

ΕΠΙΔΡΑΣΗ ΤΗΣ ΓΕΩΜΕΤΡΙΑΣ ΤΟΥ ΔΕΙΓΜΑΤΟΣ ΚΑΤΑ ΤΗ γ-ΦΑΣΜΑΤΟΣΚΟΠΙΚΗ ΑΝΑΛΥΣΗ ΧΩΜΑΤΟΣ ΓΙΑ ΤΟΝ ΠΡΟΣΔΙΟΡΙΣΜΟ ΤΟΥ ^{210}Pb

Δ.Ε.Χαβιάρας, Μ.Ι.Σάββα, Δ.Ι.Καράγγελος, Μ.Ι.Αναγνωστάκης
Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο
Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας
Ηρώων Πολυτεχνείου 9, 15780, Ζωγράφου
e-mail: msavva@nuclear.ntua.gr

Περίληψη

Στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ πραγματοποιούνται συστηματικά μετρήσεις της συγκέντρωσης φυσικών και τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων στο έδαφος. Σε αυτό το πλαίσιο μελετάται και η συγκέντρωση του ισοτόπου ^{210}Pb στο χώμα, η κατά βάθος κατανομή του οποίου παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον, καθώς – εκτός των άλλων – μπορεί να χρησιμοποιηθεί και στη μελέτη της μεταφοράς του επιφανειακού χώματος που συνδέεται με φαινόμενα διάβρωσης του εδάφους και ιζηματογένεσης.

Ο προσδιορισμός του ^{210}Pb σε δείγματα εδάφους με γ-φασματοσκοπικές μεθόδους πραγματοποιείται μέσω των φωτονίων χαμηλής ενέργειας (46.52 keV) που εκπέμπει και παρουσιάζει δυσκολίες, λόγω της ισχυρής αυτοαπορρόφησης των φωτονίων αυτών, ειδικά σε δείγματα μεγάλου όγκου. Επιπλέον, η ύπαρξη στο δείγμα άλλων ραδιενεργών ισοτόπων, τόσο φυσικών (π.χ. της σειράς του ^{238}U , του ^{232}Th και του ^{40}K) όσο και τεχνητών (π.χ. ^{137}Cs), οδηγεί στην αύξηση του συνεχούς υποστρώματος στην ενεργειακή περιοχή ανίχνευσης των φωτονίων του ^{210}Pb , με συνακόλουθη αύξηση, τόσο του κατώτερου επιπέδου ανίχνευσης του ισοτόπου, όσο και της αβεβαιότητας κατά τον ποσοτικό προσδιορισμό του. Τέλος, ένα άλλο θέμα που πρέπει να λαμβάνεται υπόψη κατά τη μελέτη της κατά βάθος κατανομής του ^{210}Pb είναι η κατά το δυνατόν μείωση του απαιτούμενου όγκου χώματος, προς διευκόλυνση της διαδικασίας δειγματοληψίας.

Στην παρούσα εργασία εξετάζεται η δυνατότητα πραγματοποίησης αναλύσεων εδάφους για τον προσδιορισμό ^{210}Pb , χρησιμοποιώντας μικρού όγκου δείγματα. Μελετήθηκαν μία σειρά από διαφορετικές κυλινδρικές γεωμετρίες δείγματος όγκου ($10 - 280 \text{ cm}^3$), ενώ οι αναλύσεις πραγματοποιήθηκαν σε δύο από τα ανιχνευτικά συστήματα που διατίθενται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ: (i) Low Energy Germanium (LEGe) και (ii) Extended Range Germanium (XtRa), το οποίο διαθέτει σύστημα Compton Suppression για μείωση του συνεχούς υποστρώματος. Η σύγκριση των διαφορετικών γεωμετριών πραγματοποιήθηκε τόσο πειραματικά, με τη μέτρηση τυπικών δειγμάτων τα οποία παρασκευάστηκαν, όσο και με χρήση προσομοιώσεων Monte Carlo. Οι διάφορες γεωμετρίες αξιολογήθηκαν με μία σειρά από κριτήρια, με σκοπό την επιλογή της γεωμετρίας εκείνης που παρέχει τα πλέον ικανοποιητικά αποτελέσματα σε όρους: ρυθμού καταμέτρησης, αβεβαιότητας μέτρησης, κατώτερου ορίου ανίχνευσης, απόδοσης, αυτοαπορρόφησης και όγκου δείγματος.

Λέξεις κλειδιά: γ-φασματοσκοπία, ^{210}Pb , αβεβαιότητα μέτρησης

Δ.Ε.Χαβιάρας, Μ.Ι.Σάββα, Δ.Ι.Καράγγελος, Μ.Ι.Αναγνωστάκης, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο
Επίδραση της γεωμετρίας του δείγματος κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση χώματος για τον προσδιορισμό του ^{210}Pb

Abstract

The Nuclear Engineering Laboratory of NTUA systematically conducts measurements for the determination of natural and artificial radionuclides in soil. Lead-210 is one of the isotopes studied, the soil depth profile of which is of particular interest, since - among other things - it can be used to study the transport of surface soil associated with erosion and sedimentation.

The quantification of ^{210}Pb in soil samples is performed using gamma spectroscopic methods. The low energy gamma photons emitted by the isotope (46.52 keV) present practical difficulties, as the phenomenon of self-absorption is strongly present, especially in large volume samples. In addition, a sample may contain other radioactive isotopes, both naturally occurring (e.g. radionuclides of the ^{238}U and ^{232}Th series and ^{40}K) as well as artificial ones (e.g. ^{137}Cs). This leads to an increase of the background continuum, which subsequently raises the Minimum Detectable Activity. Another issue that should be taken into account when studying the depth profile of ^{210}Pb , is the reduction of the required soil volume, to facilitate the sampling process.

This work examines the feasibility of using small volume samples for the quantification of ^{210}Pb in soil. Different cylindrical volume geometries (10 – 280 cm³) were examined, and analyses were conducted on two detectors: (i) Low Energy Germanium (LEGe) and (ii) Extended Range Germanium (XtRa), which has been equipped with a Compton Suppression System. The comparison of the various geometries was performed both experimentally, by analyzing typical samples, as well as by using Monte-Carlo simulation techniques. The geometries were evaluated by qualitative and quantitative criteria, in order to select the one which provides the most satisfactory results in terms of: count rate, measurement uncertainty, Minimum Detectable Activity, efficiency, self-absorption and volume.

Keywords: gamma spectroscopy, ^{210}Pb , measurement uncertainty

1. Εισαγωγή

Ο ^{210}Pb είναι ένα φυσικό ραδιενεργό ισότοπο, θυγατρικό της σειράς του ^{238}U , το οποίο παράγεται τόσο μέσα στο έδαφος, όσο και στον αέρα, κατά τη διάσπαση των θυγατρικών του ραδιενεργού αερίου ραδονίου (^{222}Rn) το οποίο διαφεύγει από το έδαφος. Ο παραγόμενος στον αέρα ^{210}Pb αποτίθεται τελικά στην επιφάνεια του εδάφους, με συνέπεια την αυξημένη συγκέντρωσή του σε αυτή. Η κατά βάθος κατανομή της συγκέντρωσης του ^{210}Pb στο χώμα παρουσιάζει ιδιαίτερο ενδιαφέρον και μπορεί να χρησιμοποιηθεί για τη μελέτη της μεταφοράς του επιφανειακού χώματος, την εκτίμηση του ρυθμού διάβρωσης και ιζηματογένεσης του εδάφους, αλλά και του ρυθμού εκροής του ραδονίου από αυτό.

Ο ^{210}Pb προσδιορίζεται με τη μέθοδο της γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης από τα φωτόνια ενέργειας 46.52 keV που εκπέμπει κατά τη β-διάσπαση του. Προκειμένου να μελετηθεί η κατά βάθος κατανομή του ^{210}Pb απαιτείται κατάλληλη δειγματοληψία χώματος από διάφορα βάθη. Στο Εργαστήριο Πυρηνικής Τεχνολογίας του ΕΜΠ (ΕΠΤ-ΕΜΠ) αναπτύχθηκε

πρόσφατα μία νέα τεχνική δειγματοληψίας (Πετροβίτσος 2011), η οποία επιτρέπει σχετικά εύκολα και με ακρίβεια τη συλλογή δειγμάτων χώματος από διάφορα βάθη, έως ~30cm. Η τεχνική αυτή στηρίζεται στη χρήση κυλινδρικού δειγματολήπτη, αποτελούμενου από δύο ημικυκλικά ελάσματα διαμέτρου 82.5 mm συγκρατούμενα με κατάλληλους δακτυλίους-σφικτήρες. Ο δειγματολήπτης εισάγεται στο έδαφος με χρήση σφύρας και εν συνεχεία εξάγεται από το έδαφος μαζί με το χώμα που βρίσκεται μεταξύ των δύο ημικυκλικών ελασμάτων. Μετά την αφαίρεση των σφικτήρων, το χώμα μεταξύ των δύο ελασμάτων μπορεί να διαιρεθεί κατά βάθος, ανάλογα με το επιθυμητό βήμα. Με τον τρόπο αυτό μπορούν να συλλέγονται δείγματα χώματος που αντιστοιχούν σε πάχος 1cm, με όγκο ~45 cm³

Κατά την πραγματοποίηση δειγματοληψιών κατά βάθος για τον προσδιορισμό του ²¹⁰Pb, είναι επιθυμητό να χρησιμοποιείται κατά το δυνατόν μικρό βήμα δειγματοληψίας, ώστε να προσδιορίζεται με μεγαλύτερη ακρίβεια η κατανομή του. Ωστόσο, για μικρά βήματα, της τάξης του 1 cm, η συλλεγόμενη ποσότητα χώματος για κάθε βήμα συχνά δεν επαρκεί για την πλήρωση καμιάς των τριών τυποποιημένων γεωμετριών που χρησιμοποιούνται στο ΕΠΤ-ΕΜΠ για την ανάλυση δειγμάτων χώματος, οι οποίες έχουν όγκους 282.0 cm³, 97.2 cm³ και 40.0 cm³. Το πρόβλημα αυτό καθίσταται μεγαλύτερο όταν το δείγμα περιέχει σημαντική ποσότητα από ξένα υλικά, όπως βλάστηση και λίθοι. Για το λόγο αυτό απαιτείται διενέργεια πολλαπλών δειγματοληψιών στην ίδια θέση και ανάμιξη των δειγμάτων, μία διαδικασία που είναι επίπονη και χρονοβόρος.

Σκοπός της παρούσης εργασίας είναι η αναζήτηση μικρότερης γεωμετρίας ανάλυσης δειγμάτων χώματος, με σκοπό τον προσδιορισμό του ²¹⁰Pb, που θα επιτρέπει την ευκολότερη δειγματοληψία, χωρίς μεγάλο συμβιβασμό στην ποιότητα των αναλύσεων. Για την πραγματοποίηση της μελέτης αυτής, συγκεντρώθηκαν οκτώ διαθέσιμα στο εμπόριο δοχεία διαφορετικών γεωμετριών, καθώς και ένα δοχείο χρησιμοποιούμενο σε δύο από τις ήδη υπάρχουσες τυποποιημένες γεωμετρίες. Για κάθε δοχείο/γεωμετρία, πραγματοποιήθηκαν αναλύσεις δύο τυπικών περιβαλλοντικών υλικών, οι οποίες συγκρίθηκαν ως προς το ρυθμό καταμέτρησης φωτονίων, την απόδοση, το κατώτερο όριο ανίχνευσης, την αβεβαιότητα κατά τον προσδιορισμό της ραδιενέργειας και την απαιτούμενη διόρθωση αυτοαπορρόφησης της φωτοκορυφής του ²¹⁰Pb στα 46.52 keV.

2. Μεθοδολογία

2.1 Περιγραφή πειραμάτων

Το πρώτο βήμα για την έναρξη των πειραμάτων ήταν η εύρεση κυλινδρικών πλαστικών δοχείων του εμπορίου που να πληρούν το κριτήριο του μικρού ωφέλιμου όγκου. Οι διαστάσεις και ο όγκος των δοχείων που επιλέχθηκαν φαίνονται στον Πίνακα 1. Σημειώνεται ότι τα δοχεία ογκομετρήθηκαν με απιονισμένο νερό, καθώς πολλά από αυτά δεν είναι απόλυτα κυλινδρικά.

Οι γεωμετρίες A-Δ και Z επιλέχθηκαν λόγω της ευκολίας σφραγίσματός τους (βιδωτό καπάκι). Οι γεωμετρίες E, ΣΤ και Η σφραγίζονται πιο δύσκολα, επιλέχθηκαν δε λόγω του μικρού πάχους δείγματος, που έχει ως συνέπεια χαμηλότερη αυτοαπορρόφηση μέσα στο

Δ.Ε.Χαβιάρας, Μ.Ι.Σάββα, Δ.Ι.Καράγγελος, Μ.Ι.Αναγνωστάκης, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

Επίδραση της γεωμετρίας του δείγματος κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση χώματος για τον προσδιορισμό του ²¹⁰Pb

δείγμα. Οι γεωμετρίες Θ και Ι αποτελούν τις τυποποιημένες γεωμετρίες με κωδικούς «8» και «5» αντίστοιχα του ΕΠΤ-ΕΜΠ και χρησιμοποιούν το ίδιο δοχείο όγκου 282 cm³, το οποίο όμως είναι πληρωμένο έως ορισμένου ύψους για κάθε γεωμετρία. Οι γεωμετρίες Θ και Ι αναλύθηκαν ως γεωμετρίες αναφοράς, με τον ίδιο τρόπο όπως και οι υπόλοιπες γεωμετρίες.

Για την πραγματοποίηση των πειραμάτων επιλέχθηκαν δύο υλικά, η ειδική ραδιενέργεια των οποίων έχει ήδη προσδιοριστεί στο ΕΠΤ-ΕΜΠ με ανάλυση σε τυποποιημένη γεωμετρία μεγάλου όγκου. Το πρώτο υλικό που χρησιμοποιήθηκε είναι χώμα προερχόμενο από την περιοχή της Μεγαλόπολης, το οποίο έχει συλλεχθεί και αναλυθεί στο πλαίσιο προηγούμενης εργασίας (Παλαμάρα 2010), και περιέχει $198 \pm 7.0\%$ (1σ) Bq/kg ²¹⁰Pb. Το δείγμα αυτό επιλέχθηκε γιατί από άποψη σύστασης είναι τυπικό δείγμα χώματος, αλλά περιέχει σχετικά αυξημένη ραδιενέργεια ²¹⁰Pb, γεγονός που διευκολύνει τη διεξαγωγή των πειραμάτων. Το δεύτερο υλικό είναι ιπτάμενη τέφρα προερχόμενη από λιγνιτικό σταθμό (Μεγαλόπολη IV), ειδικής ραδιενέργειας $874 \pm 5.6\%$ (1σ) Bq/kg. Το υλικό αυτό περιέχει υψηλά επίπεδα φυσικής ραδιενέργειας σε σχέση με το τυπικό χώμα, και επιλέχθηκε για να μελετηθεί η επίδραση του αυξημένου συνεχούς υποστρώματος στον προσδιορισμό του ²¹⁰Pb. Από κάθε υλικό πληρώθηκε ένα δοχείο από κάθε γεωμετρία, δημιουργώντας έτσι 2 σετ δειγμάτων.

Το σύνολο των 20 δειγμάτων (2 υλικά επί 10 γεωμετρίες) αναλύθηκε στον ανιχνευτή XtRa (EXtended Range) του ΕΠΤ-ΕΜΠ. Κάθε δείγμα αναλύθηκε για χρονική διάρκεια 24h. Ο ανιχνευτής XtRa διαθέτει Compton Suppression System (CSS) για τη μείωση του συνεχούς υποστρώματος Compton (Savva et al. 2013). Η διάταξη έχει τη δυνατότητα ταυτόχρονης συλλογής φασμάτων με και χωρίς τη χρήση του CSS. Στο πλαίσιο της εργασίας αυτής αξιοποιήθηκαν μόνο τα φάσματα τα οποία συλλέχθηκαν με χρήση του συστήματος CSS (ανιχνευτής XtRa-CSS), το οποίο παρέχει και τα χαμηλότερα επίπεδα ανίχνευσης.

Τα δείγματα χώματος αναλύθηκαν και στον ανιχνευτή χαμηλών ενεργειών τύπου LEGE (Low Energy Germanium), με σκοπό να διερευνηθεί εάν παρέχει κάποιο πλεονέκτημα στην ανίχνευση του ²¹⁰Pb. Η διάρκεια συλλογής των φασμάτων ήταν επίσης 24h.

Πίνακας 1: Εξεταζόμενες γεωμετρίες δείγματος.

Γεωμετρία	Μέση Ακτίνα (cm)	Ύψος (cm)	Όγκος (cm ³)
A	1.25	1.73	9.1
B	1.61	1.70	14.5
Γ	1.69	2.73	24.6
Δ	1.41	1.99	12.6
E	2.59	1.20	24.1
ΣΤ	2.65	1.34	27.6
Z	2.40	1.89	34.1
H	2.85	0.64	17.9
Θ	3.57	1.00	40.0
I	3.75	2.20	97.2

2.2 Προσομοιώσεις Monte-Carlo

Εκτός από τη χρήση πειραματικών μεθόδων, για τη σύγκριση των διαφόρων γεωμετριών δείγματος χρησιμοποιήθηκαν και τεχνικές προσομοίωσης Monte Carlo. Συγκεκριμένα, χρησιμοποιήθηκε η έκδοση 2005 του κώδικα προσομοίωσης PENELOPE (Baró et al. 1995). Για την πραγματοποίηση των προσομοιώσεων, χρησιμοποιήθηκαν για τα δύο υλικά τυπικές κατά βάρος συστάσεις από τη βιβλιογραφία (Τραμπίδου κ.α. 2006, Skodras et al. 2006), οι οποίες παρατίθενται στον Πίνακα 2. Για το χρώμα λήφθηκε υπ' όψιν και η υγρασία του δείγματος, η οποία προσδιορίστηκε πειραματικά ίση με 4.1%. Για την ιπτάμενη τέφρα λήφθηκαν υπ' όψιν μόνο χημικές ενώσεις με περιεκτικότητα μεγαλύτερη από 10%.

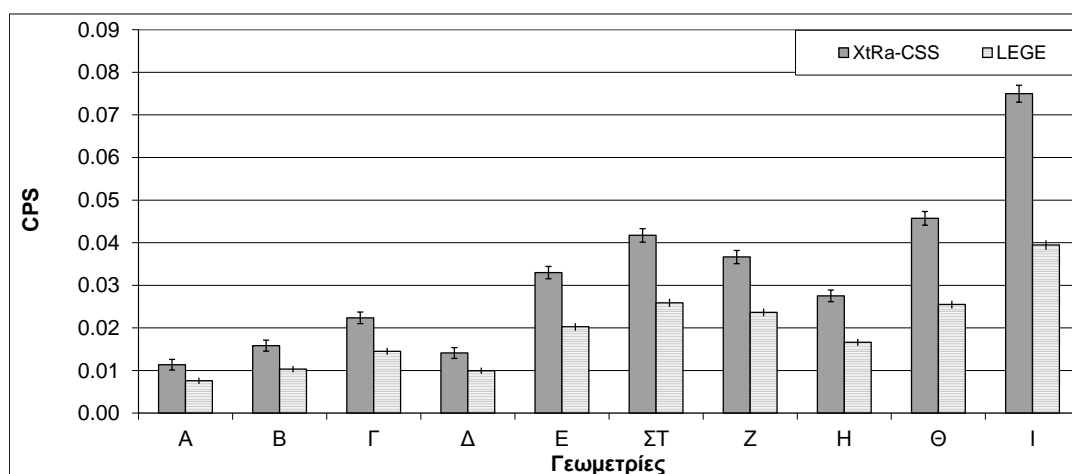
Πίνακας 2: Σύσταση χρώματος και ιπτάμενης τέφρας που χρησιμοποιήθηκαν στην προσομοίωση.

	Στοιχείο	H	O	Al	Si	K	Ca	Fe	S
Χρώμα	% κ.β.	1.51	54.58	7.45	25.28	3.30	3.30	4.59	-
Τέφρα	% κ.β.	-	46.40	7.80	19.50	-	11.90	8.60	5.90

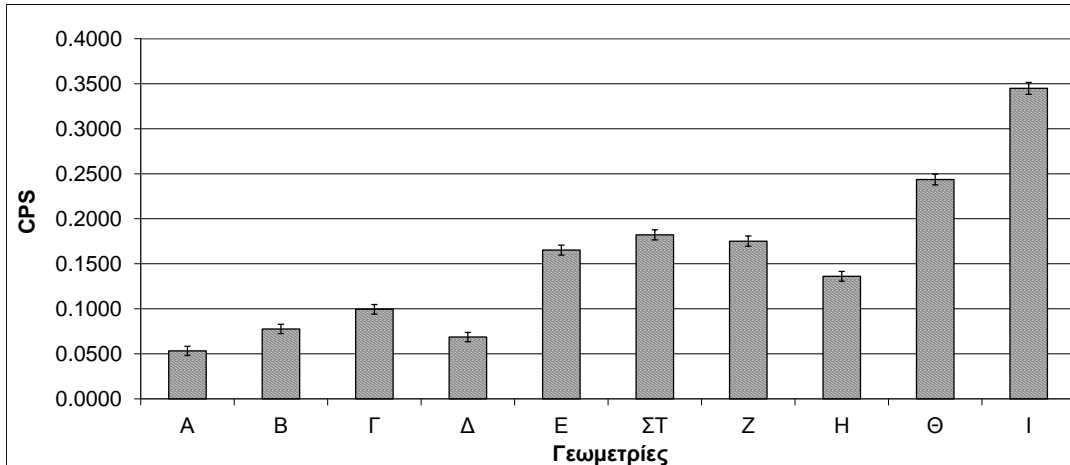
3. Αποτελέσματα

3.1 Σύγκριση γεωμετριών σε όρους ρυθμού καταμέτρησης φωτονίων 46.52 keV

Όλα τα φάσματα που συλλέχθηκαν από τα εξεταζόμενα δείγματα, αναλύθηκαν με τον κώδικα γ-φασματοσκοπικής ανάλυσης SPUNAL (Petrooulos et al. 2001), για να προσδιοριστεί η επιφάνεια της φωτοκορυφής του ^{210}Pb . Από την επιφάνεια αυτή, αφαιρέθηκε η συνεισφορά του υποστρώματος, η οποία έχει προσδιοριστεί με την πραγματοποίηση μέτρησης υποστρώματος μεγάλης διάρκειας (300 – 500 ksec). Στα Σχήματα 1 και 2 παρουσιάζεται ο καθαρός ρυθμός καταμέτρησης της φωτοκορυφής (counts per second, cps) για όλες τις μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν, συνοδευόμενος από την αβεβαιότητα κατά τον προσδιορισμό της καθαρής επιφάνειας φωτοκορυφής, σε επίπεδο 1σ.



Σχήμα 1: Ρυθμός καταμέτρησης φωτοκορυφής ^{210}Pb (46.52 keV) στα δείγματα χρώματος.

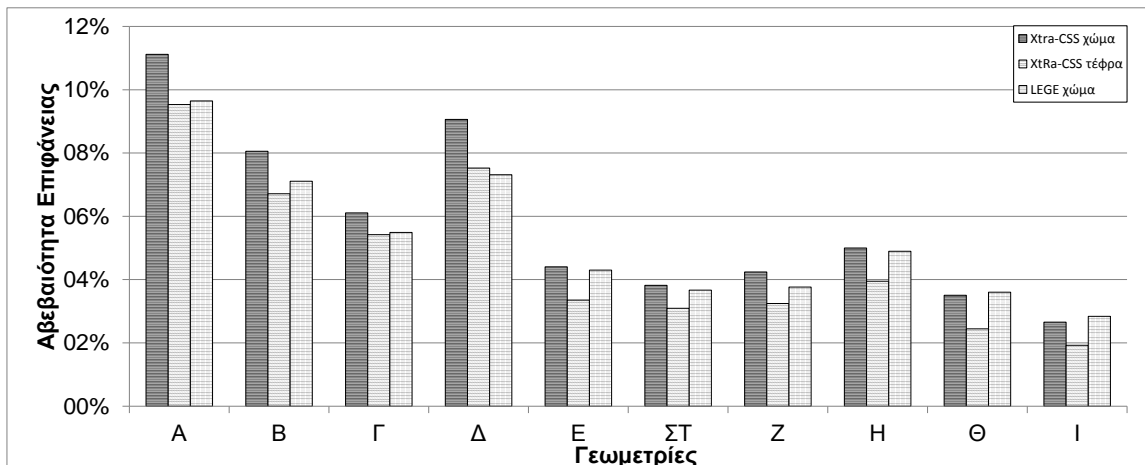


Σχήμα 2: Ρυθμός καταμέτρησης φωτοκορυφής ^{210}Pb (46.52 keV) στα δείγματα ιπτάμενης τέφρας, με τον ανιχνευτή Xtra-CSS.

Από το Σχήμα 1 διαπιστώνεται ότι ο ανιχνευτής LEGE δίνει μικρότερο ρυθμό καταμέτρησης φωτονίων σε σχέση με τον ανιχνευτή Xtra-CSS. Για το λόγο αυτό, η συνέχεια της διερεύνησης πραγματοποιήθηκε μόνο στον ανιχνευτή Xtra-CSS.

3.2 Σύγκριση γεωμετριών σε όρους σχετικής αβεβαιότητας επιφάνειας της φωτοκορυφής του ^{210}Pb

Για κάθε ένα από τα συλλεχθέντα φάσματα ο κώδικας SPUNAL εκτιμά και την αβεβαιότητα λόγω προσδιορισμού επιφάνειας για κάθε φωτοκορυφή. Στο Σχήμα 3 παρουσιάζονται οι σχετικές αβεβαιότητες της φωτοκορυφής στα 46.52 keV για τις εξεταζόμενες γεωμετρίες, όπως προέκυψαν από τις αναλύσεις των δύο υλικών, σε επίπεδο 1σ.



Σχήμα 3: Σχετική αβεβαιότητα προσδιορισμού της φωτοκορυφής ^{210}Pb (46.52 keV)

Από το Σχήμα 3 διαπιστώνεται ότι οι γεωμετρίες A-Δ έχουν σημαντικά υψηλότερες αβεβαιότητες από τις υπόλοιπες. Από τις ήδη χρησιμοποιούμενες γεωμετρίες Θ και Ι, η χαμηλότερη αβεβαιότητα επιτυγχάνεται στη μεγαλύτερου όγκου γεωμετρία Ι, ενώ από τις

προτεινόμενες νέες γεωμετρίες η χαμηλότερη αβεβαιότητα επιτυγχάνεται για τη γεωμετρία ΣΤ, αν και για όλες τις γεωμετρίες Ε-Η η αβεβαιότητα κυμαίνεται σε παρόμοια επίπεδα.

3.3 Σύγκριση γεωμετριών σε όρους απόδοσης φωτοκορυφής για την ενέργεια των φωτονίων του ^{210}Pb (46.52keV)

Για κάθε ένα από τα συλλεχθέντα φάσματα, υπολογίστηκε η απόδοση φωτοκορυφής πλήρους απορρόφησης για τα 46.52 keV που εκπέμπει ο ^{210}Pb , χρησιμοποιώντας τη σχέση :

$$\text{eff} = \frac{\text{area}}{\text{time} \cdot \text{yield} \cdot \text{s_activity} \cdot \text{mass}} \quad (1)$$

Όπου:

eff: η απόδοση φωτοκορυφής του ανιχνευτή για την ενέργεια των 46.52 keV

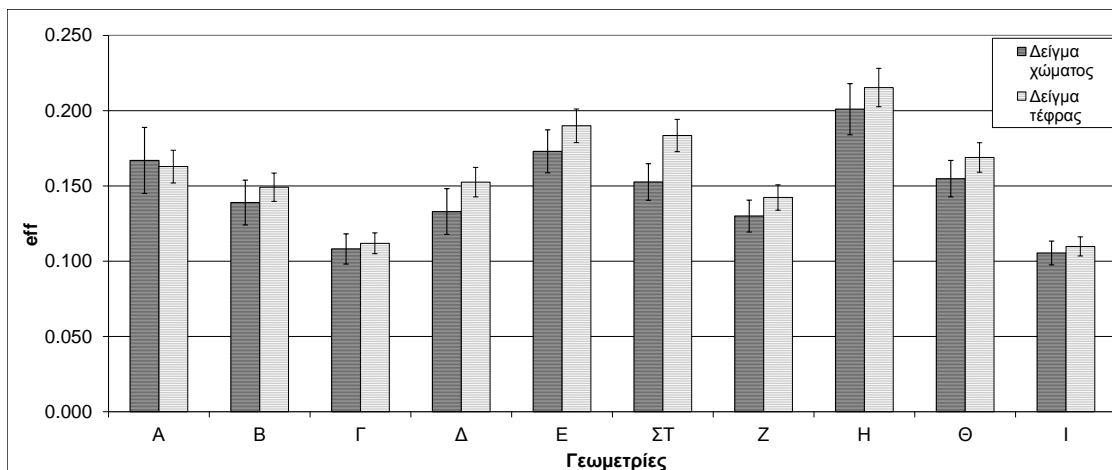
area: η καθαρή επιφάνεια της κορυφής των 46.52 keV στο φάσμα

time: ο χρόνος συλλογής του φάσματος από τον ανιχνευτή

yield: το ποσοστό εκπομπής του φωτονίου 46.52 keV, το οποίο λήφθηκε από βιβλιογραφία (Bé M.-M. et al. 2004)

s_activity: η γνωστή ειδική ραδιενέργεια του ^{210}Pb , ανάλογα με το υλικό (χώμα ή τέφρα)

mass: η καθαρή μάζα υλικού του δείγματος, που μετρήθηκε κατά τη ζύγιση



Σχήμα 4: Πειραματικός προσδιορισμός απόδοσης φωτοκορυφής για τα φωτόνια 46.52 keV (^{210}Pb).

3.3 Σύγκριση γεωμετριών σε όρους Κατώτερης Ανιχνεύσιμης Ραδιενέργειας

Για κάθε ένα από τα φάσματα που αναλύθηκαν, υπολογίστηκε η Κατώτερη Ανιχνεύσιμη Ραδιενέργεια (Minimum Detectable Activity, MDA), ακολουθώντας τη μεθοδολογία (Gilmore G. and Hemingway J. 1995). Πρέπει να σημειωθεί ότι κατά τον υπολογισμό

Δ.Ε.Χαβιάρας, Μ.Ι.Σάββα, Δ.Ι.Καράγγελος, Μ.Ι.Αναγνωστάκης, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο
Επίδραση της γεωμετρίας του δείγματος κατά τη γ-φασματοσκοπική ανάλυση χώματος για τον προσδιορισμό του ^{210}Pb

λήφθηκε υπ' όψιν τόσο το συνεχές, όσο και το διακριτό υπόστρωμα του ^{210}Pb (Aurelian 2009), το οποίο οφείλεται στην ύπαρξη ιχνών ^{210}Pb εντός της θωράκισης. Επίσης, ειδικά για τον ανιχνευτή XtRa, υπολογίστηκαν τιμές του MDA με και χωρίς τη χρήση του CSS, ώστε να γίνει εμφανής η επίδρασή του στη βελτίωση του MDA. Οι σχέσεις που χρησιμοποιήθηκαν είναι οι εξής:

$$\text{MDA} = \frac{L_d}{t_s \times \text{yield} \times \text{eff} \times \text{mass}} \quad (2)$$

$$L_d = 2k_a \sqrt{B_s \left(1 + \frac{n_s}{2m_s}\right) + A_b \left(1 + \frac{t_s}{t_b}\right) + B_b \left(1 + \frac{n_b}{2m_b}\right)} \quad (3)$$

Όπου:

MDA: η κατώτερη ανιχνεύσιμη ραδιενέργεια (Minimum Detectable Activity) μετρούμενη σε Bq/kg

L_d : το όριο ανίχνευσης (Detection Limit) μετρούμενο σε πλήθος καταμετρημένων γεγονότων

k_a : συντελεστής που για επίπεδο εμπιστοσύνης 95% ισούται με 1.645

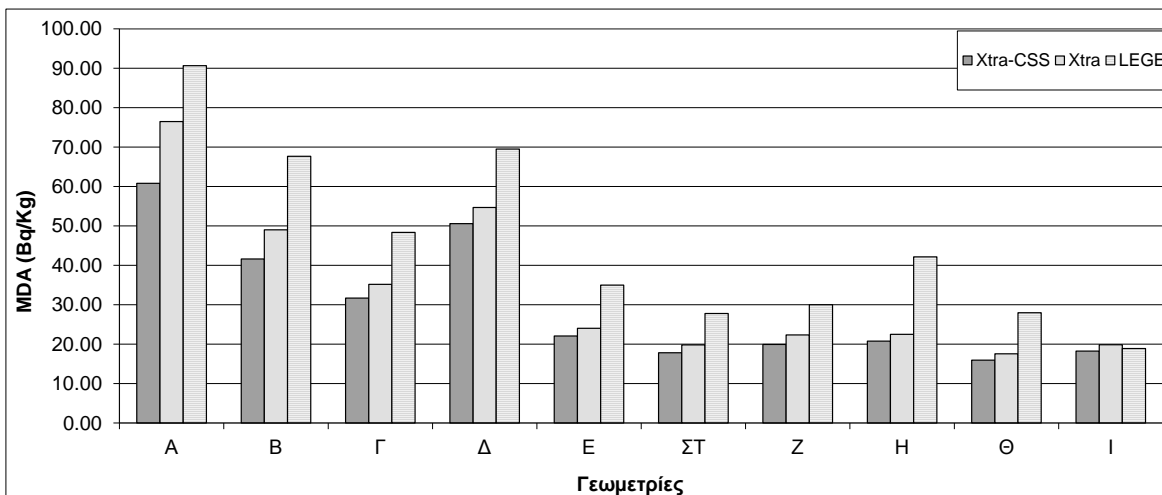
B_s, B_b : η επιφάνεια του συνεχούς υποστρώματος στα φάσματα του δείγματος και του υποστρώματος αντίστοιχα

A_b : η καθαρή επιφάνεια φωτοκορυφής ^{210}Pb στο φάσμα του υποστρώματος

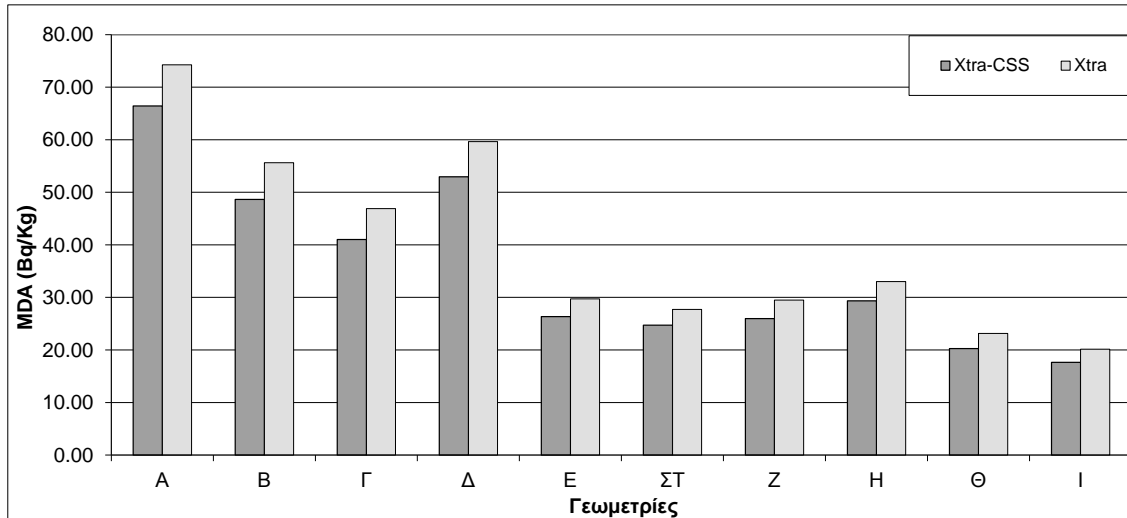
t_s, t_b : ο χρόνος συλλογής των φασμάτων δείγματος και υποστρώματος από τον ανιχνευτή αντίστοιχα

n_s, n_b : το πλήθος των καναλιών στα οποία κατανέμεται η φωτοκορυφή στα φάσματα δείγματος και υποστρώματος αντίστοιχα

m_s, m_b : το πλήθος καναλιών αριστερά και δεξιά της φωτοκορυφής στα φάσματα δείγματος και υποστρώματος για τον προσδιορισμό της επιφάνειας του συνεχούς υποστρώματος



Σχήμα 5: MDA δειγμάτων χώματος.



Σχήμα 6: MDA δειγμάτων τέφρας.

Στα Σχήματα 5 και 6 έχει περιληφθεί για λόγους σύγκρισης και η τιμή του MDA που προκύπτει από τον ανιχνευτή XtRa χωρίς τη χρήση του CSS. Όπως διαπιστώνεται, σε όλες τις περιπτώσεις αυτό είναι υψηλότερο από το αντίστοιχο MDA που εκτιμήθηκε με τη χρήση του CSS. Επιπλέον, στο Σχήμα 5 έχει περιληφθεί και η τιμή του MDA που προκύπτει από τις μετρήσεις στον ανιχνευτή LEGe, η οποία επίσης σε κάθε περίπτωση είναι υψηλότερη από αυτήν που προσδιορίστηκε για τα φάσματα με τον ανιχνευτή XtRa-CSS. Προκύπτει επομένως ότι η βέλτιστη ανίχνευση χαμηλών επιπέδων ^{210}Pb επιτυγχάνεται από τον ανιχνευτή XtRa με χρήση του CSS, ανεξάρτητα από τη χρησιμοποιούμενη γεωμετρία. Όσον αφορά στις διάφορες γεωμετρίες, διαπιστώνεται ότι η χαμηλότερη τιμή του MDA προέκυψε για τη γεωμετρία I, που είναι όμως αυτή με τον υψηλότερο όγκο δείγματος.

3.4 Σύγκριση γεωμετριών σε όρους διόρθωσης απόδοσης λόγω αυτοαπορρόφησης

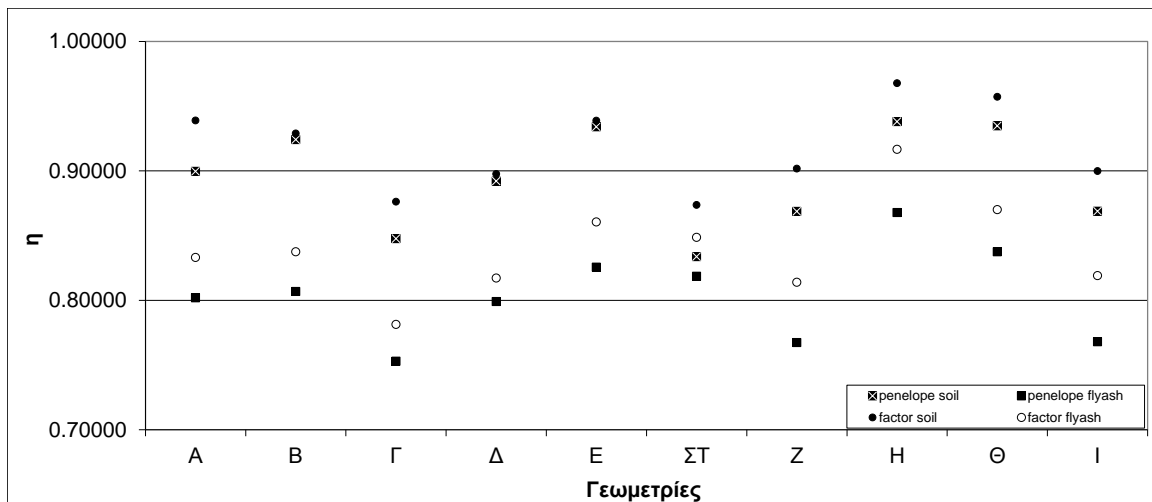
Κατά τη γ -φασματοσκοπική ανάλυση με χρήση φωτονίων χαμηλών ενεργειών είναι έντονο το φαινόμενο της αυτοαπορρόφησης των φωτονίων μέσα στο υπό εξέταση υλικό, ανάλογα με τη σύσταση και τη γεωμετρία του δείγματος. Αυτό δημιουργεί πρόβλημα κατά τον υπολογισμό της ραδιενέργειας, διότι η απόδοση φωτοκορυφής κατά την ανάλυση του δείγματος, διαφέρει από την απόδοση που έχει εκτιμηθεί μέσω της πηγής βαθμονόμησης. Ως συντελεστής αναγωγής απόδοσης λόγω αυτοαπορρόφησης ορίζεται ο λόγος της πραγματικής απόδοσης φωτοκορυφής του δείγματος, προς την απόδοση η οποία υπολογίζεται από την πηγή βαθμονόμησης. Όσο πιο κοντά στη μονάδα βρίσκεται αυτό το μέγεθος, τόσο μικρότερη η διόρθωση της απόδοσης που απαιτείται για τις συγκεκριμένες συνθήκες ανάλυσης (ενέργεια, γεωμετρία, υλικό πηγής και δείγματος).

Στο πλαίσιο της εργασίας, ο συντελεστής διόρθωσης απόδοσης λόγω αυτοαπορρόφησης υπολογίστηκε με δύο τρόπους για κάθε γεωμετρία, τόσο για χώμα όσο και για τέφρα. Ο πρώτος τρόπος ήταν με χρήση της ολοκληρωτικής μεθόδου, η οποία εφαρμόζεται για κυλινδρικές γεωμετρίες δείγματος μέσω καταλλήλου προγράμματος (Αναγνωστάκης 1998). Ο δεύτερος τρόπος ήταν με χρήση του κώδικα προσομοίωσης PENELOPE. Συγκεκριμένα,

Δ.Ε.Χαβιάρας, Μ.Ι.Σάββα, Δ.Ι.Καράγγελος, Μ.Ι.Αναγνωστάκης, Τομέας Πυρηνικής Τεχνολογίας, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο

Επίδραση της γεωμετρίας του δείγματος κατά τη γ -φασματοσκοπική ανάλυση χώματος για τον προσδιορισμό του ^{210}Pb

εκτιμήθηκε με προσομοίωση η απόδοση φωτοκορυφής για κάθε γεωμετρία και υλικό δύο φορές, μία για το υλικό του δείγματος (χώμα ή τέφρα) και μία για το υλικό της πηγής βαθμονόμησης (4M HCl). Ο συντελεστής αναγωγής της απόδοσης εκτιμήθηκε για κάθε περίπτωση ως ο λόγος των δύο αποδόσεων, για το υλικό του δείγματος και το υλικό της πηγής βαθμονόμησης. Οι όποιες διαφορές μεταξύ των δύο μεθόδων προσδιορισμού του συντελεστή αναγωγής θα πρέπει να αποδίδονται στο γεγονός ότι η σύσταση των υλικών που χρησιμοποιήθηκε για την προσομοίωση δεν έχει προσδιοριστεί με ακρίβεια για τα συγκεκριμένα υλικά, αλλά αποτελεί εκτίμηση για τα υλικά χώμα και τέφρα (Πίνακας 2).



Σχήμα 7: Συντελεστής αναγωγής απόδοσης λόγω αυτοαπορρόφησης.

Σε κάθε περίπτωση, η μικρότερη διόρθωση αυτοαπορρόφησης (η πλησιέστερα στο 1) βρέθηκε για τη γεωμετρία Η.

4. Συμπεράσματα

Στο Σχήμα 8 παρουσιάζονται συγκεντρωτικά όλα τα μεγέθη που μελετήθηκαν για το δείγμα χώματος, κανονικοποιημένα ως προς τις μέγιστες τιμές τους, σε σχέση με τον όγκο του δοχείου. Ανάλογη εικόνα παρατηρείται και για το δείγμα ιπτάμενης τέφρας. Παρατηρείται ότι – όπως ήταν αναμενόμενο – η γεωμετρία που περιέχει τη μεγαλύτερη μάζα χώματος (Ι) έχει και τον καλύτερο ρυθμό καταμέτρησης (cps) και επομένως τη μικρότερη αβεβαιότητα. Ωστόσο, η καλύτερη απόδοση προσδιορισμού φωτοκορυφής επιτυγχάνεται στη σχετικά μικρού όγκου γεωμετρία Η.

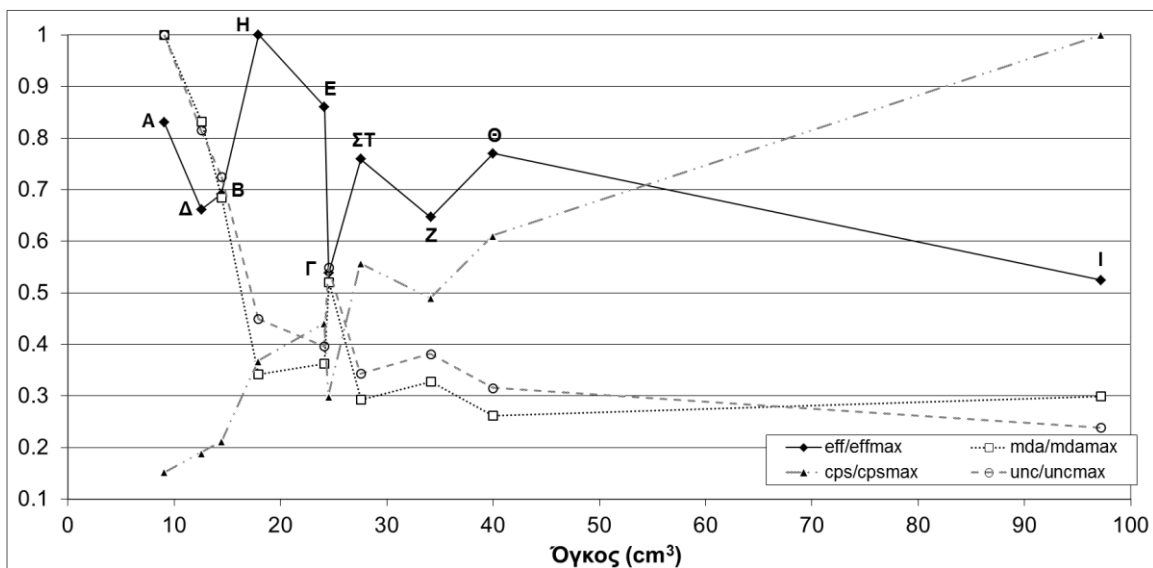
Από άποψη MDA διαπιστώνεται, κατ' αρχήν, ότι τα δοχεία Α-Δ δίνουν υψηλότερες τιμές από τα δοχεία Ε-Ι. Ενδιαφέρον παρουσιάζει το γεγονός ότι το δοχείο Γ εμφανίζει σημαντικά χαμηλότερη απόδοση και αυξημένο MDA σε σχέση με τα παραπλήσιου όγκου δοχεία Ε και ΣΤ. Η διαφορά αυτή οφείλεται στο ότι το δοχείο Γ έχει μεγαλύτερο ύψος από τα Ε, ΣΤ, γεγονός που επιδρά αρνητικά στην απόδοση φωτοκορυφής για γεωμετρικούς λόγους.

Τα MDA των γεωμετριών Ε-Ι είναι συγκρίσιμα μεταξύ τους. Λαμβάνοντας όμως υπ' όψιν και την απαιτούμενη ποσότητα δείγματος για την πλήρωση του δοχείου, το δοχείο Η

εμφανίζεται ως σαφώς πλεονεκτικό, αφού επιτυγχάνει συγκρίσιμο MDA με τα πολύ μεγαλύτερου όγκου δοχεία Θ, Ι. Εξετάζοντας παράλληλα το Σχήμα 7, διαπιστώνεται ότι το δοχείο Η εμφανίζει τον πλησιέστερο στη μονάδα συντελεστή διόρθωσης αυτοαπορρόφησης, γεγονός που είναι θετικό, καθώς μικρότερο ποσοστό φωτονίων ενέργειας 46.52 keV απορροφώνται μέσα στο δείγμα και επιπλέον, η επίδραση της αβεβαιότητας του συντελεστή διόρθωσης είναι μικρότερη στο τελικό αποτέλεσμα.

Συγκρίνοντας τις δύο μέχρι τώρα χρησιμοποιούμενες στο ΕΠΤ-ΕΜΠ γεωμετρίες Θ και Ι, διαπιστώνεται ότι αν και η Ι επιτυγχάνει σαφώς μεγαλύτερο ρυθμό καταμέτρησης και σχετικά χαμηλότερη αβεβαιότητα, τελικά δεν υπερτερεί σημαντικά σε όρους MDA. Η επιλογή της Ι έναντι της Θ συνεπάγεται αύξηση του όγκου δειγματοληψίας από τα 40.0 cm³ στα 97.2 cm³, αλλά μείωση του MDA κατά μόνο ~20%. Επομένως, δεν θεωρείται δικαιολογημένη στις περιπτώσεις όπου είναι επιθυμητός μικρός όγκος δειγματοληψίας.

Από τις νέες γεωμετρίες που εξετάστηκαν, προτείνεται για υιοθέτηση η γεωμετρία Η, καθώς επιτυγχάνει υψηλή απόδοση και χαμηλό MDA, με σημαντική μείωση στον όγκο του δείγματος στα 17.9 cm³, σε σχέση με τη μέχρι τώρα μικρότερη χρησιμοποιούμενη γεωμετρία όγκου 40.0 cm³. Όσον αφορά στην αβεβαιότητα κατά τον προσδιορισμό του ²¹⁰Pb η γεωμετρία αυτή είναι συγκρίσιμη με τις γεωμετρίες Ε, ΣΤ και Ζ που έχουν παραπλήσιο όγκο.



Σχήμα 8: Σύγκριση των εξεταζόμενων μεγεθών ως προς τον όγκο για το δείγμα χώματος.

Βιβλιογραφία

1. Αναγνωστάκης Μ., “*γ-Φασματοσκοπική ανάλυση δειγμάτων χαμηλών ραδιενεργειών στην περιοχή χαμηλών ενεργειών*”, Διδακτορική Διατριβή, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ, 1998, Αθήνα.
2. Παλαμάρα Ε., “*Διερεύνηση της επίδρασης της μεθοδολογίας προετοιμασίας δειγμάτων χώματος στον προσδιορισμό της φυσικής και τεχνητής τους ραδιενέργειας*”, Διπλωματική Εργασία, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ, 2010, Αθήνα.

3. Πετροβίτσος Ε. “Εκτίμηση του ρυθμού διάβρωσης επιφανειακών εδαφών με χρήση φυσικών και τεχνητών ραδιενεργών ισοτόπων”, Διπλωματική Εργασία, Σχολή Μηχανολόγων Μηχανικών ΕΜΠ, 2011, Αθήνα.
4. Τραμπίδου Γ., Σταματελάτος Ι., Κρητίδης Π., Φλώρου Ε., “Εκτίμηση εξωτερικών δόσεων από την έκθεση στη γάμμα ακτινοβολία του εδάφους με συγκριτική χρήση διαφόρων μεθόδων”, e-Περιοδικό Επιστήμης & Τεχνολογίας 1 (2), 79-85, 2006.
5. Aurelian L., “Some considerations about MDA and ISO 11929-3(2000)”, 17th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, Bratislava, Slovakia, Σεπτέμβριος 2009.
6. Baró J., Sempau J., Fernández-Varea J.M., Salvat F., “PENELOPE: An algorithm for Monte Carlo simulation of the penetration and energy loss of electrons and positrons in matter”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 100, p.p. 31-46, 1995.
7. Bé, M.-M., Chisté, V. Dulieu, C., Browne, E., Chechev, V.; Kuzmenko, N., Helmer, R., Nichols, A., Schoenfeld, E.; Dersch, R., “Tables des Radionucléides”, Bureau International des Poids et Mesures (BIPM), 2004, Sèvres.
8. Petropoulos N.P., Anagnostakis M.J., Simopoulos S.E., “Photon attenuation, natural radioactivity content and radon exhalation rate of building materials”, Journal of Environmental Radioactivity 61, p.p. 257–269, 2001.
9. Savva M.I., Karfopoulos K.L., Karangelos D.J., Anagnostakis M.J. and Simopoulos S.E. “Installation and performance testing of an XiRa – NaI(Tl) Compton Suppression System at the NED-NTUA”, Appl. Radiat. Isotopes, 2013.
10. Skodras G., Grammelis P., Kakaras E., Karangelos D., Anagnostakis M., Hinis E., “Quality characteristics of Greek fly ashes and potential uses”, Fuel Processing Technology 88, p.p. 77-85, 2007.