ایفا می‌کند. لذا در این مقاله، زمان بهینه شمارش برای طیف‌سنجی گاما با استفاده از نمونه‌های طبیعی خاک برای یک آزمایشگاه خاص مطالعه شد. در این مقاله، زمان شمارش به صورت تابعی از کمترین اکتیویته آشکار شده برای سری ^{232}Th ، ^{238}U ، ^{235}U و رادیونوکلید ^{40}K با استفاده از نمونه‌های خاک استاندارد IAEA-RGTh-1، IAEA-RGU-1 و IAEA-RGK-1 مطالعه شده است. بهینه زمان شمارش با توجه به کاهش کمترین اکتیویته آشکار شده نسبت به زمان محاسبه شده است [۶]. با گذشت زمان کمترین اکتیویته آشکار شده به یک مقدار ثابت میل می‌کند، بنابراین مشتق آن نسبت به زمان به صفر میل می‌کند. زمان بهینه طوری انتخاب شد که مشتق کمترین اکتیویته آشکار شده کمتر از $0/05 \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ باشد [۶].

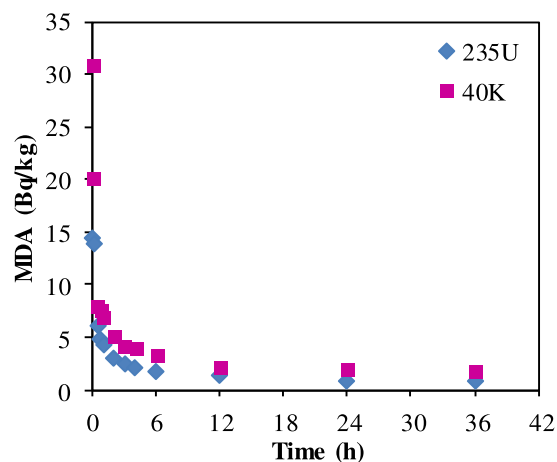
۳. نتایج

نتایج کمترین اکتیویته آشکار شده مربوط به سری ^{232}Th در انرژی‌های $238/63\text{ keV}$ ، $911/07\text{ keV}$ ، $727/17\text{ keV}$ ، $2614/47\text{ keV}$ که به ترتیب مربوط به رادیونوکلیدهای ^{212}Bi ، ^{228}Ac ، ^{212}Pb و ^{208}Tl می‌باشند در شکل ۱ نشان داده شده است.



شکل (۱): تغییرات کمترین اکتیویته آشکار شده بر حسب زمان شمارش برای رادیونوکلیدهای سری ^{232}Th .

در شکل ۲ نتایج کمترین اکتیویته آشکار شده مربوط به رادیونوکلید ^{235}U در انرژی $185/72\text{ keV}$ و رادیونوکلید ^{40}K در انرژی $1460/82\text{ keV}$ نشان داده شده است.



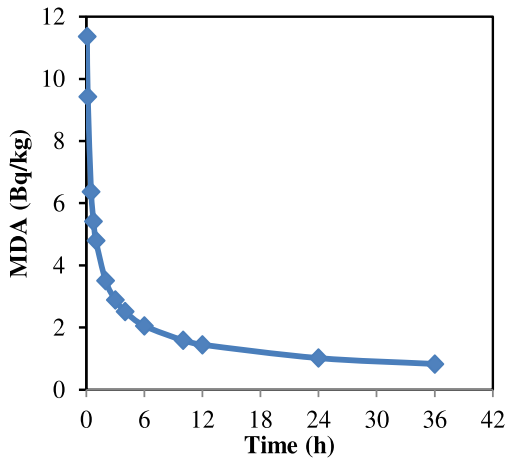
شکل (۲): تغییرات کمترین اکتیویته آشکار شده بر حسب زمان شمارش برای رادیونوکلیدهای ^{235}U و ^{40}K .

$$L_c = \frac{100}{\text{SENS}} \sqrt{2\text{BKG} + \frac{2500}{\text{SENS}^2} + \frac{50}{\text{SENS}}} \quad (1)$$

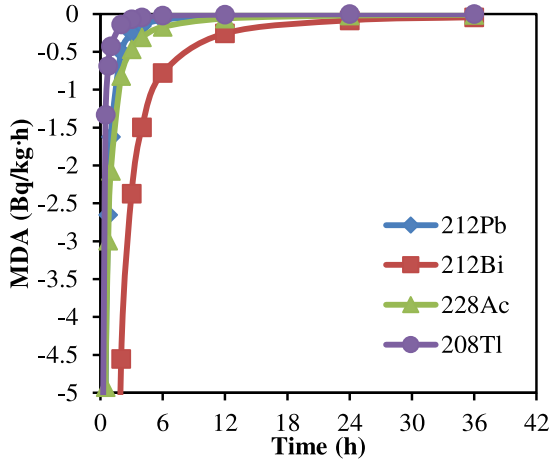
که در آن BKG زمینه و SENS حساسیت است که ۱۰٪ در نظر گرفته شده است. Live Time فاصله زمانی است که پس از پالس اول آشکارساز پالس دوم را می‌پذیرد.

جدول (۲): انرژی و شدت رادیونوکلیدهای ^{232}Th ، ^{238}U ، ^{235}U و ^{40}K [۸].

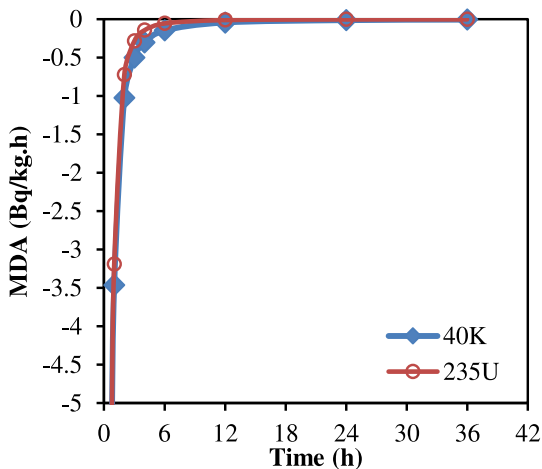
رادیونوکلید	انرژی (keV)	شدت (%)
^{40}K	۱۴۶۰/۸۲	۱۰/۴۴
^{232}Th Series		
^{228}Ac	۳۳۸/۴۰	۱۲/۰۱
	۹۱۱/۰۷	۲۹
	۹۶۴/۶۰	۵/۴۵۲
	۹۶۸/۹۰	۱۷/۴۶
^{212}Bi	۷۲۷/۱۷	۱۱/۸
	۱۶۲۰/۵۶	۱۲/۷۵
^{212}Pb	۲۳۸/۶۳	۴۳/۱
	۳۰۰/۰۹	۳/۲۷
^{208}Tl	۵۱۰/۷۲	۲۲/۵
	۵۸۳/۱۴	۸۶
	۸۶۰/۴۷	۱۲
	۲۶۱۴/۴۷	۹۹/۷
^{235}U Series		
^{235}U	۱۸۵/۷۲	۵۴
	۱۴۳/۷۶	۱۰/۵
^{238}U Series		
^{226}Ra	۱۸۵/۹۹	۳/۲۸
^{214}Pb	۳۵۱/۹۹	۳۷/۱
	۲۹۵/۲۲	۱۹/۲
^{214}Bi	۶۰۹/۳۲	۴۶/۰۹
	۱۷۶۴/۵۱	۱۵/۹۲



شکل (۴): تابع برازش شده بر روی داده‌های کمترین اکتیویته آشکار شده رادیونوکلید ^{228}Ac .

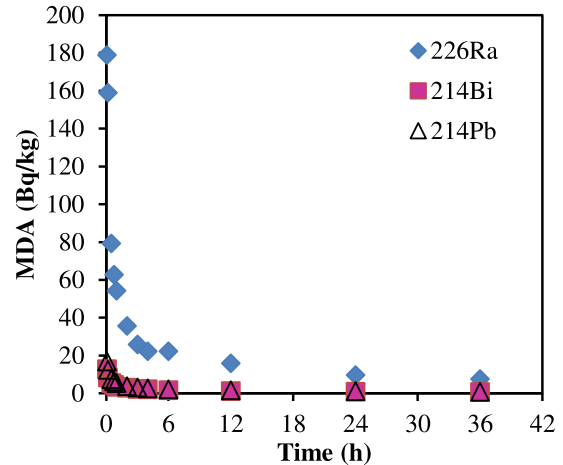


شکل (۵): مشتق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده رادیونوکلیدهای سری ^{232}Th .



شکل (۶): مشتق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده رادیو نوکلیدهای ^{40}K و ^{235}U .

نتایج کمترین اکتیویته آشکار شده مربوط به سری ^{238}U در انرژی‌های $186/21 \text{ keV}$ ، $351/93 \text{ keV}$ و $609/31 \text{ keV}$ که به ترتیب مربوط به رادیونوکلیدهای ^{226}Ra ، ^{214}Pb و ^{214}Bi می‌باشند در شکل ۳ نشان داده شده است.



شکل (۳): تغییرات کمترین اکتیویته آشکار شده بر حسب زمان شمارش برای رادیونوکلیدهای ^{238}U .

با استفاده از نرم‌افزارهای برازش می‌توان تابعی بر داده‌های فوق برازش کرد. تابعی که برای برازش داده استفاده شده تابع مقارن سیگموئیدال است.

$$MDA = d + \frac{a-d}{1 + \left(\frac{t}{c}\right)^b} \quad (2)$$

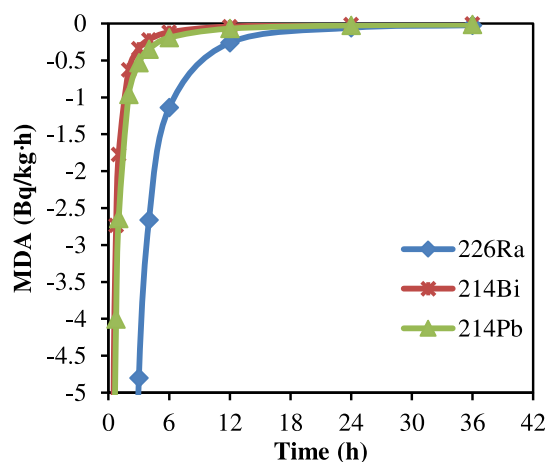
که در آن a ، b ، c و d اعداد ثابت هستند. برای نمونه تابعی که بر روی داده‌های ^{228}Ac برازش شده است در شکل ۴ نشان داده شده است.

با مشتق‌گیری از رابطه MDA و رسم نمودار آن بر حسب زمان، بهینه شمارش به دست می‌آید. مشتق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده برای دخترهای ^{232}Th در شکل ۵ نشان داده شده است. شکل ۶ مشتق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده برای رادیونوکلیدهای ^{235}U و ^{40}K را نشان می‌دهد.

با توجه به جدول ۳ مشاهده می‌شود که بهینه زمان شمارش برای اندازه‌گیری اکتیویته رادیونوکلیدهای طبیعی مختلف متفاوت است. برای اندازه‌گیری اکتیویته ^{232}Th ، ۱۴ ساعت زمان شمارش کافی می‌باشد. در این زمان می‌توان اکتیویته ^{232}Th را با استفاده از دخترهایش، ^{228}Ac ، ^{214}Pb و ^{208}Tl ، محاسبه کرد. در صورتی که زمان کافی برای شمارش نمونه در اختیار نباشد می‌توان در مدت زمان ۸ ساعت اکتیویته ^{232}Th را با استفاده از دخترهایش، ^{214}Pb و ^{208}Tl نیز محاسبه کرد. بهینه زمان شمارش برای اندازه‌گیری اکتیویته ^{235}U ، ۶ ساعت است. اکتیویته ^{238}U را می‌توان با دخترهایش، ^{214}Bi و ^{214}Pb در مدت زمان شمارش ۱۴ ساعت اندازه‌گیری کرد. ولی به دلیل تداخل بین پیک رادیونوکلید ^{226}Ra در انرژی ۱۸۵/۷۲ keV با پیک رادیونوکلید ^{235}U در انرژی ۱۸۵/۹۹ keV زمان شمارش بیشتری برای این رادیونوکلید لازم است تا کمترین اکتیویته آشکار شده به کمتر از $-۰/۰۵ \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ برسد.

کمترین اکتیویته آشکار شده برای رادیونوکلید ^{226}Ra پس از ۱۸ ساعت شمارش $-۰/۱ \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ است. پس از گذشت ۲۴ ساعت از زمان شمارش کمترین اکتیویته آشکار شده به کمتر از $-۰/۰۵ \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ می‌رسد. بنابراین هنگامی که اکتیویته رادیونوکلید ^{226}Ra مد نظر است باید زمان شمارش نمونه ۲۴ ساعت در نظر گرفته شود. برای اندازه‌گیری اکتیویته ^{40}K ، ۱۲ ساعت زمان شمارش کافی می‌باشد. در مرجع ۳ زمان بهینه شمارش برای طیف‌سنجی گاما، تقریباً ۱۴ ساعت گزارش شده است که با نتایج به دست آمده در این تحقیق هم‌خوانی دارد. در مرجع ۴ نیز زمان بهینه شمارش برای طیف‌سنجی گاما، ۱۵ ساعت گزارش شده است که با نتایج به دست آمده در این مقاله هم‌خوانی دارد. تنها زمان محاسبه شده برای شمارش رادیونوکلید ^{226}Ra هم‌خوانی ندارد که آن هم به دلیل بازده آشکارسازی کمتر آشکارساز مورد استفاده در این تحقیق است.

مشق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده برای دخترهای ^{238}U در شکل ۷ نشان داده شده است.



شکل (۷): مشق زمانی کمترین اکتیویته آشکار شده رادیونوکلیدهای سری ^{238}U .

زمان بهینه طوری انتخاب شد که مشق کمترین اکتیویته آشکار شده کمتر از $-۰/۰۵ \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ باشد. در جدول ۳ زمان لازم برای شمارش نمونه خاک هنگامی که مشق کمترین اکتیویته آشکار شده به کمتر از $-۰/۰۵ \text{ Bq/kg}\cdot\text{h}$ برسد، برای هر یک از رادیونوکلیدها آورده شده است.

جدول (۳): زمان بهینه شمارش نمونه خاک برای رادیونوکلیدهای طبیعی.

رادیونوکلید	زمان شمارش (h)	انرژی (keV)
^{40}K	۱۲	۱۴۶۰/۸۲
^{232}Th Series		
^{228}Ac	۱۴	۹۱۱/۰۷
^{214}Bi	۳۲	۷۲۷/۱۷
^{214}Pb	۸	۲۳۸/۶۳
^{208}Tl	۴	۲۶۱۴/۴۷
^{235}U Series		
^{235}U	۶	۱۸۵/۷۲
^{238}U Series		
^{226}Ra	۲۴	۱۸۵/۹۹
^{214}Pb	۱۴	۳۵۱/۹۹
^{214}Bi	۱۲	۶۰۹/۳۲

از تابع برازش شده زمان بهینه شمارش محاسبه شد. زمان بهینه شمارش برای اندازه‌گیری اکتیویته رادیونوکلیدهای ^{232}Th و ^{238}U بدون در نظر گرفتن ^{226}Ra ، در نمونه خاک با استفاده از آشکارساز نوع p، ۳۰٪، ۱۴ ساعت محاسبه شد. این زمان برای رادیونوکلید ^{235}U ، ۶ ساعت و برای رادیونوکلید ^{40}K ، ۱۲ ساعت محاسبه شد. در صورتی که اکتیویته ^{226}Ra برای شمارش مهم باشد باید زمان شمارش نمونه خاک را ۲۴ ساعت در نظر گرفت. در غیر این صورت بطور کلی ۱۴ ساعت زمان کافی برای محاسبه اکتیویته رادیونوکلیدهای طبیعی خاک است. از نتیجه ارائه شده در جدول ۳ می‌توان برای محاسبه زمان بهینه شمارش برای اندازه‌گیری‌های خاص، مانند اندازه‌گیری پتاسیم خاک، تعیین نسبت ^{238}U به ^{235}U ، نیز استفاده کرد.

در مرجع ۶ زمان لازم برای شمارش رادیونوکلیدهای سری ^{232}Th ، ^{238}U و ^{235}U و رادیونوکلید ^{40}K ، ۲۴ ساعت گزارش شده است که با نتایج ارائه شده در این مقاله هم‌خوانی دارد.

۴. نتیجه‌گیری

در این تحقیق، با استفاده از رابطه بین کمترین اکتیویته آشکار شده و زمان شمارش، زمان بهینه برای شمارش نمونه‌های محیطی خاک محاسبه شد. نمونه‌های خاک استاندارد IAEA-RGK-1 و IAEA-RGU-1، IAEA-RGTh-1 در زمان‌های مختلف شمارش شد و کمترین اکتیویته قابل آشکارسازی محاسبه شد. سپس منحنی برازش بر روی داده‌های کمترین اکتیویته آشکار شده رسم شد و با مشتق‌گیری

۵. مراجع

- [1] R. Gordon. Practical Gamma-ray Spectrometry. John Wiley & Sons Ltd, West Sussex, (2008).
- [2] L.A. Currie. Quantifying Uncertainty in Nuclear Analytical Measurements. International Atomic Energy Agency, Vienna, (2004).
- [3] M.F. L'Annunziata. Handbook of radioactivity analysis. Academic press, Oxford, (2012).
- [4] UNSCEAR. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York, (2000).
- [5] M. Nisti, A. Santos, B. Pecequilo, M. Máduar, M. Alencar, S. Moreira and N. chemistry. Fast methodology for time counting optimization in gamma-ray spectrometry based on preset minimum detectable amounts. Journal of radioanalytical, 281 (2009) 283–286.
- [6] R. Shweikani and M. Hasan. Determination of the optimal measurement counting time and detection limit for gamma-ray spectrometry analysis. Accreditation Quality Assurance, 20 (2015) 501–504.
- [7] G.S.C. Joel, S. Penabei, N.M. Maurice, C. Gregoire, N.M.E. Jilbert, T.S. Didier and S. David. Optimal measurement counting time and statistics in gamma spectrometry analysis: The time balance. 6th International Symposium on High Energy Gamma-Ray Astronomy, Heidelberg, Germany, (2016).
- [8] ORTEC, GammaVision-32: Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator, Tennessee, United States, (1999).