

CENTRAL INSTITUTE OF PHYSICS
INSTITUTE FOR PHYSICS AND NUCLEAR ENGINEERING
Bucharest, P.O.Box MG-6, ROMANIA

IFIN - RB - 5 - 1981

Iulie

METODA PENTRU ANALIZA SPECTROMETRICA CU
DETECTOR DE GE(LI) A PROBELOR DE TRASORI
RADIOACTIVI CU RASINI SCHIMBATOARE
DE IONI

S.P.STANESCU, O.M.FARCASIU

Abstract : The radioactive tracers methods presently in use in hidrology are based on "in situ" low resolution gamma-ray spectrometry measurements. However sometimes the information obtained in this way is not conclusive and the need for better spectrometry systems is evident. Therefore the authors present a method for measuring in laboratory conditions samples of radioactive tracers collected "in situ" and concentrated on ions exchange resins, using low level gamma-ray spectrometry with Ge(Li) detector. The advantages of this method in comparison with the methods based on Na(Tl) detectors are also presented in the paper.

1. INTRODUCERE

Măsurarea distribuției spațiale și temporale a radioactivității apelor marcate cu trăsori radioactivi se efectuează în mod uzual prin măsurători de teren cu detectori Geiger-Muller sau cu sonde de scintilație cu cristal de NaI(Tl), acești detectori asigurând fiere eficacitate de detecție mare, fie o rezoluție energetică suficientă pentru decelarea în spectrul radiațiilor gama a unor linii separate în spectru în cazul marcării simultan cu mai mulți trăsori.

Dezvoltarea tehnicii de măsurare a radioactivității namă cu detectori cu semiconductori cu cristal de Ge(Li) în instalații de fond scăzut, cît și utilizarea rășinilor schimbătoare de ioni pentru concentrarea izotopilor radioactivi permit utilizarea lor în măsurătorile de trăsori radioactivi, cu următoarele avantaje:

- se pot verifica rezultatele obținute în măsurătorile de teren;
- se mărește șansa de reușită a marcării cu trăsori radioactivi asigurând o rezervă de date în cazul unor defecțiuni ale aparatului de teren;
- se pot decela fluctuațiile radioactivității datorate marcării cu trăsori radioactivi față de cele datorate izotopilor radioactivi naturali (ex. U, Th și descendenți în ape termale);
- se pot efectua marcări simultan cu mai mulți izotopi radioactivi care emit radiații gama avînd energii apropiate ca valoare; etc.

Scopul prezentei lucrări este elaborarea unei metodici de lucru în măsurătorile de spectrometrie gama cu detector de

Ge(Li) de probe de trăsori radioactivi colectate pe rășini schimbătoare de ioni.

2. PREPARAREA PROBELOR

Probele de rășină schimbătoare de ioni constau din aproximativ 150 cm^3 rășină tip Vion, t introdusă în săculețe de tifon marcate lizibil cu vopsea pentru identificare. Colectarea izotopilor radioactivi se efectuează prin introducerea acestor săculeți cu rășină în lichidul marcat pe un interval de timp care depinde de: concentrația estimată pentru izotopul de marcare, timpul de tranzit al lichidului prin punctul de observație, limita de detecție a sistemului spectrometric cu detector de Ge(Li) pentru izotopul respectiv, etc. La terminarea colectării fiecare săculeț se introduce în câte o pungă de plastic care se leagă etanș entru evitarea contaminării între probe în timpul transportului. Acest lucru este cu atât mai important cînd se utilizează izotopi radioactivi volatili ca ^{131}I și ^{82}Br . Odată transportate în laborator, probele trebuie transferate în alte pungi din plastic etanș legate. Fiind probe de activitate mică, măsurarea lor se face plasîndu-le direct pe detector.

Deoarece măsurătorile de spectrometrie gama sînt măsurători relative, este necesară etalonarea instalației cu ajutorul unor probe etalon. Aceste probe trebuie să satisfacă următoarele cerințe:

- să aibe conținutul, matricii și forma asemănătoare cu a probelor care se măsoară;
- să conțină izotopi radioactivi emițători gama a căror activitate să fie cunoscută, să emită radiații gama identice sau în același domeniu de energie cu probele

de măsurat:

- timpul de înjumătățire al izotopilor radioactivi conținuți, spre deosebire de cei utilizați la marcarea, să fie suficient de mare (de ordinul anilor, dacă este posibil);
- izotopii radioactivi să fie distribuiți uniform în matrice;
- activitatea izotopilor radioactivi conținuți să fie în domeniul 10-100 nCi (37-370 Bq).

În cazul în care se folosesc ca izotopi de marcarea ^{198}Au (411,8 keV), ^{131}I (364,5 keV), ^{82}Br (554,3 keV) considerăm că cel mai bun etalon se poate realiza utilizând o sursă ^{131}I Mock, cu ajutorul acesteia putând etalona spectrometrul pentru domeniul 200-700 keV (Fig. 1).

3. INSTALATIA DE MASURARE

Instalația de măsurare a probelor de trăsori radioactivi colectați pe rășină schimbătoare de ioni cuprinde următoarele: detectorul de radiații gama cu cristal de Ge(Li), preamplificatorul de sarcină, sursa de înaltă tensiune, amplificatorul de impulsuri, analizatorul multicanal, periferice pentru scos date, încălț de fond redus.

Detectorul cu cristal semiconductor de Ge(Li) este un detector care asigură o rezoluție energetică suficientă pentru separarea liniilor gama în spectre complexe, în schimb are o eficiență mai mică decât alte tipuri de detectori gama. În măsurătorile de probe de trăsori radioactivi, deoarece se urmărește obținerea unor limite de detecție cât mai bune, se recomandă:

- utilizarea unor detectori cu o rezoluție energetică cât mai bună (limita de detecție variază proporțional cu radicalul rezoluției energetice);
- utilizarea unor detectori de volum mare pentru a asigura o eficacitate mare;
- plasarea probelor într-o geometrie cât mai apropiată de detector;
- utilizarea unor incinte de fond redus în care să fie plasat capul detectorului pentru a obține un fond gamă constant și cât mai mic.

Analizorul multicanal permite înregistrarea, vizualizarea și cu ajutorul unui periferic, scoaterea informațiilor privind natura și cantitatea izotopilor radioactivi prezenți în probe. Este necesară utilizarea unui analizor multicanal cu cel puțin 1026 canale pentru măsurarea probelor conținând mai mulți trăsori radioactivi.

Incinta de fond redus asigură un fond gamă mic în jurul capului detectorului prin folosirea unor materiale de ecranare corespunzătoare și trebuie în același timp să aibe un volum suficient de mare pentru cazul măsurării simultane a mai multor probe.

În măsurătorile efectuate am utilizat următorul sistem spectrometric gamă cu detector Ge(Li):

- detectorul de Ge(Li) Canberra model 7229 de eficacitate relativă 7% și rezoluție 2,5 keV pentru radiația gamă de 1332,5 keV emisă de ^{60}Co ;
- preamplificatorul de sarcină Canberra model 970;
- sursa de înaltă tensiune Canberra model 3002;
- analizorul multicanal Canberra model 8184 cu 4094 canale și microprocesor 8008 Intel;

- inscriptorul XY Hewlett Packard model 7004 B;
- incinta de fond redus tip IFR (dimensiunile interioare ale incintei 30x30x30 cm).

In figura 2 sînt prezentate spectrele fondului gama care se obțin cu detectorul Ge(Li) în și în afara incintei de fond redus pentru un timp de măsurare de 60.000 s. Pentru domeniul ales de măsurare 50 - 2850 keV se obține o reducere a fondului sub ecran de aproximativ 129 ori, valoarea fondului sub ecran fiind aproximativ 0,8 imp./s. Se observă că atenuarea cea mai mare este la valori mici ale energiei radiațiilor gama: de 249 ori la 100 keV față de 19 ori la energia de 2400 keV.

4. MASURAREA PROBELOR SI INTERPRETAREA REZULTATELOR

Pentru măsurarea probei or de trăsori radioactivi colecționați pe rășină schimbătoare de ioni este necesară calibrarea în eficacitate a sistemului spectrometric cu ajutorul unei probe etalon poziționată în geometria de măsurare a probelor. Se efectuează una sau mai multe măsurători asupra etalonului pe un interval de timp mare pentru a avea erori statistice ale arilor fotopicurilor cît mai mici (sub 1%). Cu ajutorul relației:

$$\epsilon(E_{\gamma}) = \frac{A(E_{\gamma})}{t \cdot \Delta \cdot I(E_{\gamma})} \quad (1)$$

unde: $\epsilon(E_{\gamma})$ = eficacitatea de detecție a radiației gama de energie E (cuprinde în afara eficacității intrinseci de fotopic și factorii geometriei de detecție a probelor);

$A(E_{\gamma})$ = aria netă a fotopicului corespunzător radiației gama de energie E;

t = timpul de măsurare a etalonului;

Λ = activitatea izotopului radioactiv care emite radiația gama cu energie E ;

$I(E_\gamma)$ = intensitatea absolută a liniei de energie E ; se calculează valorile eficacității de detecție pentru radiațiile gama emise de etalon în domeniul de interes.

Pentru energii mai mari de 200 keV, dependența eficacității detectorului de Ge(Li) de energia radiațiilor gama se poate pune sub forma relației următoare:

$$\epsilon(E) = aE^{-b} \quad (2)$$

unde a și b sînt două constante care depind de volumul activ al detectorului și geometria de măsurare a probelor.

Cu ajutorul valorilor măsurate pentru eficacitatea de detecție folosind proba etalon, se determină parametrii a și b prin metoda celor mai mici pătrate:

$$\log a = \frac{(\sum \log \epsilon_i)(\sum \log E_i^2) - (\sum \log E_i \log \epsilon_i)(\sum \log E_i)}{N \cdot \sum \log E_i^2 - (\sum \log E_i)^2} \quad (3)$$

$$b = \frac{N \sum \log E_i \log \epsilon_i - \sum (\log E_i)(\log \epsilon_i)}{N \cdot \sum \log E_i^2 - (\sum \log E_i)^2} \quad (4)$$

unde N este numărul de linii gama ale probei etalon în domeniul de calibrare. Pentru orice radiație gama emisă de probe în domeniul de energie al etalonului, eficacitatea de detecție se va calcula cu ajutorul relației (2).

Măsurarea probelor se va efectua în condiții în condiții în alegerea cărora intervin doi parametri importanți și care nu sînt dependenți: limita de detecție a sistemului spectrometric și timpul de măsurare.

Limita de detecție a sistemului spectrometric este activitatea minimă care se poate măsura cu o anumită precizie, pentru un timp de măsurare dat și un anumit nivel de încredere.

În cazul activităților mici, relația de calcul a limitei de detecție este următoarea:

$$L.D. = \frac{k \cdot I(E_Y) \cdot \sqrt{F(E_Y)}}{e_{rel} \cdot \epsilon(E_Y) \cdot t} \quad (5)$$

unde: L.D. = limita de detecție (Bq);

k = factorul de încredere (k=1, 2 sau 3 pentru nivelele de încredere de 68%, 95% sau 99%);

$F(E_Y)$ = numărul de impulsuri corespunzător fondului pe zona corespunzătoare foticului de energie E;

e_{rel} = eroarea statistică relativă asupra ariei nete a foticului;

t = timpul de măsurare a probei.

Parametrii k, $I(E_Y)$ și e_{rel} au valori fixe care nu se pot modifica.

Fondul de radiații gama se poate reduce prin utilizarea unei ecranări corespunzătoare. Astfel, de exemplu, folosind incinta I.F.R. se obține o limită de detecție de 6 - 7 ori mai mică pentru măsurarea izotopilor ^{82}Br și ^{131}I (fondul se reduce în domeniul 300 - 550 keV de 50 ori - fig. 2).

Eficacitatea de detecție se poate mări prin folosirea unei geometrii de măsurare a probelor cât mai apropiată de capul detectorului.

Timpul de măsurare influențează în mod considerabil limita de detecție. Alegerea valorii optime - acestuia depinde de

numărul probelor de măsurat și de timpul de înjumătățire a izotopului de marcăre.

Calculul timpului de măsurare optim pentru probe cu timp de înjumătățire comparabil ca valoare cu timpul de măsurare se poate efectua cu ajutorul relației (1).

$$t_{m\ddot{a}s} = \frac{\ln \frac{N}{N-1}}{\lambda} \quad (6)$$

unde: N = numărul probelor de măsurat

λ = constanta de dezintegrare a izotopului radioactiv având timpul de înjumătățire cel mai mic, conținut în probe;

În unele cazuri, o modalitate de estimare a timpului de măsurare se poate face prin măsurarea simultană a tuturor probelor colectate (sau cel puțin cîte încap în încălta de măsurare) și se alege ca timp de măsurare timpul minim pentru detectarea traserului respectiv.

Odată efectuate măsurătorile asupra probelor, măsurători ce trebuie să conțină cel puțin calculul ariei nete a fotopicului corespunzător radiației gama cea mai intensă și eroarea statistică aferentă acestuia, se calculează pentru fiecare probă activitatea la momentul măsurării, cu ajutorul relației:

$$A = \frac{A(E_\gamma)}{e(E_\gamma) \cdot I(E_\gamma) \cdot t} \quad (7)$$

unde $A(E_\gamma)$ este aria netă a fotopicului corespunzător radiației gama emise de traser.

La calculul erorii de care este afectată valoarea calculată a activității probel (e_{rel}) se va lua în considerare, în afara erorii statistice a ariei fotopicului (e_A) și erorile de calibrare în eficacitate a sistemului spectrometric (e_{ef}), eroarea de

reproducere a poziției probei (e_p).

$$e_{rel} = \sqrt{e_A^2 + e_{ef}^2 + e_p^2} \quad (8)$$

De menționat faptul că ponderea cea mai mare o au erorile statistice asupra ariei foticulului, deoarece se lucrează, în general, la limita de detecție a instalației (erori statistice de ordinul zecilor de procente).

5. REZULTATE EXPERIMENTALE

În cazul concret al utilizării ca trăsori radioactivi a ^{82}Br , ^{131}I și ^{198}Au propunem utilizarea ca etalon a unei probe de rășină schimbătoare de ioni uniform contaminată cu ^{131}I Mock, deoarece:

- permite calibrarea cu mai multe (cinci) linii gama în domeniul 200 - 700 keV (fig. 1);
- izotopii radioactivi conținuți au un timp de înjumătățire mare (^{133}Ba are $T_{1/2} = 10,6$ ani iar ^{137}Cs are $T_{1/2} = 30,0$ ani).

În cadrul acestei lucrări am preparat un etalon care conține: $75,5 \pm 1,4$ nCi de ^{133}Ba și $8,87 \pm 0,18$ nCi de ^{137}Cs (la data de 1.06.1981).

Un asemenea etalon emite următoarele linii gama în domeniul de interes:

<u>Izotopul</u>	<u>Energia radiației gama(keV)</u>	<u>Intensitatea (%)</u>
¹³³ Ba /2/	276,4	7,15
	302,9	18,32
	356,0	62,00
	383,8	8,93
¹³⁷ Ca /3/	661,6	84,62

Analizorul de care am lucrat tip Canberra 8180 este dotat cu un microprocesor Intel 8008 și are implementat un program de calcul, printre altele, a ariei nete și erorii statistice aferente.

Calculul ariei nete a unui pic se face după relația

(4):

$$A = T - \frac{N(C_1 + C_2)}{2} \quad (9)$$

unde: T = aria integrală a zonei indexate pentru pic;

n = numărul de canale al zonei indexate;

c₁ = numărul de impulsuri în primul canal al zonei indexate;

c₂ = numărul de impulsuri în ultimul canal al zonei indexate;

Iar eroarea statistică:

$$e_A(\%) = \frac{165 \sqrt{T + \frac{N^2}{2} (C_1 + C_2)}}{A} \quad (10)$$

corespunde unui nivel de încredere de 90%.

Am măsurat proba etalon 60000s poziționată de detector (geometria de măsurare a probelor cu trăsori) și am obținut prin metoda celor mai mici pătrate, curba de eficacitate următoare:

$$\epsilon = 3,622 E^{-1,0416} \quad (11)$$

cu ajutorul căreia am calculat valorile eficacității de detecție

pentru ^{131}I și ^{82}Br : (364,5 keV) = 0,0027 și (554,3 keV) = 0,0050. Am efectuat mai multe măsurători asupra etalonului pus pe detector în diferite poziții și am obținut o abatere standard de 2,4% (incluzând eroarea statistică de măsurare a ariei foticului și nereproductibilitatea poziției) valoarea pe care o considerăm satisfăcătoare.

În figurile 3, 4, 5 și 6 prezentăm spectrele obținute pentru o probă care conține ^{131}I măsurată pe intervale diferite de timp. Se observă influența pe care o are timpul de măsurare asupra limitei de detecție la măsurarea probelor. În cazul probei prezentate cu activitatea de aproximativ 0,7 Bq (19 pCi) picul radiației gama de 364,5 keV se observă că apare clar abia după 10000 s de măsurare.

6. CONCLUZII

Utilizarea spectrometriei gama de fond redus cu detectori de Ge(Li) la măsurarea în laborator a probelor de trăsori radioactivi colectați pe rășină schimbătoare de ioni asigură interpretarea operațiilor de măsurare și posibilitatea marcării simultane cu mai mulți trăsori care emit radiații gama în domenii apropiate. Măsurătorile necesită prepararea unor probe etalon adecvate care să conțină izotopi radioactivi de viață lungă distribuiți uniform în masa probei etalon.

Condițiile de măsurare care se aplică sînt cele impuse probelor de mediu ambiant iar la calculul timpului de măsurare se poate aplica o relație utilizată la analiza prin activare a probelor cu timp de înjumătățire mic.

REFERINTE BIBLIOGRAFICE

- /1/ A.Ernandez, D.Rubio, Preprint O.I.I.a.I. Dubna
18 - 80 - 337 (1, 80)
- /2/ B.Chauvenet, J.Morel and J.Legrand, Report
ICRM - S - 6 (1980)
- /3/ G.Erdtman, W.Soyka, JUL - 1003 - AC
(sept. 1973)
- /4/ Canberra Model 8180 P/Q1&11 User's Manual.





