



Univerzitet u Novom Sadu
Prirodno-matematički fakultet
Departman za fiziku



Dejana Hornjak

Redukcija pozadinskog zračenja pri
ispitivanju radiokarbona na tečnom
scintilacionom spektrometru

-Diplomski rad-

Mentor
Prof. dr Nataša Todorović

Novi Sad, 2021.

SADRŽAJ

UVOD	3
1 Kosmičko zračenje	4
Primarno kosmičko zračenje	4
Sekundarno kosmičko zračenje	6
Svojstva sekundarnog kosmičkog zračenja	6
2 Detektori zračenja	11
Tečna scintilaciona spektroskopija.....	13
Osobine scintilatora	14
Scintilacioni procesi u organskim scintilatorima	14
Fotomultiplikatori.....	16
Quantulus 1220 TM	17
Detektorska zaštita	19
Poređenje amplituda impulsa (PAC).....	21
3 Radiokarbon	22
Kosmička produkcija ¹⁴ C	23
Pozadinsko zračenje	24
Izvori pozadinskog zračenja	25
Višestruki višekanalni analizatori (MCA).....	26
Merenje ¹⁴ C ili drugih beta emitera visoke energije.....	27
4 Eksperiment	29
Niskofonske laboratorije za tečnu scintilacionu spektroskopiju	30
Rezultati merenja.....	31
Uticaj atmosferskog pritiska.....	32
Uticaj temperature	33
Uticaj vlažnosti vazduha	34
Efikasnost	35
Zaključak	36
Literatura	37

UVOD

QuantulusTM (PerkinElmer, Inc.) predstavlja tečni scintilacioni spektrometar koji može da meri veoma niske nivoe radioaktivnosti. Koristi se u velikom broju laboratorijskih za radiometrijsko ispitivanje radiokarbona ^{14}C . Radiokarbon daje rezultate niskih intenziteta, pa svako dodatno zračenje koje se detektuje može da dovede do pogrešnih rezultata. Iz ovog razloga je potrebno redukovati svako dodatno zračenje u detektoru. Pozadinsko (kosmičko) zračenje koje dolazi iz atmosfere ima najveći uticaj na rezultate ispitivanja radiokarbona. Najveća pažnja je posvećena redukciji pozadinskog zračenja.

Cilj ovog diplomskog rada jeste upoređivanje eksperimentalnih rezultata ispitivanja efikasnosti detekcije i varijacija u pozadinskom zračenju na tečnom scintilacionom spektrometru u laboratoriji na katedri za nuklearnu fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta Univerziteta u Novom Sadu sa rezultatima eksperimenta koji su publikovani u radu Plastino W., Kaihola L., Bartolomei P., Bella F. (2001) *Cosmic Background Reduction in the Radicarbon Measurement by Liquid Scintillation Spectrometry at the Underground Laboratory of Gran Sasso* i u radu Plastino W., Kaihola L. (2004) *Surface and Underground Ultra Low-level Liquid Scintillation Spectrometry*.

Na kraju rada se nalaze rezultati merenja pozadinskog zračenja, a u zaključku ćemo uporediti ove rezultate sa već poznatim rezultatima.

1 Kosmičko zračenje

Kosmičko zračenje je skup visokoenergetskih čestica koje se kreću ultrarelativističkim brzinama kroz svemir i Zemlju pogađaju iz svih pravaca. Ovaj fenomen je otkrio Viktor Franc Hes koji je 1912. godine izveo let balonom i uz pomoć elektrometra primetio da se intenzitet ionizujućeg zračenja povećava u atmosferi. Predpostavio je da mora postojati dodatni izvor ionizacije molekula vazduha, pored prirodne radioaktivnosti iz Zemlje. Pokazao je da intenzitet ovog zračenja raste sa visinom. Zaključio je da je uzrok ove pojave postojanje radijacije koja ulazi u atmosferu odozgo. Za ovo otkriće je dobio Nobelovu nagradu 1936. godine. U početku se verovalo da je ovo zračenje elektromagnetno (zbog ovoga se i naziva zračenje), dok se kasnije nije primetilo da na njega utiče i Zemljino magnetno polje, pa ovo mora biti nanelektrisano zračenje. Preciznijim merenjima je utvrđeno da se maksimum zračenja nalazi na oko 22 km od površine zemlje, a zatim opada do oko 60 km visine odakle ostaje konstantna vrednost. Do 50-tih godina XX veka kosmičko zračenje je bilo jedini izvor visokoenergetskih čestica u eksperimentalnoj fizici visokih energija, što je dovelo do otkrića novih elementarnih čestica (pozitron, mion i pion). Zajedno sa Hesom, Karl Anderson je dobio Nobelovu nagradu za otkriće pozitrona 1936. godine. Kosmičko zračenje delimo na primarno i sekundarno.

Kosmičko zračenje je od svog otkrića postalo predmet brojnih teorijskih i eksperimentalnih istraživanja, jer se radi o jedinstvenoj pojavi u svemiru. Većina ovih istraživanja predstavlja jedne od najsloženijih i najskupljih naučnih poduhvata koji se realizuju kroz međunarodne inicijative i kolaboracije uz učešće velikog broja istraživača i inžinjera. Zbog prirode kosmičkog zračenja i u zavisnosti od ciljeva istraživanja, eksperimentalne postavke se nalaze na različitim egzotičnim lokacijama širom sveta, visoko na planinama ili duboko pod zemljom ili morem, u severnom i južnom polarnom krugu, kao i na satelitima i svemirskim sondama.

Primarno kosmičko zračenje

Primarno kosmičko zračenje čine pozitivno nanelektrisane čestice, tj. jezgra elemenata, od protona kao jezgro vodonika do teških elemenata. Ovo zračenje može biti različitih energija, ali spada u visokoenergetsko zračenje sa energijama od nekoliko desetina MeV do čak 10^{16} MeV. Primarno kosmičko zračenje ne doseže do površine Zemlje jer na svom putu interaguje sa atmosferom i time stvara sekundarno zračenje. Detekcija primarnog zračenja nam daje podatke o redu veličine energije kosmičkih čestica koje stižu na Zemlju. U početku su one detektovane Vilsonovom maglenom komorom, a posle i uz pomoć električnog polja kojim im je zakretana putanja pa su se na taj način dobijale prve informacije o nanelektrisanju visokoenergetskih

čestica kosmičkog zračenja. Tako se došlo do informacija da kosmički zraci interaguju sa zemljinim magnetnim poljem, pa od njihove energije direktno zavisi i putanja u blizini Zemlje i u njenoj atmosferi. Postojanje magnetnih polova na Zemlji uslovjava postojanje magnetnih linija sile, pa ako se čestica kreće duž linije sile na nju neće delovati dodatna sila, ali ako bi se čestica kretala normalno na pravac ovih linija, na nju će delovati maksimalna Lorencova sila i doći će do njenog skretanja. Čestice manjih energija mogu toliko da skrenu da u potpunosti promaše Zemlju. Ove činjenice dovode do toga da minimalna energija kosmičkog protona na polovima iznosi oko 2.5 GeV , dok na ekvatoru iznosi 15 GeV .

Poreklo kosmičkog zračenja najviših energija (preko 10^{10} GeV) je jedna od glavnih nerešenih misterija moderne fizike. Probleme nije u samom mehanizmu produkcije ovih čestica, već u utvrđivanju koji od verovatnih procesa su odgovorni za njihovu produkciju, odnosno do njihovog ubrzavanja do ultravisokih energija. Danas je poznato da svaki astronomski objekat sa magnetizovanom dinamičkom, kosmičkom plazmom može biti izvor kosmičkog zračenja. Prema poreklu, a samim tim i energiji, kosmičko zračenje može biti:

1. Intergalaktičko zračenje – predstavlja komponentu primarnog zračenja koja ima najvišu energiju ($10^{10} - 10^{15} \text{ GeV}$). Čestice maksimalnih energija nastaju van naše galaksije. Problem sa proučavanjem ovog zračenja leži u tome da do nas dolazi jako mali broj ovih čestica izuzetno visokih energija. Predpostavlja se da one nastaju određenim elektromagnetnim procesima, pri čemu možemo navesti i neke potencijalne izvore poput eksplozija gama zraka, aktivnih galaktičkih jezgara, galaktičkih sudara itd.
2. Galaktičko kosmičko zračenje – potiče iz naše galaksije (energija $10 - 10^{10} \text{ GeV}$). Većinu ovog zračenja čine protoni (90%) i alfa čestice (8%) dok ostatak čine teža jezgra. Primećujemo da sastav kosmičkog zračenja odgovara odnosu elemenata u prirodi. Izuzeci su jedino neki lakši elementi poput litijuma, berilijuma ili bora. Kosmičko zračenje dakle čine ubrzana jezgra elemenata iz prirode, pa se tako odstupanje u koncentraciji lakših elemenata može tumačiti povećanim brojem raspada težih elemenata u kosmičkom zračenju usled interakcije sa međuzvezdanim gasom. Fluks kosmičkih zraka je oko $1 \text{ cm}^{-2} \text{s}^{-1}$, a gustina energije je oko 1.3 eV/cm^3 dok je na primer fluks zvezdanog zračenja oko 0.4 eV/cm^3 , a energetski fluks međuzvezdanog gasa oko 0.6 eV/cm^3 , pa i ovo pokazuje da kosmički zraci imaju veoma velike energije.
3. Solarno kosmičko zračenje – potiče od Sunčeve aktivnosti i veoma lako se detektuje i izdvaja iz ukupnog kosmičkog zračenja (energija od 1 do 10 GeV). Intenzitet zračenja

zavisi od aktivnosti sunca tj. eksplozija na površini. Fluks ovog zračenja je oko 20ak puta manji od galaktičkog, ali usled intenzivne aktivnosti može naglo da poraste i do 1000 puta.

4. Međuplanetarno kosmičko zračenje – sastoji se od čestica ubrzanih termalnim udarnim talasima na ivici heliosfere ili međuplanetarnom prostoru.

Sekundarno kosmičko zračenje

Pod sekundarnim kosmičkim zračenjem se podrazumeva skup mnoštva čestica koje se proizvode u vidu kaskadnog pljuska. Kaskadni pljusak nastaje jer jedna visoko energetska čestica primarnog kosmičkog zračenja, prilikom udara u atome u gornjem sloju atmosfere, pokreće niz reakcija i kreaciju većeg broja sekundarnih kosmičkih zraka. U ovim interakcijama se najviše proizvode pioni, a manje kaoni i drugi mezoni i hadroni. Neutralni pioni se neposredno raspadaju na visokoenergetske fotone, dok se nanelektrisani pioni i kaoni raspadaju na mione i neutrina. Deo miona se raspade u atmosferi, a ostatak dospeva na Zemljinu površinu. Broj, odnosno intenzitet, čestica koje dospeju na površinu Zemlje zavisi od energetskog spektra i kompozicije primarnog kosmičkog zračenja. Na nivou mora relativni intenzitet zračenja miona, neutrona, elektrona, protona i piona se respektivno odnose kao:

$$1 : 0.34 : 0.24 : 0.009 : 0.0007$$

Svojstva sekundarnog kosmičkog zračenja

Atmosfera

Rasprostranjenost čestica kroz atmosferu zavisi od fluksa i energije čestica, kao i od njihovih interakcija i strukture atmosfere. Osnovni značajan parametar atmosfere je količina materije iznad sloja atmosfere u kojem čestica interaguje. Ova veličina se naziva atmosferska dubina. Verovatnoća da čestica interaguje sa jezgrom u beskonačno malom sloju atmosfere dx na dubini x je $dx/\lambda(E)$, gde je $\lambda(E)$ srednji slobodni put čestice. Obe veličine x i $\lambda(E)$ izražavaju se u g/cm^2 . Atmosferska dubina se meri od vrha atmosfere duž putanje čestice i naziva se nagibna dubina.

Srednji slobodni put ili interakciona dužina λ je

$$\lambda = \frac{A}{N_A \sigma_{air}}$$

(1.1)

gde je σ_{air} efikasni presek za interakciju sa jezgrom vazduha i A srednji atomski broj vazduha ($A \approx 14.5$). U slučaju nukleona energije reda TeV , efikasni presek za interakciju je $\sigma_{air} \approx 300 \text{ mb}$, pa je srednji slobodni put $\lambda_N \approx 80 \text{ g/cm}^2$.

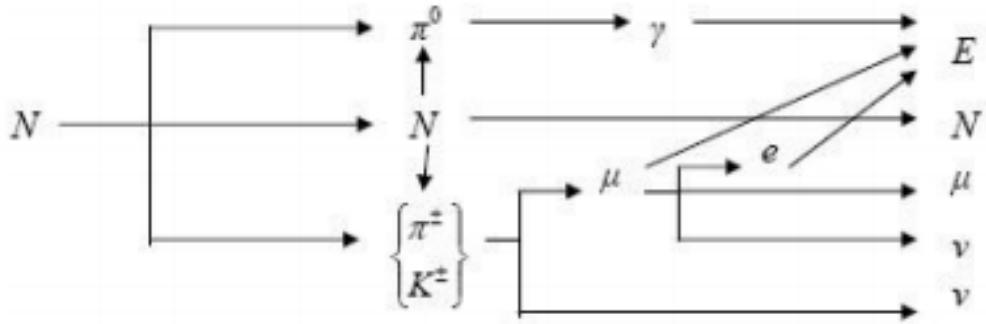
Komponente sekundarnog kosmičkog zračenja

Komponente sekundarnog kosmičkog zračenja se mogu kategorisati na više načina. U zavisnosti od toga da li se zračenje apsorbuje jako ili slabo, razlikujemo meku i tvrdnu komponentu. Meku komponentu čine čestice niskih energija koje se apsorbuju u olovu debljine 15 cm , odnosno elektroni i fotoni. Primarni fotoni nastaju raspadom π^0 mezona. Oni zatim mogu da vrše kreiranje para elektron-pozitron u okolini jezgra. Dalje pozitronskim raspadom dobijamo novo gama zračenje, a elektron može da emituje zakočno zračenje. Tvrda komponenta zračenja prolazi kroz 15 cm olovne zaštite i čine je teže čestice. Na malim nadmorskim visinama su to mioni.

Prema tipu interakcije čestica sa materijom, razlikujemo nukleonsku i elektromagnetnu komponentu sekundarnog zračenja. Nukleonska komponenta se sastoji od neutrona i protona. Elektromagnetnu komponentu čine elektroni, pozitroni i fotoni. Pioni, kao i mioni koji nastaju njihovim raspadom, ponekad se svrstavaju u posebnu mezonsku komponentu, koja je ekvivalentna tvrdoj komponenti. Mioni niskih energija mogu doprineti i elektromagnetnoj komponenti, svojim raspadom ili proizvodnjom δ -elektrona.

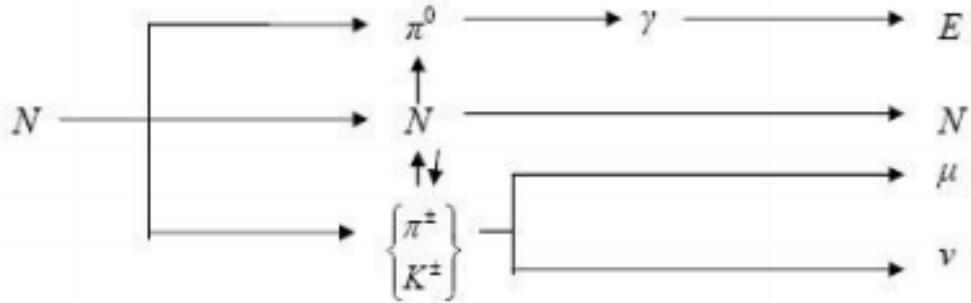
Veze između različitih komponenti sekundarnog kosmičkog zračenja mogu se prikazati na sledeće načine:

a) za niske energije primarne čestice:



Slika 1.1 Šema veze među različitim komponentama sekundarnog kosmičkog zračenja za nisku energiju primarne čestice

b) za visoke energije primarne čestice:



Slika 1.2 Šema veze među različitim komponentama sekundarnog kosmičkog zračenja za visoku energiju primarne čestice

Kao što je već spomenuto, u interakcijama nukleona i težih jezgara u atmosferi nastaje veliki broj piona. Proces stvaranja sekundarnih piona u nuklearnim interakcijama se naziva pionizacija kosmičkog zračenja. Stvaraju se neutralni i nanelektrisani pioni. Neutralni pioni se zatim raspadaju na parove fotona visokih energija, koji zatim generišu kaskadni pljusak elektromagnetne komponente:

$$\pi^0 \rightarrow \gamma + \gamma.$$

(1.2)

Nanelektrisani pioni se raspadaju na mione i neutrina:

$$\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu,$$

(1.3)

$$\pi^- \rightarrow \mu^- + \widetilde{\nu}_\mu.$$

(1.4)

Jedan deo miona se dalje raspada na elektrone i neutrina:

$$\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \widetilde{\nu}_\mu,$$

(1.5)

$$\mu^- \rightarrow e^- + \widetilde{\nu}_e + \nu_\mu.$$

(1.6)

Elektroni ulaze u sastav elektromagnetne komponente, a neutrina prolaze kroz atmosferu i Zemlju uglavnom bez interakcije. U elastičnim sudarima sa jezgrima neutrina i antineutrina mogu indukovati druge čestice:

$$\nu_\mu + n \rightarrow p + \mu^-, \quad (1.7)$$

$$\widetilde{\nu_\mu} + p \rightarrow n + \mu^+; \quad (1.8)$$

$$\nu_e + n \rightarrow p + e^-, \quad (1.9)$$

$$\widetilde{\nu_e} + p \rightarrow n + e^+. \quad (1.10)$$

Pored piona, u ovim proesima nastaju i manje količine kaona. Neutralni i nanelektrisani kaoni imaju više kanala raspada, ali najznačniji za kosmičko zračenje su:

$$K^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu, \quad (1.11)$$

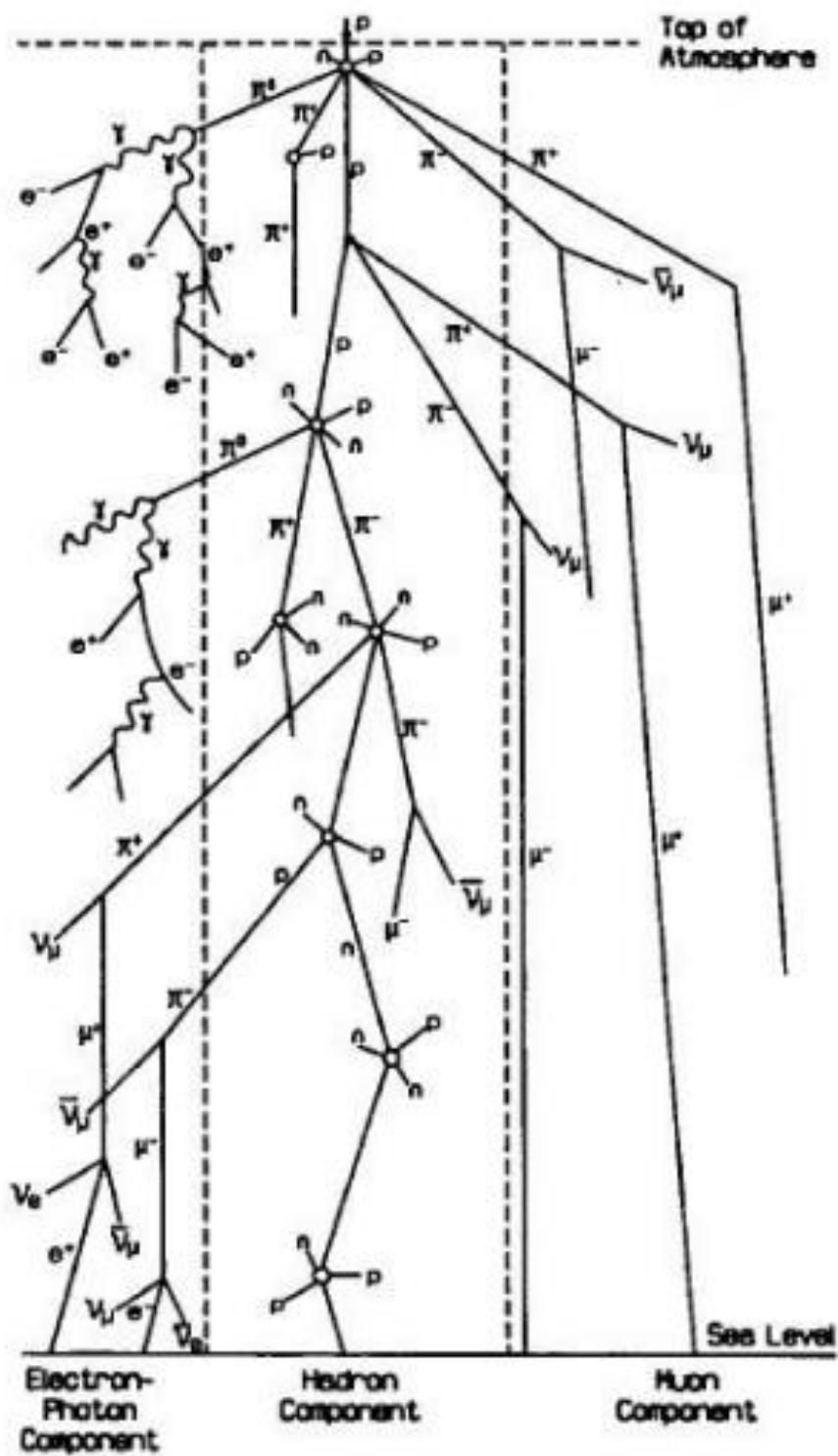
$$K^- \rightarrow \mu^- + \widetilde{\nu_\mu}; \quad (1.12)$$

$$K^+ \rightarrow \pi^+ + \pi^0, \quad (1.13)$$

$$K^- \rightarrow \pi^- + \pi^0; \quad (1.14)$$

$$K^0 \rightarrow \pi^+ + \pi^-, \quad (1.15)$$

$$K^0 \rightarrow \pi^0 + \pi^0. \quad (1.16)$$



Slika 1.3 Dijagram kaskadnog pljuska čestica sekundarnog kosmičkog zračenja [Joković, 2011]

2 Detektori zračenja

Detektori zračenja predstavljaju uređaje koji mogu da registruju jonizujuće ili neutronsko zračenje, kao i da mere osobine zračenja. Detektori mogu služiti samo da daju informaciju da li postoji izloženost zračenju. Malo složeniji uređaji mogu meriti i određene karakteristike zračenja. Najčešće karakteristike koje se mere su intenzitet i tip zračenja. Takođe, postoji razlika šta nas zanima u zavisnosti od toga da li se radi o fotonima ili o česticama. Kod fotona se obično meri njihova energija, dok se kod čestica može utvrđivati energija, brzina, nanelektrisanje, masa, srednji život, spin, magnetni momenat. Informacije o karakteristikama zračenja mogu da nam pomognu prilikom utvrđivanja strukture jezgra koje je emitovalo mereno zračenje. [Krmr, 2013]

U samom detektoru se dešava interakcija zračenja sa materijom. Kao rezultat ove interakcije dobija se neki signal ili slika, koji se dalje obrađuje na određeni način i dobija se informacija o karakteristikama zračenja. Deo detektora sa kojim zračenje može da interaguje se naziva osetljiva zapremina detektora i njena veličina može da varira.

Postoji više podela detektora, a jedna od njih je na integralne i diferencijalne:

- Integralni detektori mere ukupan efekat prolaska zračenja kroz neku sredinu. Ovim detektorima se može izmeriti ukupan intenzitet zračenja, pa se često koriste kao dozimetri.
- Diferencijalni detektori imaju mogućnost da registruju pojedinačne čestice zračenja.

U zavisnosti od tipa informacije koju detektor daje, mogu se podeliti na električne i optičke:

- Električni detektori proizvode naponski signal kao rezultat interakcije zračenja sa detektorom. Ovi detektori najčešće služe za dobijanje informacija o tipu, energiji, brzini detektovanih čestica.
- Optički detektori prikazuju putanju kojom se kretala neka čestica zračenja, kao i čestice koje su do bile dovoljnu energiju da vrše dalju jonizaciju. Ovi detektori služe za dobijanje informacije o pravcu kretanja neke čestice, njenim interakcijama i geometrijskim uslovima pod kojima su se sudari i raspadi odigrali. [Krmr, 2013]

Svaka vrsta detektora poseduje svoje osobine u zavisnosti od kojih se utvrđuje koliko je taj detektor dobar. Osnovne karakteristike detektora su:

- Efikasnost – sposobnost detektora da registruje što je moguće veći broj čestica koje su na njega pale; najčešće se izražava u procentima.
- Energetska rezolucija – sposobnost detektora da razlikuje dve različite čestice bliskih energija.
- Vremenska rezolucija – vreme koje je potrebno da prođe da detektor nakon registrovanja jedne čestice bude u mogućnosti da prihvati drugu česticu i tretira je kao nezavistan događaj.
- Efikasna zapremina - deo prostora koji nakon interakcije može da proizvede signal ili trag.
- Osetljivost – sposobnost detektora da registruje i male intenzitete zračenja.

Scintilacioni detektori

Rendgen je primetio da X-zračenje može da pobudi neke materijale na svetlucanje, a ustanovljeno je takođe da zračenje koje emituju nestabilna jezgra takođe mogu da izazovu ovaj efekat. Ovaj efekat je korišćen kod prvih tipova detektora koji su se sastojali od kartona na kojem se nalazi tanak sloj cink-sulfida (ZnS). Cink-sulfid ima sposobnost luminescencije, tj. da emituje vidljivu svetlost ukoliko mu se atomi pobude ili jonizuju. Interakcije alfa i beta čestica bi sa cink-sulfidom izazvale vidljive scintilacije, a istraživači su ih posmatrali i prebrajali sitne iskre. [Krmar, 2013]

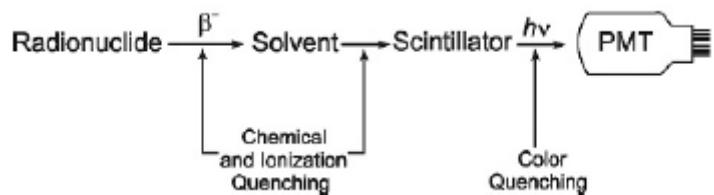
Najveći problem kod ovih detektora je bio što su uglavnom materijali od kojih su pravljeni detektori bili neprozirni za sopstvenu svetlost. Talasna dužina svetlosti koju telo apsorbuje, jednaka je talasnoj dužini koju telo emituje. Da bi se dobili scintilacioni detektori kod kojih je cela zapremina upotrebljena bilo je potrebno pronaći materijale koji su prozirni za sopstveni svetlost. Ovo je omogućilo registriranje beta i gama zračenja, pošto oni imaju znatno veću prodornu moć od alfa čestica pa im je verovatnoća da dožive interakciju sa tankim slojem ZnS proporcionalno manja.

Materijali koji su prozirni za sopstvenu svetlost su organski scintilatori. Mogu biti u kristalnoj formi (naftalin, antracen) ili u tečnoj formi (ksilen, toluen). Scintilacioni materijali mogu da se rastvaraju u organskim tečnostima i tako se dobijaju tečni scintilatori. U ovom slučaju se energija koju zračenje ostavi u rastvaraču prenosi do scintilatora koji emituje odgovarajući intenzitet svetlosti.

Tečna scintilaciona spektroskopija

Liquid scintillation counting (LSC) ili *liquid scintillation analysis* (LSA) je postala veoma popularna nauka za detekciju i kvantitativno merenje radioaktivnost još od ranih 1950-ih. Tehnika se najviše koristila za ispitivanja u prirodnim naukama i okoline. Mnogi principi tečne scintilacione spektroskopije se koriste u monitoringu niskih radioaktivnosti u ljudskom okruženju, detekciji raspada u nuklernoj fizici, kao i merenju viših nivoa radioaktivnosti koji se koriste u istraživanju, i upotrebi radioizotopa [L'Annunziata, 2012].

LSC uređaji se najviše koriste za analizu alfa i beta emitera, ali se mogu upotrebiti i za detekciju i analizu radionuklida koji emituju γ -, X-zrake, neutrone, konverzionate elektrone itd. Za detekciju α -čestice im je efikasnost skoro 100 %, dok je za detekciju β -čestica manja, i opada sa smanjenjem energije β -čestice. LSC uređaji se sastoje od scintilatora, fotomultiplikatora i elektronskog uređaja za pojačavanje i obradu signala.



Slika 2.1 Osnovni proces tečne scintilacione spektroskopije [L'Annunziata, 2012]

Kvantitativne karakteristike radijacije se mogu dobiti detekcijom fluorescencije, koja je posledica deeksitacije u rastvorima organskih jedinjenja prilikom izlaganja nuklearnoj radijaciji. Ovu fluorescentnu svetlost je moguće konvertivati u fotomultiplikatorskim cevima. U početku su se LSC uređaji koristili za merenje aktivnosti radioizotopa ^3H , ^{14}C i ^{32}P koji su se koristili u medicini kao obeleživači. Za merenje prirodne ^{14}C aktivnosti počeli su da se upotrebljavaju 50-ih godina prošlog veka [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]. Uvođenjem koincidentnih LSC uređaja, sa dva fotomultiplikatora, detekcija se zasniva na principu dve naspramne fotomultiplikatorske cevi koje detektuju lavinu fotona, a koincidentna elektronika omogućuje detekciju impulsa, ako oba fotomultiplikatora zabeleže tok fotona istovremeno (unutar 20 ns). Na ovaj način se smanjuje uticaj pozadinskog zračenja i šuma gotovo za red veličine u odnosu na jedan fotomultiplikator. Takođe se poboljšava rezolucija spektara radioaktivnih izotopa [Stojković, 2015].

Osobine scintilatora

Kako bi scintilator bio dobar, on mora što veći deo energije upadnog zračenja konvertovati u trenutnu fluorescenciju sa što manjim delom odložene fluorescencije i fosforescencije.

Važna osobina scintilatora je transformacija izgubljene energije jonizujućeg zračenja u vidljivu svetlost (fluorescenciju). Ovo svojstvo se naziva konverzija ili scintilaciona efikasnost S . Scintilaciona efikasnost će zavistiti od vrste i energije ionizujućeg zračenja. Definiše se kao odnos između izgubljene energije čestice po jedinici puta na izračenu svetlost tj. fluorescenciju $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}$, i odgovarajuće izubljene energije na ionizaciju $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion}$:

$$S = \frac{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{sv}}{\left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion}}.$$

(2.1)

Konkurentni procesi scintilacijama su relaksacije neradijativnim putem, kojima doprinose nečistoće u scintilatorima: pretvaranje energije pobude u topot ili kroz vibracije rešetke.

Tečni organski scintilatori se dobijaju rastvaranjem primarnih organskih scintilatora u odgovarajućim rastvaračima, uz eventualni dodatak sekundarnih rastvorenih scintilatora koji pomeraju emitovani spektar radi boljeg poklapanja spektralnom osetljivošću fotomultiplikatora. Ako se radioizotopi rastvore u ovim scintilatorima, emitovane čestice koje prolaze kroz rastvor mogu da budu detektovane sa efikasnošću od 100 %, jer je obezbeđena 4π geometrija. Ove vrste scintilatora se najčešće koriste u merenjima koncentracija aktivnosti niskoenergetskih β -emitera kao što su ^{14}C i ^3H , kao i u detekciji kosmičkih zraka [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018].

Scintilacioni procesi u organskim scintilatorima

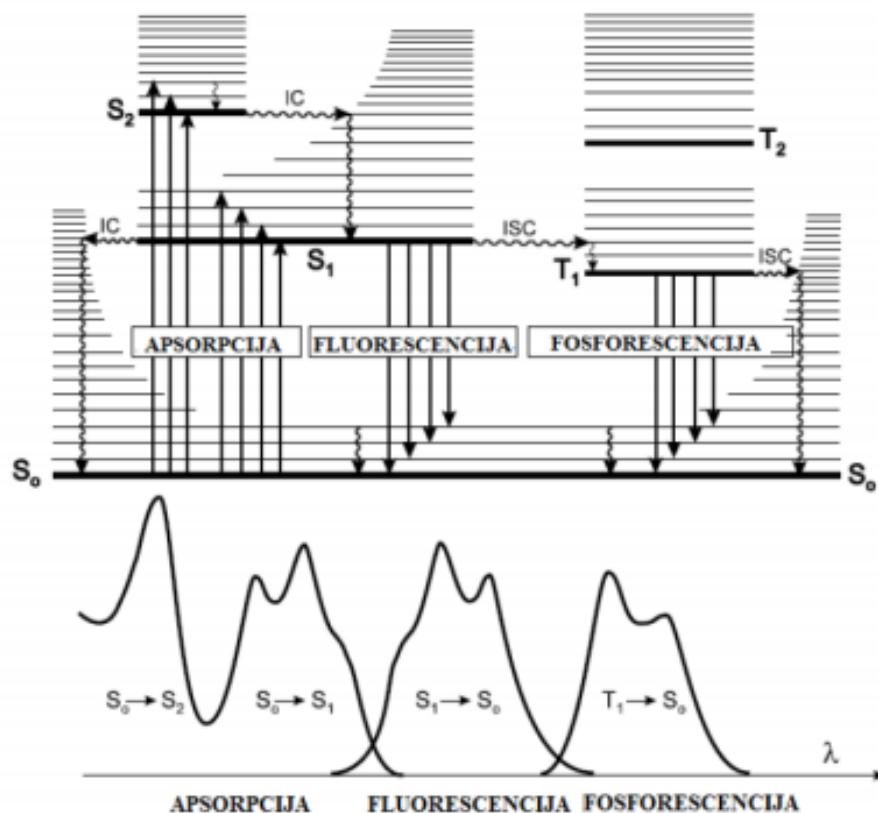
LSC tehnika podrazumeva smeštanje radioaktivnog uzroka, rastvorenog u organskom rastvaraču ili u vodi, u staklene bočice (viale), u koje se dodaje scintilacioni koktel tako da se dobije homogeni rastvor za merenje.

Ionizujuće zračenje pri interakciji sa nekim materijalom stvara jonske parove, pobuđene molekule, slobodne radikale, sekundarne čestice, i povećava energiju molekula (vibracionu, rotacionu i kinetičku).

Fluorescencija

Ako se emisija svetlosti kod molekula pobuđuje netermalnim putem, radi se o luminescenciji, koja se naziva fotoluminescencija ukoliko je pobuđivanje optičko. Luminescencija u tečnim scintilacionim koktelima podrazumeva emisiju fotona koja prati ekscitaciju molekula nakon apsorpcije energije koja ne potiče od nuklearnog zračenja. Jedan od vidova luminescencije je fluorescencija, kod koje u emisionim prelazima učestvuju samo singletni termovi (stanja). Proces fluorescencije u organskim materijalima nastaje kao posledica prelaza između energetskih nivoa u molekulu nezavisno od fizičkih uslova u kojima se molekul nalazi, dok se u kristalima neorganskih scintilatora (NaI) scintilacioni proces odvija isključivo u uređenoj kristalnoj rešetki.

Fluorescentni spektar (Slika 2.2), odnosno spektralna raspodela intenziteta fluorescencije je nezavisna od talasne dužine pobuđivačke svetlosti. Drugim rečima, svejedno je da li molekul pri pobuđivanju fluorescencije prelazi u najniže pobuđeno elektronsko stanje (S_1) ili u neko od viših stanja (S_2, S_3 , itd.). Eksperiment pokazuje da fluorescencija uvek nastaje pri prelazu iz najnižeg pobuđenog singletnog stanja u osnovno singletno stanje, tj. odgovara prelazu $S_1 \rightarrow S_0$.

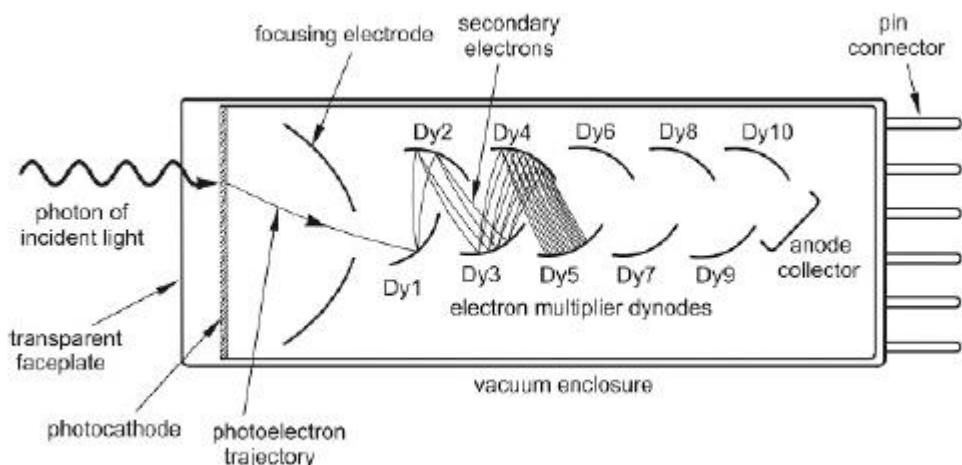


Slika 2.2 Šema i spektar apsorpcije, fluorescencije i fosforescencije [Martinović, 2015]

Na osnovu izloženog mora se predpostaviti da pobuđeni molekuli pre fluorescentne emisije, za veoma kratko vreme (oko 10^{-12} s) putem neemisionih prelaza, koji su na Slici 2.2 prikazani talasastim linijama, prelaze u prvo pobuđeno singletno stanje S_1 . Srednji život trajanja fluorescentnog stanja S_1 je reda 10^{-8} s, što je ujedno i srednje vreme trajanja fluorescentne emisije po prestanku njenog pobuđivanja.

Fotomultiplikatori

Određen broj nastalih kvanata (broj zavisi od prozračnosti kristala za sopstvenu svetlost, kao i od kontakta scintilatora i fotomultiplikatora) dolazi na fotokatodu fotomultiplikatora. Prilikom pada na fotokatodu, fotoni iz nje izbacuju elektrone. Mlaz elektrona dolazi do sistema dinoda i pojačava se nekoliko redova veličine pomoću rastućeg električnog polja. Razdnelnici napona su zasluzni za raspodelu potencijala. Izabrani korak porasta napona duž sistema dinoda se bira pomoću razdelnika napona, sve do anode koja se nalazi na najvišem potencijalu. Izlazni impuls se dovodi na ulaz elektronskog pojačavača, gde se pojačava, a zatim ili odbrojava ili analizira.



Slika 2.3 Šema fotomultiplikatorske cevi [L'Annunziata, 2012]

Faktor pojačanja, G , fotomultiplikatora od n dinoda zavisi od koeficijenta sekundarne emisije svake dinode m :

$$G = m^n.$$

(2.2)

Koeficijent m zavisi od geometrije, od napona između dve sukcesivne dinode i od materijala od kog su dinode napravljene. Ako se znaju statistički karakteri pojedinih procesa, broj elektrona na izlazu anode je:

$$Z = \gamma N \eta G , \quad (2.3)$$

gde je:

γ – kvantni izlaz fotokatode ($\gamma = 0.01 - 0.35$);
 N – broj kvanata koji su dospeli na fotokatodu;
 η – koeficijent sakupljanja fotoelektrona na prvoj dinodi ($\eta = 0.2 - 1$). [Stojković, 2015]

Quantulus 1220TM

Quantulus 1220TM (*Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer*, proizvođač Perkin Elmer) je tečni scintilacioni spektrometar koji može da meri veoma niske nivoje radioaktivnosti (veštačkih, kosmičkih i drugih prirodnih radionuklidâ). Koristi se za detekciju α - i β - zračenja, Čerenkovljevog zračenja, X-zraka, luminescencije i γ - zračenja. Osnovne prednosti Quantulus-a u odnosu na druge tipove detektora:

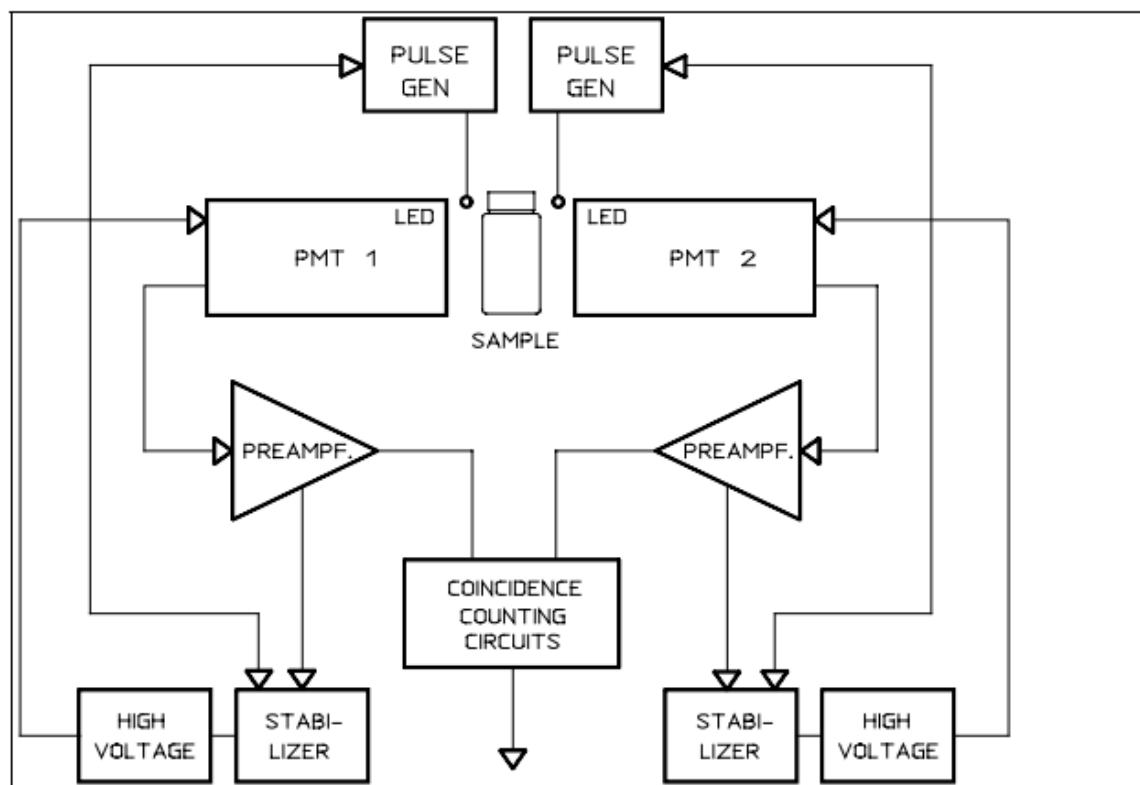
- mogućnost razdvajanja α - i β - spektara;
- visoka stabilnost, i pri dugom vremenu merenja;
- optimalna pasivna atenuacija kosmičkog zračenja i zračenja iz okoline (olovna zaštita sa niskom radioaktivnošću);
- jednostavna priprema uzorka (mešanje uzorka sa scintilacionim koktelima);
- mogućnost detekcije radona.

Quantulus je konstruisan od niskoaktivnih materijala, i zbog toga omogućuje merenje niskih nivoa radioaktivnosti u okolini, kao i datiranje izotopom ^{14}C . Takođe, tricijum ^{3}H se može meriti tehnikama tečne scintilacione spektroskopije (LSC).

Maksimalna zapremina uzorka je 20 ml, mada se raznim tehnikama za obogaćivanje uzoraka mogu postići i veće zapremeine i veća osjetljivost. Uzorci se mere u ciklusima po nekoliko puta uz slobodu izbora protokola i redosleda merenja, a na kraju merenja se računa prosečna vrednost rezultata. Moguće je i zadati vreme merenja individualno za svaki uzorak, što omogućuje monitoring stabilnosti i uzorka i instrumenta, kao i detekciju eventualnih varijacija pozadinskih efekata, pa je samim tim i merenje pouzdano.



Slika 2.4 Quantulus 1220™ [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer]



Slika 2.5 Automatska stabilizacija kontinualnog spektra (ACSS) - Wallac instrumenti
[Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer]

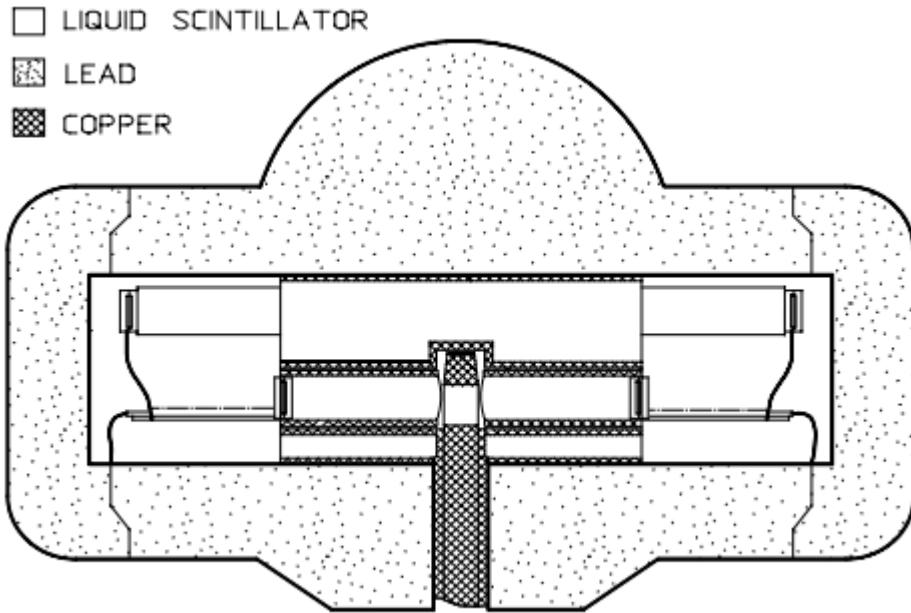
Detektorska zaštita

Kako bi se postigla što niža granica detekcije zračenja, instrument mora biti stabilan tokom dugih vremenskih perioda brojanja i pozadinski efekti moraju biti maksimalno umanjeni. Oko komore sa vialima Quantulus ima ugrađen sistem redukcije pozadinskog zračenja, koji se sastoji od pasivne i aktivne zaštite.

Pasivnu zaštitu čine masivna asimetrična olovna zaštita (niske radioaktivnosti) koja atenuira veći deo γ -zračenja iz okoline i meku mionsku komponentu kosmičkog zračenja, i sloj bakra koji apsorbuje X-zračenje i termalne neutrone koji nastaju u olovu interakcijom kosmičkih zraka. Olovna zaštita težine 630 kg, najdeblja je direktno iznad komore za merenje, oko 20 cm, dok zračenje sa donje strane komore atenuira zemlja pa je tu zaštita debljine 15 cm. Bočne strane komore zaštićene su od zračenja iz okruženja detektora slojem 7-11 cm olova. Pasivna zaštita ne uklanja tvrdnu mionsku komponentu kosmičkog zračenja ni visokoenergetsko γ -zračenje [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002].

Aktivna zaštita je asimetrični tečni scintilacioni detektor. Zaštita je u obliku cilindra u kome se nalazi beta detektor. Debljina scintilatora je najveća iznad brojačke komore i fotomultiplikatorskih cevi. Aktivnu komponentu zaštite predstavlja scintilator na bazi mineralnog ulja. Dve fotomultiplikatorske cevi se koriste za detekciju scintilacija u zaštiti. Brze kosmičke čestice mogu da izazovu Čerenkovljevo zračenje u staklu fotomultiplikatorskih cevi. Kako bi se izbeglo da ovo zračenje bude prihvачeno od strane Quantulus-a, aktivna zaštita takođe prekriva i fotomultiplikatorske cevi.

Jonizujuće zračenje, koje prolazi kroz materijal, ostavlja trag u njemu u vidu pobuđenih atoma i molekula. U aktivnoj zaštiti ovi pobuđeni atomi i molekuli mogu da izazovu scintilacije, koje su detektovane od strane fotomultiplikatorskih cevi zaštitnog detektora. Impuls u zaštitnom detektoru aktivira logički signal. Ako je signal u koincidenciji sa impulsom beta detektora, to se može iskoristiti ili da se spreči A/D konverzija impulsa ili da se izabere polovina memorije višekanalskog analizatora i da se omogući da konvertovani impuls bude smešten u drugom delu (Half 2) višekanalskog analizatora (^{14}C mod merenja) [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002].



Slika 2.6 Šema aktivne i pasivne zaštite u Quantulus-u 1220TM [L'Annunziata, 2012]

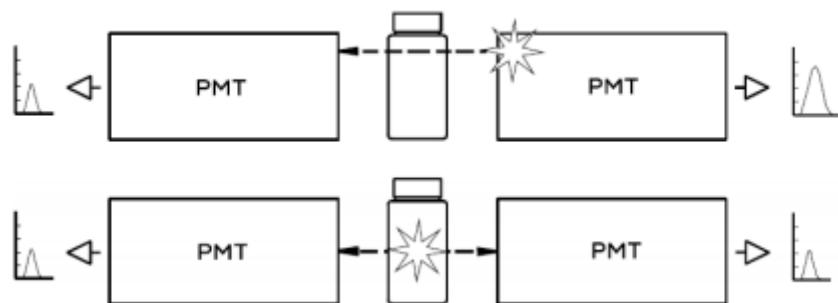
U Quantulus-u se nalaze dva fotomultiplikatora za detekciju pozadinskih efekata i dva zasebna za odbroj koincidentnih događaja. Komora sa uzorkom je zatvorena unutar zaštitnog detektor-a, a uzorak, kao i detektorov štit, optički su izolovani jedan od drugog i tako doprinose redukciji pozadinskih efekata. Svaki događaj detektovan ovim detektorom simultano sa detektorom uzorka ne prihvata se kao događaj u uzorku. Detektor uzorka, tj. dva fotomultiplikatora oko uzorka rade u antikoincidentiji sa zaštitnim detektorom sa dva fotomultiplikatora oko zaštite.

Aktivna zaštita redukuje pozadinske efekte bez gubitaka u efikasnosti detekcije, a obezbeđuje odlična merenja čak i u području sa značajnom aktivnošću u okruženju (u okolini Černobila npr.). Izolacija između zaštitnog detektor-a i detektora uzorka omogućuje koincidentno brojanje događaja.

Poređenje amplituda impulsa (PAC)

PAC smanjuje komponentu pozadinskog zračenja koja je izazvana optičkim „crosstalk“-om, odnosno mešanjem elektromagnetskih signala u toku LSC merenja. Veliki deo pozadinskog zračenja u LSC merenjima nastaje fluorescencijom ili Čerenkovljevim efektom u fotomultiplikatorima zbog kosmičkog zračenja, γ -zračenja iz okoline i ostataka radioaktivnih nečistoća u materijalima od kojih su konstruisani detektori.

Korisnik može da podesi PAC nivo od 1-256 (1 znači da je PAC kolo isključeno), koji odgovara manjim/većim odnosima amplituda, koji su u opsegu od vrednosti bliskih nuli do oko 0.8 [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002]. Poređenje amplituda impulsa je posebno efikasno u slučaju upotrebe staklenih viala u kojima se mere ^{14}C uzorci sa niskim nivoom prigušenja.



Slika 2.7 Osnovni princip rada PAC-a [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer]

3 Radiokarbon

Prilikom ispitivanja radiokarbona (^{14}C) pomoću Quantulus-a je potrebno da pozadinsko zračenje ima što manji uticaj na rezultat ispitivanja. ^{14}C daje rezultate niskih intenziteta, pa svako dodatno detektovano zračenje može da dovede do pogrešnih rezultata.

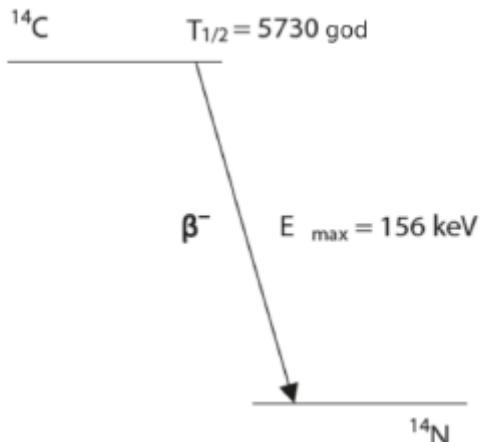
Ukupan sadržaj ugljenika na Zemlji iznosi oko $1.6 \cdot 10^{21} \text{ kg}$, a od toga se oko $4.1 \cdot 10^{16} \text{ kg}$ razmenjuje između atmosfere, biosfere i okeana. Deo ugljenika koji se nalazi u atmosferi je u obliku ugljen-dioksida (CO_2), dok je samo 1 % ugljenika u obliku ugljen-monoksida, metana i drugih jedinjenja. [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Jezgro ^{14}C je nestabilno i raspada se β^- raspadom na jezgro ^{14}N :



(3.1)

Maksimalna energija beta raspada iznosi 156 keV, a raspodeljuje se na emitovani elektron (β^- čestica) i antineutrino ($\bar{\nu}$). Srednja energija beta čestica ^{14}C iznosi 45 keV. Šema raspada radioaktivnog izotopa ugljenika ^{14}C prikazana je na Slici 3.1.



Slika 3.1 Šema raspada ^{14}C [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

U okolini ^{14}C potiče od tri glavna izvora:

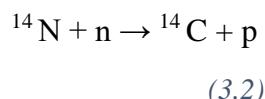
- usled prirodne proizvodnje ^{14}C interakcijom kosmički proizvedenih neutrona sa atmosferskim azotom u gornjim slojevima atmosfere
- veštački proizведен ^{14}C prisutan u okruženju usled testiranja nuklearnog oružja
- ispuštanjem iz nuklearnih elektrana

Za potrebe ovog diplomskog rada od interesa je samo prirodno proizveden ugljenik ^{14}C koji ima male aktivnosti, te je za njegovu detekciju potrebna niska vrednost pozadinskog zračenja.

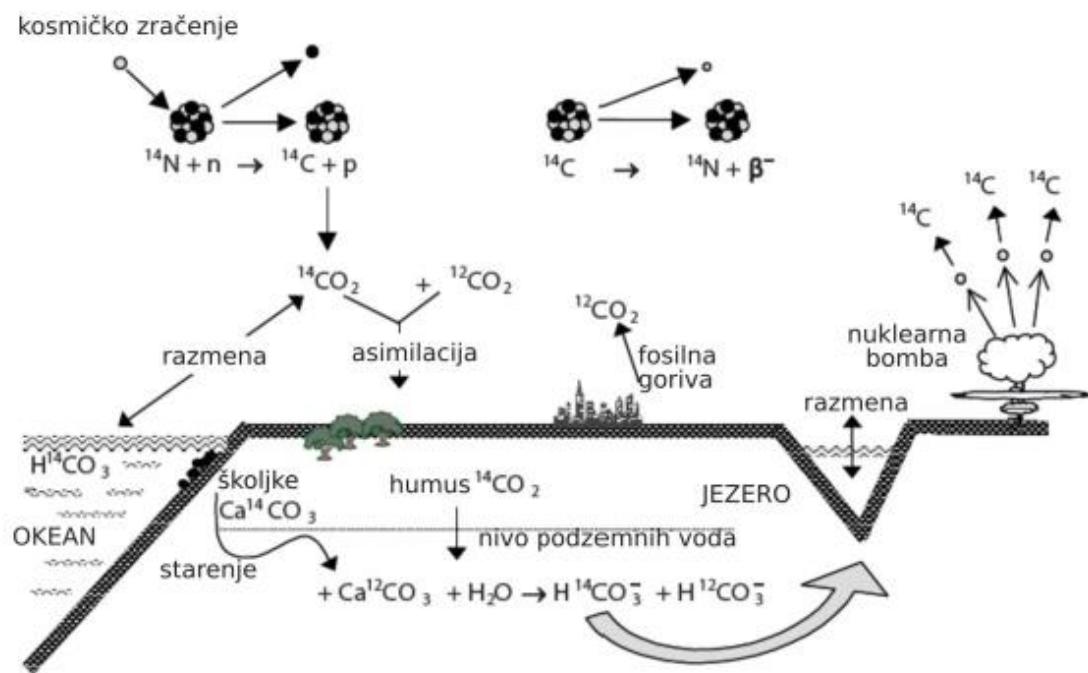
Kosmička produkcija ^{14}C

Radioaktivni izotop ugljenika proizvodi se u prirodi na visini od oko 12 km u zoni između stratosfere i troposfere nuklearnom reakcijom $^{14}\text{N}(\text{n},\text{p})^{14}\text{C}$ koja je izazvana kosmičkim neutronima. Procenjuje se da godišnja produkcija prirodnog ^{14}C iznosi $1.4 \cdot 10^6$ GBq. Sadržaj ^{14}C u atmosferi je oko $1.4 \cdot 10^8$ GBq, dok je u okeanima znatno viši (oko $1.0 \cdot 10^{10}$ GBq) i izmenjuje se sa atmosferskim ugljenikom.

Efikasni presek za nuklearnu reakciju $^{14}\text{N}(\text{n},\text{p})^{14}\text{C}$ iznosi 1.83 barna. Neutroni koji su proizvedeni kosmičkim zračenjem sa energijama između 5-10 MeV dostižu termalne energije sudarima sa molekulima vazduha. Ako ovi neutroni imaju energije u opsegu između 0.4 do 1.6 MeV dolazi do proizvodnje ^{14}C :



Ovako formirani ^{14}C veoma brzo oksidiše u ^{14}CO , i na kraju u $^{14}\text{CO}_2$ koji se potom meša sa atmosferskim CO_2 . Najveći deo $^{14}\text{CO}_2$ molekula ulazi u okean i morske organizme, dok jedan deo proizvedenog $^{14}\text{CO}_2$ asimiliraju biljke, tako da svi živi organizmi sadrže istu koncentraciju ^{14}C kao i atmosferski CO_2 . U atmosferi se raspadi radioaktivnog ugljenika konstantno nadoknađuju novim atomima ^{14}C nastalih reakcijom $^{14}\text{N}(\text{n},\text{p})^{14}\text{C}$, a zbog prirodnog ciklusa ugljenika u živim organizmima uspostavlja se ravnoteža unosa i raspada ^{14}C atoma, pa specifična aktivnost ^{14}C ostaje nerpomenjena.



Slika 3.2 Raspolagača ^{14}C u prirodi [Todorović, Nikolov, Stojković, 2018]

Pozadinsko zračenje

Detektorski sistem koji omogućava detekciju retkih događaja niskih intenziteta se naziva niskofonski sistem. Ovakvi sistemi uglavnom postoje u podzemnim laboratorijama, kako bi se izbegla detekcija pozadinskog zračenja. Niskofonski sistemi imaju mogućnost detekcije zračenja niskog intenziteta smanjenjem pozadinskog i nepoželjnog zračenja, odnosno fona. Fon predstavljaju sve vrste događaja, mogu biti prirodne ili veštačke, koje detektor prikuplja, a nisu od važnosti u merenjima. Detekcijom ovih događaja, smanjuje se preciznost merenja kao i prag detekcije pa ih je potrebno eliminisati. Osnovni principi za smanjenje fona jesu koršćenje raznih oblika zaštite. Najjednostavniji i široko primjenjeni način zaštite detektora od pozadinskog zračenja je na primer korišćenje zaštite od olova, bakra ili kalaja, kao i postavljanje detektora u zaštićene prostorije ili u podzemne laboratorije.

Osnovne komponente fona se mogu podeliti u grupe:

1. prirodna radioaktivnost koja potiče iz okoline u kojoj se nalazi detektor
2. radioaktivnost materijala od koga je izrađen detektor
3. radioaktivnost materijala od koga je napravljen štit
4. radon i njegovi potomci

5. kosmičko zračenje

Kosmičko zračenje predstavlja fonsku komponentu koja je od najvećeg značaja za merenja.

Linije koje se javljaju u fonskom spektru potiču od prirodne radioaktivnosti. Članovi radioaktivnih nizova nakon raspada emituju gama zračenje. Nakon što se neko nestabilno jezgro raspadne emisijom alfa ili beta čestica, novonastalo jezgro se može naći u pobuđenom stanju. Pobuđeno jezgro se oslobađa viška energije i prelazi u osnovno stanje emisijom gama kvanata. Gama zračenje koje odgovara nekom određenom procesu ima tačno određenu energiju i zato daje linije u spektru.

Kontinualni deo fonskog spektra najčešće potiče od interakcije miona. Mioni ostavljaju veliki deo svoje energije kontinualnom delu spektra, preko raznih elektromagnetskih procesa. Najveći deo svoje energije mioni gube putem ionizacije atoma sredine kroz koju se prostiru. Mionima stvoreni joni i elektroni mogu gubiti energiju ionizacijom, zakočnim zračenjem itd. Sam mion takođe može gubiti energiju zakočnim zračenjem.

Meka komponenta kosmičkog zračenja se veoma uspešno uklanja štitom detektora od teških metala. Tvrda komponenta predstavlja problem, jer veoma lako prolazi kroz štit i time predstavlja najveću komponentu fona kosmičkih zraka. Zaštita od neutrona iz sekundarnog kosmičkog zračenja se postiže postavljanjem detektora u zgradu ili ispod zemlje.

Prilikom zaštite od mionskog zračenja mogu se koristiti antikosmički detektori. Oni predstavljaju detektorske sisteme koji okružuju osnovni detektor i služe za ranu detekciju miona, a ovako nastali događaji se sinhronizuju sa rezultatima glavnog detektora i automatski su izbačeni. Najefikasniji antikosmički detektori su plastični scintilacioni detektori ili veliki proporcionalni brojači koji se postavljaju izvan štita osnovnog detektora.

Jedina komponenta od koje nema adekvatne zaštite je dakle mionsko zračenje, odnosno neutroni koje ono stvara. Mioni nižih energija predstavljaju problem na površini, a mioni viših energija problem u dubinskim laboratorijama.

Izvori pozadinskog zračenja

Postoji mnogo izvora pozadinskog zračenja u tečnim scintilacionim detektorima. Glavna podela je između onih koji nastaju u tečnim scintilacionim rastvorima i onih koji nisu povezani sa scintilacionim rastvorima.

IZVOR	DOPRINOS
Materijali tečnog scintilatora	Prirodna radioaktivnost u materijalima od kojih je napravljen tečni scintilator; Fosforescencija određenih rastvarača pojačanim prisustvom rastvorenih supstanci.
Uzorak	Prirodna radioaktivnost u uzorku koja može biti ista ili različita od nuklida koji se ispituje; Kontaminacija istim ili različitim radioaktivnim materijalom; Fosforescencija izazvana uzorkom ili nečistoćama u uzorku.
Vial	Prirodna radioaktivnost u zidovima viala ili čepu; Kosmičko zračenje koje proizvodi Čerenkovljevo, sekundarne elektrone i γ -zračenje; Fosforescencija izazvana sunčevom svetlošću ili nečistoćama u zidovima viala; Nakupljanje statičkog naelektrisanja tokom kretanja u izmenjivaču uzorka.
Fotomultiplikator	Prirodna radioaktivnost materijala od kojih je izrađen fotomultiplikator; Kosmičko zračenje koje proizvodi Čerenkovljevo, sekundarne elektrone i γ -zračenje; Termička i sekundarna emisija elektrona od fotokatode i dinoda; Šum od električnog pražnjenja ili/i Čerenkovljevog zračenja.
Drugi radioaktivni izvori	Radioaktivni izvori (najčešće γ -zraci) u okolini tečnog scintilacionog brojača. Pomeranje ovih izvora može biti veoma štetno jer dovodi do menjanja nivoa pozadinskog zračenja.

Tabela 3.1 Izvori pozadinskog zračenja [Horrocks, 1974]

Višestruki višekanalni analizatori (MCA)

Tokom dugog perioda brojanja neophodnog za merenje niskih aktivnosti, moraju se pratiti stabilnosti uzorka i promene efikasnosti detekcije. Takođe je neophodno detektovati i korigovati hemiluminescenciju i statički elektricitet. Efikasnost aktivne zaštite će takođe uticati na rezultate, pa se njene varijacije moraju pratiti. Brojači bazirani na diskriminaciji visine

impulsa ili tehnologija sa jednim “statičkim” višekanalnim analizatorom ne mogu ispuniti ove zahteve, već je uveden princip merenja pomoću više programabilnih MCA.

U Quantulus-u se nalaze dva dualno programabilna višekanalna analizatora (MCA, *MultiChannel Analyzer*), jedan služi kao aktivna zaštita, a drugi beleži spektre. Oni su podeljeni na dve polovine i omogućuju simultano merenje četiri spektra, svakog sa rezolucijom od 1024 kanala. Mogu se podesiti tako da logički signal koji može doći iz koincidentnog kola, elektronike analizatora impulsa, aktivne zaštite ili zaštitnih fotomultiplikatora, može biti selektovan tako da se pokrene ili zaustavi A/D konverzija imuplsa ili da se izabere polovina memorije višekanalnog analizatora (konvertovani impuls se smešta u Half 2 MCA). Konverzija analognog u digitalni signal je logaritamska. [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002]

Što se tiče upotrebe MCA prilikom merenja, postoje ugrađenje MCA konfiguracije za analizu ${}^3\text{H}$ i ${}^{14}\text{C}$, koje se selektuju i daju optimalne uslove merenja sa maksimalnom zaštitom. Mogućnost slobodnog podešavanja MCA konfiguracije omogućuje ukupno nadgledanje instrumenta i uslove merenja koji se postavljaju tako da se može dobiti maksimalna validacija podataka.

Merenje ${}^{14}\text{C}$ ili drugih beta emitera visoke energije

MCA 1 se koristi za analizu kombinovanih impulsa leve i desne fotomultiplikatorske cevi. Korišćenje uslova podudarnosti kao odabir okidača smanjuje slučajno podudaranje toplotnog šuma. U S11 se ostavljaju svi događaji koji su detektovani od strane detektora ili spoljašnjeg detektora, koji su razdvojeni pomoću PAC-a, ili nisu prihvaćeni od strane PAC-a. Detekcija od strane detektora znači da su događaji izazvani od strane spoljašnjeg izvora (kosmički zraci ili okolina). Ostatak događaja potiče od aktivnosti uzorka ili rezidualne pozadine (S11). Ostavljanjem glavnog uređaja za smanjenje pozadinskog zračenja mogu se snimiti i odbijeni događaji (*rejected events*) i ukupan signal (*net signal*). [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002].

MCA INPUT	TRIGG.	INHIBIT	MEMORY SPLIT
1 LRSUM	L*R	PAC+G+EG	
2 GSUM	G	L*R	

Slika 3.3 WinQ konfiguracija za detekciju ${}^{14}\text{C}$ odbroja na Quantulus-u [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002]

Logički signali i njihove kombinacije:

- Odabir analognog impulsa (*INPUT signal*) :
LRSUM = suma levog i desnog impulsa (L+R);
GSUM = suma levog i desnog impulsa zaštitnog detektora.
- Odabir digitalnog signala (*A/D conversion TRIGGER pulse*) :
L*R = levi i desni detektor u koincidenciji;
G = levi i desni impuls zaštitnog detektora u koincidenciji.
- Odabir inhibiranog impulsa :
PAC = omogućeno poređenje amplitude impulsa ;
G = impuls detektora;
EG = impuls spoljašnjeg detektora;
L*R = levi i desni detektor u koincidenciji.

[Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002]

Sklonost visokoj koincidenciji se može odabrati za poboljšanje pozadine i odbroja ^{14}C ili nekih drugih emitera beta zračenja visokih energija u staklenim vialima.

Detektor je podešen da radi u “*high coincidence bias*” modu, čime se snižava vrednost odbroja u fonskom spektru i povećava se vrednost faktora dobrote (FOM-*figure of merit*) pri ispitivanjima ^{14}C i drugih visokoenergijskih beta emitera u staklenim vialima. Povećanje odbroja u fonskom spektru za kanale od 1 do 300 nastaje zbog beta čestica emitovanih iz ^{40}K (Čerenkovljevo zračenje i fluorescencija) i ti događaji se odbacuju ovim modom, dok ova postavka ne utiče na smanjivanje odbroja koji potiče od ^{14}C .

4 Eksperiment

Za svrhe ovog eksperimenta tj. za merenje smanjenja uticaja pozadinskog kosmičkog zračenja korišćen je niskofonski tečni scintiacioni detektor Quantulus 1220TM koji je detaljno opisan u Poglavlju 2 ovog rada. Analiza dobijenih spektara vršena je u programu EasyView.

Quantulus je tečni scintilacioni detektor koji može da meri veoma niske vrednosti radiaktivnosti. Koristi se u mnogim radiokarbonskim laboratorijama za radiometrijsko ¹⁴C određivanje starosti. Veličine uzoraka do nekoliko stotina mg ugljenika su izmerene različitim konfiguracijama držača uzoraka koje daju niže pozadinsko zračenje od većih viala.

Osnovni dizajn Quantulus-a prati konvencionalnu LSC konfiguraciju koja se sastoji od dve fotomultiplikatorske cevi (FMT) za monitoring uzorka. U beta odboru su dozvoljeni samo slučajni događaji; većina slučajnog termalnog šuma fotocevi se odbacuje. Tipičan jednofotonski šum je 0.15 CPM (counts per minute) i nalazi se u prvih 100 kanala logaritamske energetske skale, koji je najčešće odbačen sa malim gubitkom efikasnosti brojanja. Smanjenje pozadinskog zračenja za faktor 50 u celom 2-MeV prozoru beta energije se postiže korišćenjem pasivne olovne zaštite mase 640 kg. Oblik zaštite je napravljen tako, da je najdeblji deo (oko 20 cm) okrenut prema zenitu, odakle potiče najveći deo mionskog fluksa. [Plastino, Kaihola, 2004]

Komora za brojanje je unutar aktivnog anti-komptonskog zaštitnog detektora napravljenog od bakra ispunjenog scintilacijskim koktelom od mineralnog ulja. On je asimetričan, sa većom zapreminom iznad uzorka. Zaštita poseduje dve fotocevi koje rade zajedno i otkrivaju deo inherentne radioaktivnosti cevi. Zaštita je pravi detektor događaja kosmičkog zračenja bez optičkog kontakta sa uzorkom. Dakle, njegov rad ne zavisi od uzorka, kao kod dizajna u kojima se koristi jedan par fotocevi i za uzorak i za pozadinsko zračenje. Uzorak se podiže u komoru za brojanje pomoću masivnog bakarnog klipa koji deluje kao pasivni štit od dole. Anti-komptonski zaštitni detektor detektuje skoro 100 % kosmičkih miona, što se može proveriti snimanjem odbačenih događaja uzorka (spektar S12 u ¹⁴C brojačkom modu) na visokim kanalima (kanal 850 i više).

Višekanalski analizator (MCA, *MultiChannel Analyzer*) sakuplja do 4 simultana spektra pomoću logičke kontrole (*Boolean logic control*). Odbačeni događaji mogu da se beleže i pomoću njih se određuje efikasnost zaštitnog detektora. [Instrument manual 1220 Quantulus, PerkinElmer, 2002]

Ove karakteristike su optimalne za ispitivanje doprinosa zračenja okoline u ostaku pozadinskog signala 1220 Quantulus-a. U eksperimentu se vrše merenja pomoću idealizivanih uzoraka za proučavanje efikasnosti i varijacije okoline.

Niskofonske laboratorije za tečnu scintilacionu spektroskopiju

Postoji dosta laboratorijskih objekata koji koriste Quantulus, koje su smeštene ispod zemlje, ili koriste materijale niske aktivnosti kako bi smanjili uticaj pozadinskog zračenja iz okoline. BVFA Arsenal u Beču poseduje 1.6 m betona, 0.6 cm čelika i 3-cm olovne obloge, kao i pozitivni pritisak filtriranog vazduha. Smanjenje gama fluksa je 1:20, kao i u Wallac niskofonskoj laboratoriji. Wallac laboratorija ima 0.5 m betona niske aktivnosti i 0.5 običnog betona iznad prvog sloja. Prostorija predstavlja Faradejev kavez i nalazi se pod pritiskom filtriranog vazduha za uklanjanje radona. Gran Sasso nacionalna laboratorija (nacionalni institut za nuklearnu fiziku) ima najveći prekrivač kamena od laboratorija u kojima je Quantulus do sad bio upotrebljen. Dubina je 1400 m, što je ekvivalentno 3800 m vode, i smanjuje kosmički fluks na 1 milioniti deo površinske vrednosti.

Niskofonska laboratorija u Novom Sadu se nalazi na departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta. Smeštena je u prizemlju četvorospratne zgrade. Što se tiče zaštite od okolinskog zračenja, Quantulus koji je smešten u ovoj laboratoriji ima samo svoju pasivnu i aktivnu zaštitu.



Slika 4.1 Niskofonska laboratorija na departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta

Rezultati merenja

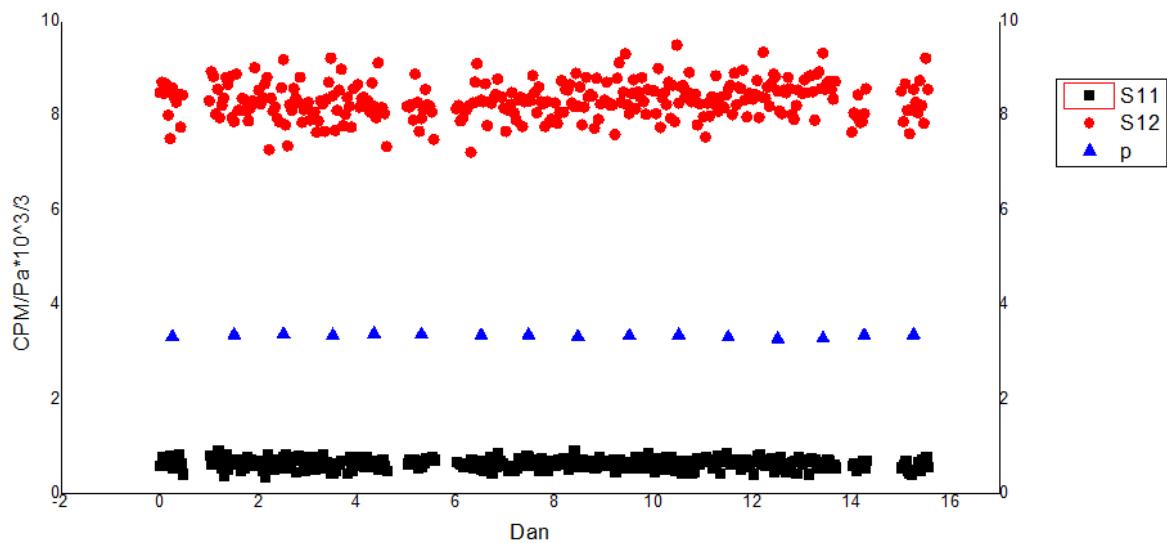
Za ispitivanje smanjenja pozadinskog zračenja su korišćeni viali od 20 ml (8 ml vode i 12 ml scintilacionog koktela). Mod u kojem je merenje vršeno je postavljen na ^{14}C mod koji meri visoku β aktivnost. PAC (*Pulse amplitude comparison*) smanjuje komponentu pozadinskog zračenja koja je izazvana optičkim „crosstalk“-om, odnosno mešanjem elektromagnetskih signala u toku LSC merenja. [Stojković, 2015] Ova komponenta može da se podešava, i u ovom eksperimentu je podešen na 1 (PAC=1). U ovom slučaju posmatramo dva simultano merena spektra (S12 i S11):

- S12 predstavlja spektar koincidentnih događaja, tj. događaj odbačeni od strane detektora (*guard rejected or coincidence counts*)
- S11 predstavlja spektar antikoincidentnih događaja, tj. događaje koji su prihvaćeni od strane detektora (*net accepted or anticoincidence counts*)

Merenje je vršeno u periodu od 20 dana, na svakih sat vremena ($t = 60 \text{ min}$) u niskofonskoj laboratoriji Univerziteta u Novom Sadu.

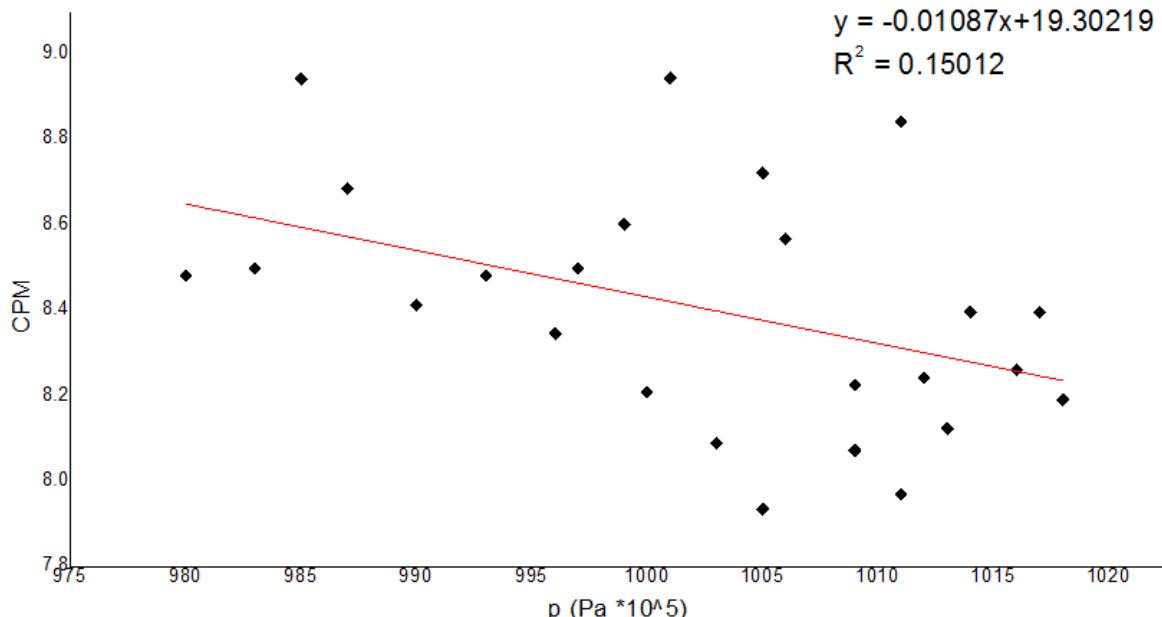
Uticaj atmosferskog pritiska

Varijacije u atmosferskom pritisku imaju uticaj na merenja zaštitnog detektora (na vrednosti u spektrima S11 i S12).



Grafik 4.1 Grafik zavisnosti odbroja u spektrima S11 i S12 (kanali 1-1024) u zavisnosti od atmosferskog pritiska u periodu od 16 dana

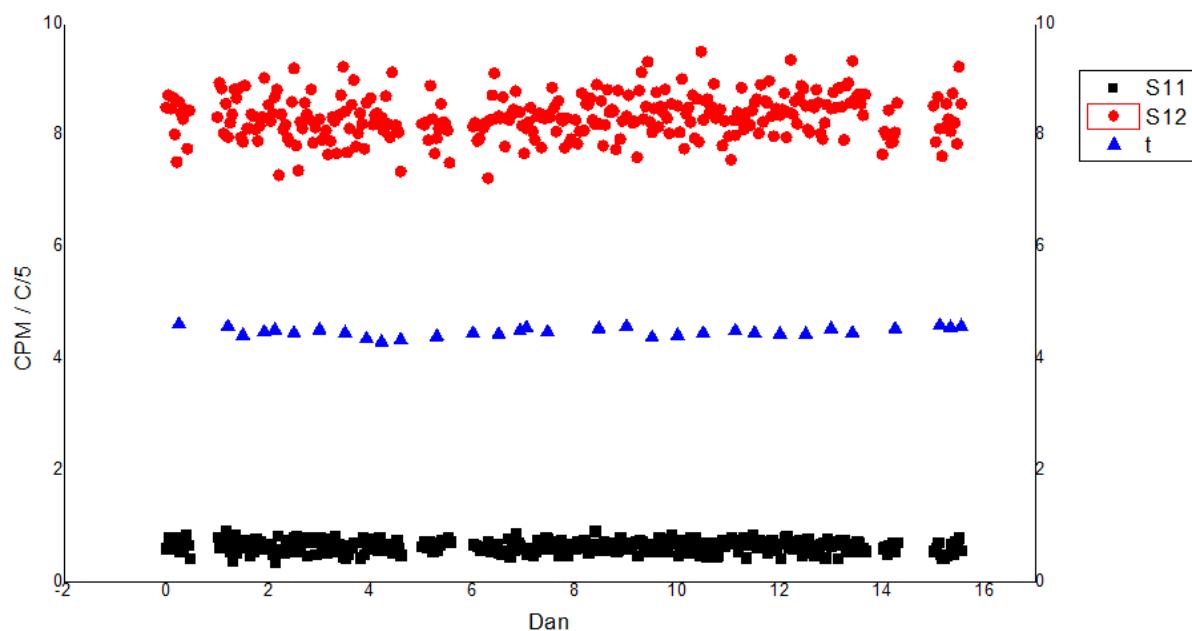
Kosmički mionski fluks je niži tokom perioda kada je pritisak veći. Takođe, komptonski elektronski spektar okoline i inherentnog pozadinskog gama zračenja ima dodatnu promenljivu kosmičku komponentu.



Grafik 4.2 Grafik zavisnosti odbroja zaštitnog detektora (u CPM) od atmosferskog pritiska

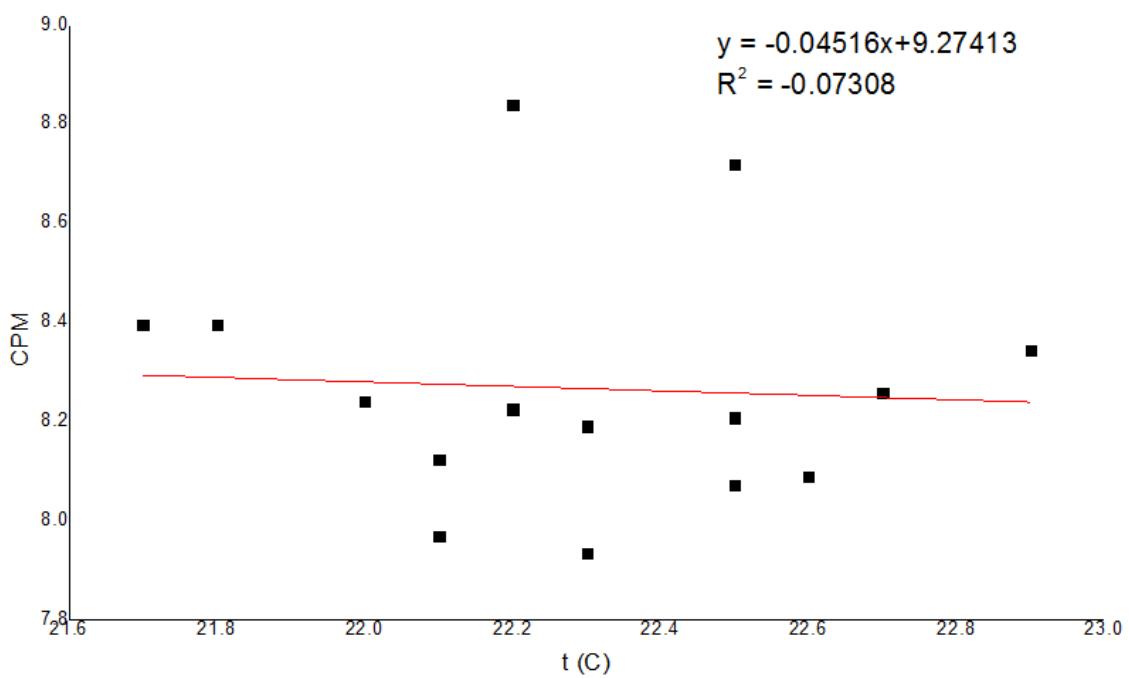
Uticaj temperature

Varijacije u temperaturi takođe mogu imati uticaja na odbroj u spektrima S11 i S12.



Grafik 4.3 Grafik zavisnosti odbroja u spektrima S11 i S12 (kanali 1-1024) u zavisnosti od temperature u periodu od 16 dana

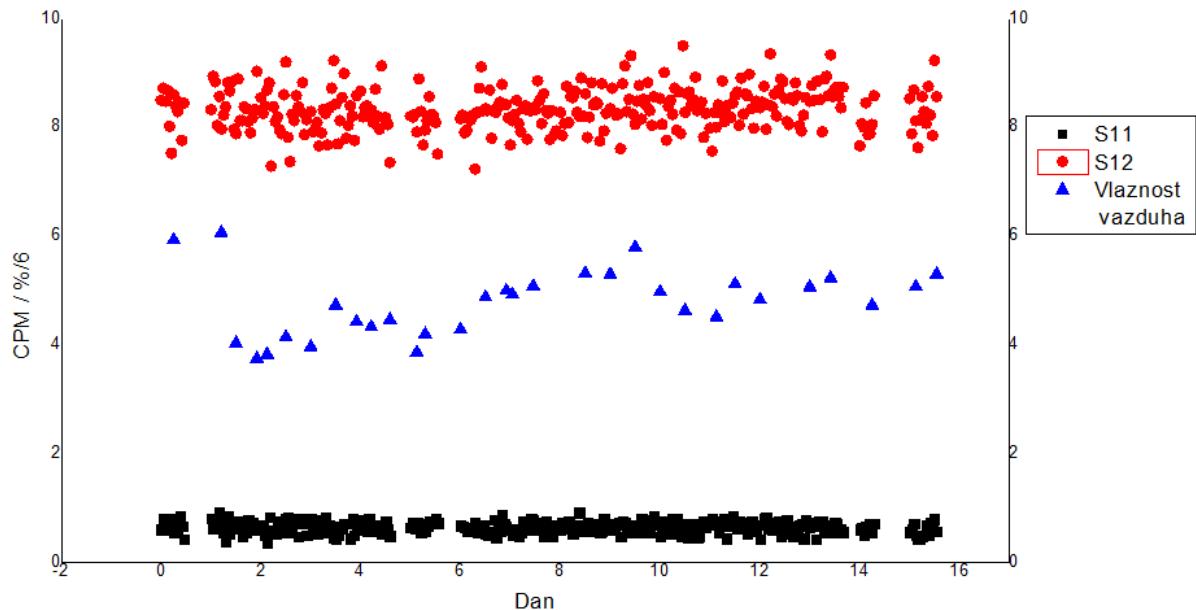
Kosmički mionski fluks se takođe smanjuje kada se povećava temperatura.



Grafik 4.4 Grafik zavisnosti odbroja zaštitnog detektoru (u CPM) od temperature

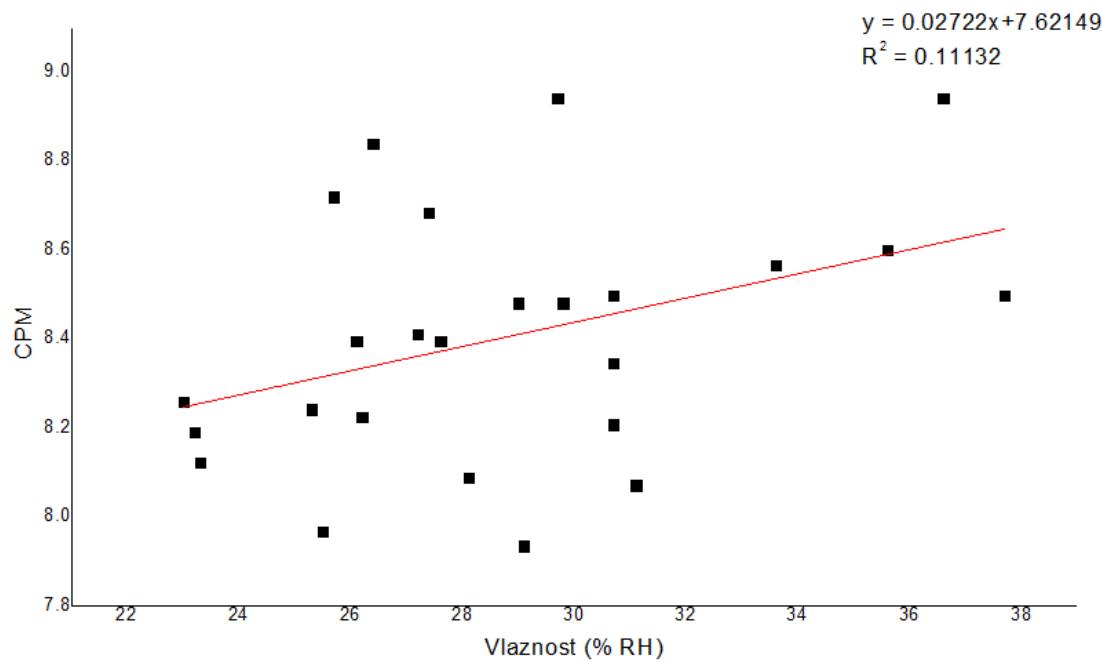
Uticaj vlažnosti vazduha

U toku eksperimenta smo takođe posmatrali kakav uticaj varijacije vlažnosti vazduha imaju na merenje.



Grafik 4.5 Grafik zavisnosti odbroja u spektrima S11 i S12 (kanali 1-1024) u zavisnosti od vlažnosti vazduha u periodu od 16 dana

Iz eksperimentalnih podataka se može videti da se kosmički mionski fluks povećava ako se povećava i vrednost vlažnosti vazduha.



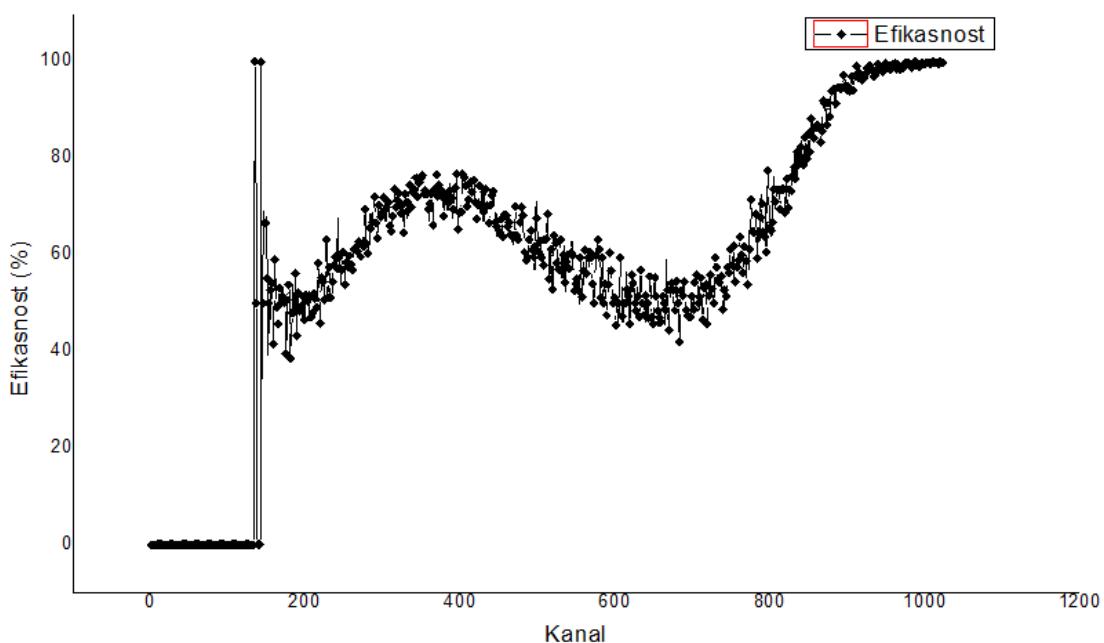
Grafik 4.6 Grafik zavisnosti odbroja zaštitnog detektora (u CPM) od vlažnosti vazduha

Efikasnost

Efikasnost detektora se računa iz energetskog opsega spektra uzorka. U ^{14}C brojačkom modu, gde je $\text{PAC} = 1$ (isključen), efikasnost detekcije se računa po formuli:

$$\text{Efikasnost} = 100 \times S12 / (S11 + S12) \quad (4.1)$$

U jednačini 4.1 $S12$ predstavljaju odbačene događaje od strane detektora, dok su $S11$ prihvaćeni događaji. Efikasnost se predstavlja kao uklonjeni deo pozadinskog zračenja uzorka vode.



Grafik 4.7 Grafik zavisnosti efikasnosti detekcije kosmičkog mionskog zračenja od kanala

Efikasnost detekcije kosmičkog mionskog zračenja u kanalima 750-1024 je 93.45 % na površini. U celom prozoru (kanali 1-1024) efikasnost je 75.23 %.

Pad efikasnosti detekcije ispod 80 % ($\text{PAC} = 1$ u merenju radiokarbona ^{14}C) uglavnom znači da postoji dodatna aktivnost u vialu, u uzorku (koji takođe sadrži scintilacioni koktel) i/ili u komori za brojanje (kontaminacija ili radon). [Plastino, Kaihola, 2004]

Pozadinsko zračenje zavisi i od gama zračenja okoline. U različitim laboratorijama postoje varijacije pozadinskog zračenja zbog različitog fluksa gama zraka koji dolazi iz okoline. U svakoj individualnoj laboratoriji pozadinsko zračenje se ne menja, ako se ne menjaju ni uslovi okoline.

Zaključak

Tim fizičara (Plastino W., Kaihola L., Bartolomei P., Bella F.) je vršio eksperimente u podzemnoj laboratoriji Gran Sasso kako bi istražili efikasnost i varijacije u pozadinskom zračenju u zavisnosti od mesta merenja. Laboratorija Gran Sasso se nalazi u centralnim Apeninima (Italija) i predstavlja podzemnu laboratoriju. Ovu laboratoriju prekriva 1400 m kamena, čime je fluks kosmičkih zraka smanjen u odnosu na spoljašnji fluks. Ove karakteristike omogućuju optimalne uslove za istraživanje doprinosa okolnog zračenja u rezidualnom pozadinskom signalu Quantulus-a.

Eksperiment koji smo uradili u niskofonskoj laboratoriji Univerziteta u Novom Sadu na departmanu za fiziku Prirodno-matematičkog fakulteta rađen je po ugledu na naučni rad Plastino W., Kaihola L. (2004) *Surface and Underground Ultra Low-leve Liquid Scintillation Spectrometry*. U navedenom radu ispitivali su odbroj zaštitnog detektora u zavisnosti od promene atmosferskog pritiska. Dobijeno je da se kosmički mionski fluks smanjuje u periodima kada je viši atmosferski pritisak. Iz dobijenih rezultata eksperimenta koji smo mi vršili može se videti da se oni poklapaju sa rezultatima navedenog rada. U Poglavlju 4 ovog rada na Grafiku 4.2 se jasno može videti da se kosmički mionski fluks smanjuje sa povećanjem atmosferskog pritiska.

Takođe je u radu ispitivana zavisnost efikasnosti zaštitnog detektora u celokupnom energetskom spektru (od 1-1024 kanala). Rezultati koji su dobijeni u laboratoriji Gran Sasso su sledeći:

- Efikasnost u intervalu kanala od 750 do 1024 je 99.0 % ;
- Efikasnost u celokupnom prozoru (kanali od 1 do 1024) je 82.3% .

U našoj laboratoriji smo dobili sledeće vrednosti efikasnosti zaštitnog detektora:

- Efikasnost u intervalu kanala od 750 do 1024 je 93.45 % ;
- Efikasnost u celokupnom prozoru (kanali od 1 do 1024) je 75.23 % .

Evidentno je da su rezultati efikasnosti detekcije dobijeni u našoj laboratoriji nižih vrednosti od rezultata dobijenih u podzemnoj laboratoriji Gran Sasso. Razlog ovoga je što se laboratorija na katedri za nuklearnu fiziku Univerziteta u Novom Sadu nalazi u prizemlju četvorospratne zgrade, tj. predstavlja nadzemnu laboratoriju pa ne postoji dodatna zaštita koja bi uklonila pozadinsko kosmičko zračenje.

Literatura

1. Krmar M. (2013) , *Uvod u nuklearnu fiziku*
2. Joković D. (2011), *Detekcija i spektroskopija miona iz kosmičkog zračenja plastičnim scintilacionim detektorima*
3. Gostojić A. (2010), *Doprinos rasejanja neutrona niskoenergetskom delu fonskog γ -spektra*
4. Stojković I. (2015), *Optimizacija tečnog scintilaconog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama*
5. Todorović N., Nikolov J. , Stojković I. (2018), *Nuklearne analitičke tehnike tečne scintilacione spektroskopije*
6. L'Annunziata M. (2012), *Handbook of Radioactivity Analysis*
7. Horrocks D. (1974), *Applications of Liquid Scintillation Counting*
8. Plastino W., Kaihola L., Bartolomei P., Bella F. (2001), *Cosmic Background Reduction in the Radiocarbon Measurements by Liquid Scintillation Spectrometry at the Underground Laboratory of Gran Sasso*
9. Plastino W., Kaihola L. (2004), *Surface and Underground Ultra Low-level Liquid Scintillation Spectrometry*
10. PerkinElmer (2002), *Instrumental Manual 1220 QuantulusTM*
11. https://www.perkinelmer.com.cn/CMSResources/Images/46-73870SPC_1220Quantulus.pdf

UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO-MATEMATIČKI FAKULTET

KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA

Redni broj:

RBR

Identifikacioni broj:

IBR

Tip dokumentacije:

Monografska dokumentacija

TD

Tip zapisa:

Tekstualni štampani materijal

TZ

Vrsta rada:

Diplomski rad

VR

Autor:

Dejana Hornjak

AU

Mentor:

Prof Nataša Todorović

MN

Naslov rada:

Redukcija pozadinskog zračenja pri ispitivanju radiokarbona na tečnom scintilacionom spektrometru

NR

Jezik publikacije:

srpski (latinica)

JP

Jezik izvoda:

srpski/engleski

JI

Zemlja publikovanja:

Republika Srbija

ZP

Uže geografsko područje:

Vojvodina

UGP

Godina:

2021

GO

Izdavač:

Autorski reprint

IZ

Mesto i adresa:

Prirodno-matematički fakultet, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

MA

Fizički opis rada: Broj poglavlja: 4

FO

Broj strana: 37

Broj tabela: 1

Broj slika: 14

Broj grafika: 7

Naučna oblast: Fizika

NO

Naučna disciplina: Nuklearna fizika

ND

Predmetna odrednica/ ključne reči: Radioaktivnost, tečni scintilacioni detektor, Quantulus 1220, radiokarbon,

PO**UDK**

Čuva se: Biblioteka departmana za fiziku, PMF-a u Novom Sadu

ČU

Važna napomena: nema

VN

Izvod:

IZ

Datum prihvatanja teme od NN veća:

DP

Datum odbrane:

14.07.2021.

DO

Članovi komisije:

KO

Predsednik: prof dr Jovana Nikolov

član: prof dr Ivana Stojković

član: prof dr Nataša Todorović

UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF SCIENCE AND MATHEMATICS

KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:

ANO

Identification number:

INO

Document type: Monograph publication

DT

Type of record: Textual printed material

TR

Content code: Final paper

CC

Author: Dejana Hornjak

AU

Mentor/comentor: Prof Nataša Todorović

MN

Title: Cosmic background reduction in the radiocarbon measurements by liquid scintillation spectrometry

TI

Language of text: Serbian (Latin)

LT

Language of abstract: English

LA

Country of publication: Republic of Serbia

CP

Locality of publication: Vojvodina

LP

Publication year: 2021

PY

Publisher: Author's reprint

PU

Publication place: Faculty of Science and Mathematics, Trg Dositeja Obradovića 4, Novi Sad

PP

Physical description:

PD

Scientific field: Physics

SF

Scientific discipline: Nuclear physics

SD

Subject/ Key words: Radioactivity, liquid scintillation spectrometry, Quantulus 1220, radiocarbon, background reduction, cosmic radiation

SKW

UC

Holding data: Library of Department of Physics, Trg Dositeja Obradovića 4

HD

Note: none

N

Abstract:

AB

Accepted by the Scientific Board:

ASB

Defended on: 14.07.2021.

DE

Thesis defend board:

DB

President: prof dr Jovana Nikolov

Member: prof dr Ivana Stojković

Member: prof dr Nataša Todorović