



UNIVERZITET U NOVOM SADU

PRIRODNO – MATEMATIČKI FAKULTET

DEPARTMAN ZA FIZIKU



**Kalibracija tečnog scintilacionog spektrometra za direktno određivanje
ukupne α/β aktivnosti u vodi**

-master rad-

Mentor:

Prof. dr Nataša Todorović

Kandidat:

Nemanja Golubovac
328m/15

Novi Sad, septembar 2017

Zahvaljujem se svom mentoru, Prof dr Nataši Todorović na ogromnom strpljenju, nesebičnoj pomoći i korisnim savetima.

Takođe se zahvaljujem doc. dr Jovani Nikolov i doc. dr Ivani Stojković za svu pomoć i savete kad god su mi bili potrebni.

Zahvaljujem se porodici i prijateljima što su mi uvek podrška.

Sadržaj

1.	Uvod.....	1
1.1.	Radioaktivnost u životnoj sredini	1
1.2.	Zakonska regulativa	5
1.3.	Opšti pojmovi i dozimetrijske veličine	6
2.	Scintilacioni detektori	8
2.1.	Karakteristike scintilacionog detektora.....	8
2.2.	Tečni organski scintilatori.....	11
2.2.1.	<i>Interakcija jonizujućeg zračenja sa scintilacionim koktelom</i>	11
2.2.2.	<i>Fluorescencija</i>	12
2.2.3.	<i>Fotomultiplikator</i>	14
2.2.4.	<i>LSC koktel.....</i>	16
2.2.5.	<i>Scintilacioni proces u LSC koktelima</i>	17
2.2.6.	<i>Prigušenje u scintilacionim brojačima i metode njegovog otklanjanja.....</i>	19
3.	Quantulus 1220 TM	21
3.1.	Detektorska zaštita	22
3.2.	Višestruki višekanalni analizatori	24
3.3.	Analiza oblika impulsa (PSA)	26
3.4.	Korekcija prigušenja na Quantulusu	27
4.	Određivanje ukupne α/β aktivnosti u uzorku.....	28
4.1.	Određivanje efikasnosti detekcije.....	29
4.2.	<i>Spillover faktori</i>	30
4.3.	Procena minimalne detektibilne aktivnosti MDA [Bq l ⁻¹].....	30
4.4.	Određivanje α/β odbroja i njihovih mernih nesigurnosti.....	31
4.5.	Određivanje ukupne α/β koncentracije aktivnosti i njihovih mernih nesigurnosti...	32
4.6.	Granice detekcije ukupnih α/β aktivnosti	33
5.	Rezultati i diksusija.....	35

5.1.	Određivanje optimalne PSA vrednosti.....	35
5.2.	Određivanje efikasnosti detekcije za α - i β – događaje	39
5.3.	Određivanje minimalne detektibilne aktivnosti	40
5.4.	Evaluacija direktnе α/β metode.....	42
5.5	Zaključak	43
	LITERATURA	45
	Biografija:.....	47

1. Uvod

U radu je prezentovana direktna brza metoda za određivanje ukupne α/β – aktivnosti u vodi. Merenje direktne α/β – aktivnosti u vodi je izuzetno značajna *screening* metoda vode za piće jer se na taj način proverava radiološka bezbednost vodenih uzoraka.

U okolini nuklearnih postrojenja radi se rutinski monitoring površinskih voda, a takođe je zakonom predviđeno da se vrši i monitoring pijačih voda. Naime u slučaju nuklearnog akcidenta potrebna je brza *screening* metoda za proveru uzorka. U ovom radu je predstavljena modifikacija standardne ASTM metode^[1], koja je već razvijena u Laboratoriji za ispitivanje radioaktivnosti uzorka i doze ionizujućeg i nejonizujućeg zračenja Departmana za fiziku^[2], i umesto uparanjanja uzorka do suvog ostatka pre mešanja sa koktelom, uzorci su direktno pomešani sa koktelom pa je sam postupak, umesto da traje 1-2 nedelje sведен na nekoliko sati. Svrha rada je prikaz kalibracije tečnog scintilacionog spektrometra Quantulus 1220TM za direktno određivanje ukupne α/β – aktivnosti u vodenim uzorcima.

1.1. Radioaktivnost u životnoj sredini

Čovek je u svojoj okolini konstantno izložen uticajima ionizujućeg zračenja. Pozadinsko zračenje (ili fon, *background*) dolazi iz prirodnih i veštačkih izvora. Nivo izloženosti čoveka pozadinskom zračenju oko 70% dolazi od prirodnih izvora ionizujućeg zračenja. Od toga najveći radioekološki problem je udisanje prirodnog radioaktivnog gasa ^{222}Rn ^[3].

Prirodni izvori radionuklida na planeti jednim delom čine nestabilna jezgra koja poreklo vuku još iz formiranja planete. Starost Zemlje se procenjuje na 4,5 milijardi godina ($4,5 \cdot 10^9$ godina), što nam govori da od nestabilnih jezgara koji su nastali formiranjem planete možemo očekivati samo one čiji je period poluraspada dovoljno dugačak da im aktivnost nije opala ispod nivoa detekcije ($\sim 10^8$ godina). Radionuklidi koji se najčešće pojavljuju su ^{40}K , ^{238}U , ^{235}U i ^{232}Th . Poslednja tri radionuklida svojim raspadom daju nove radionuklide i tako formiraju radionuklidske nizove. Sekundarni radionuklidi (radionuklidi nastali α ili β raspadom početnih radionuklida u nizu) koji imaju dugačak period poluraspada su: ^{234}U , ^{230}Th , ^{231}Pa i ^{226}Ra . Za izloženost ljudi su najznačajniji ^{222}Rn i ^{220}Rn (i njihovi potomci) iz ^{238}U i ^{232}Th niza respektivno.

Radon kao gas veoma lako prodire difuzijom kroz tlo i građevinski materijal u stambeni prostor. Sva tri prirodna radioaktivna niza se završavaju stabilnim izotopom olova.

Pored radionuklida nastalih prilikom formiranja Zemlje, postoje radionuklidi koji se konstantno generišu u visokim slojevima atmosfere nuklearnim reakcijama ili u procesu fisije. Kosmičko zračenje kreira radionuklide u interakcijama protona, neutrona, α – čestica i ostalih čestica sa jezgrima kiseonika, azota i argona. Najznačajniji radionuklidi za izloženost ljudi su ${}^3\text{H}$ (tricijum), ${}^7\text{Be}$, ${}^{14}\text{C}$ i ${}^{22}\text{Na}$. ${}^{14}\text{C}$ nastaje u nuklearnoj reakciji: ${}^{14}\text{N}(\text{n},\text{p}){}^{14}\text{C}$ i njegov period poluraspada je 5730 godina. Jedan je od najznačajnijih radioizotopa i služi za datiranje organskih materija u arheologiji. Tricijum se formira na dva načina: ako je energija neutrona veća od 4,4 MeV sledećom nuklearnom reakcijom: ${}^{14}\text{N}(\text{n},{}^3\text{H}){}^{12}\text{C}$. Nuklearna reakcija sa neutronima manje energije odgovorna za stvaranje tricijuma je: ${}^6\text{Li}(\text{n},\alpha){}^3\text{H}$. U tabeli 1. prikazani su radionuklidi generisani kosmičkim zračenjem.^[4]

Tabela 1. Radionuklidi generisani kosmičkim zračenjem sa vremenima poluraspada^[4]

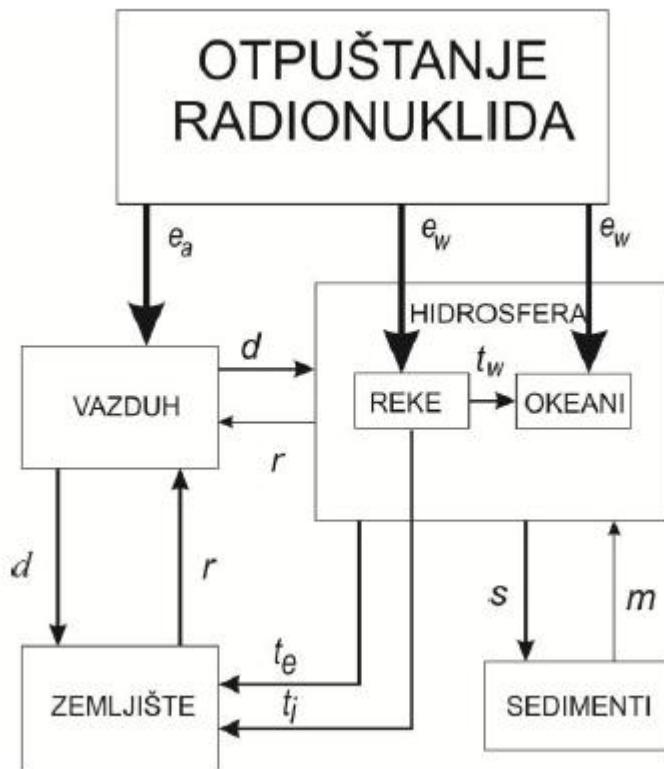
Radionuklid	Vreme poluraspada	Radionuklid	Vreme poluraspada
³ H	12,3 g	³² P	14,3 d
⁷ Be	53,3 d	³³ P	25,3 d
¹⁰ Be	$1,6 \cdot 10^6$ g	³⁵ S	87,5 d
¹⁴ C	5730 g	³⁸ S	2,8 h
²² Na	15 h	^{34m} Cl	32 min
²⁴ Na	2,6 g	³⁶ Cl	$3 \cdot 10^5$ g
²⁸ Mg	20,9 h	³⁸ Cl	37,2 min
²⁶ Al	$7,4 \cdot 10^5$ g	³⁹ Cl	55,6 min
³¹ Si	2,6 h	³⁹ Ar	269 g
³² Si	172 g	⁸¹ Kr	$2,3 \cdot 10^5$ g
¹²⁹ I	$1,6 \cdot 10^7$ g	⁸⁵ Kr	10,7 g

Veštački izvori radionuklida – U poslednjih 70 godina razvoj nuklearne tehnologije doveo je do rasprostranjene upotrebe radionuklida u medicini, industriji, vojnoj tehnologiji. Rasprostranjena je upotreba izvora ionizujućeg zračenja u medicini, što za dijagnostičke, što za terapijske namene. Uglavnom kratkoživeći veštački stvoreni radionuklidi u posebnim akceleratorima (ciklotronima) se koriste u oba slučaja: Za PET-CT scan – ove (Pozitronska emisiona tomografija) najčešće se koristi ¹⁸F u formi fluorodeoksiglukoze (FDG), pored njega u dijagnostici se koristi i ^{99m}Tc. Za terapijsku upotrebu se najviše koriste ¹³¹I u nuklearnoj medicini i ¹³²Ir u brahiterapiji. Izloženost radionuklidima produkovanim u medicinskim akceleratorima zavisi samo od lokacije. Njihovom uticaju je najviše izloženo profesionalno medicinsko osoblje.

Drugi veštački izvor radionuklida su nuklearni reaktori u nuklearnim elektranama. Producija radionuklida u nuklearnim reaktorima potiče od dva procesa: nuklearne fisije i od aktivacije bilo neutronima, bilo γ - kvantom. Većina produkata fisije su kratkoživeći izotopi izuzev ⁹⁰Sr i ¹³⁷Cs koji imaju periode poluraspada 28,6 i 30,1 godinu respektivno. Produkti aktivacije nastaju neutronskom aktivacijom, ili γ – aktivacijom u samom gorivu i u materijalima moderatorima neutrona u reaktoru. Neki od dugoživećih produkata fisije su ³H, ¹⁴C, ⁶⁰Co i neki transuranski elementi poput izotopa Plutonijuma (²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu), Americijuma (²⁴¹Am), itd.

Treći veštački izvor radionuklida jeste upotreba nuklearnog naoružanja. Pored dobro poznatih bačenih uranijumskih nuklearnih bombi na Hirošimu i Nagasaki 1945. godine, izvršena su još brojna testiranja nuklearnog naoružanja. Ukupan broj nuklearnih testiranja u svetu iznosi preko 2000 od kojih je preko 400 atmosferskih. Većina atmosferskih nuklearnih proba se održala na severnoj hemisferi.

Na slici 1. shematski je prikazano kako se otpušteni radionuklidi kreću u ekosistemu



Slika 1. Oslobođanje radionuklida u vazduh ili hidrosferu i njihove glavne putanje kroz različite ekološke sisteme: d - depozicija, e_a - emisija u vazduh, e_w - emisija u vodeno okruženje (jezero, reku, okean), m - mobilizacija iz sedimenata, r - resuspenzija putem vetra ili isparavanja, s - skladištenje u sedimente, t_e - transport erozijom, t_i - transport veštačkim navodnjavanjem (irigacijom) ili poplavama, t_w – transport vodom^[4]

1.2. Zakonska regulativa

Republika Srbija je 2011. godine zakonskom regulativom odredila granice sadžaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, lekovima, i ostalim predmetima opšte upotrebe.^[5] Prema ovom pravilniku, granice radionuklidnog sadržaja određene su granicama godišnjeg unosa (GGU) radionuklida u ljudski organizam inhalacijom (GGU_{inh}), ingestijom (GGU_{ing}) i izvedenim koncentracijama radionuklida u životnoj sredini (IK).

U članu 6. ovog pravilnika propisana je dozvoljena koncentracija radionuklida u vodi za piće. Doprinos efektivnoj dozi koji potiče od unosa tricijuma ^{3}H , kalijuma ^{40}K , radona ^{222}Rn , i torona ^{220}Rn i radonovih potomaka vodom za piće nije uračunat u graničnu vrednost efektivne doze od 0,1 mSv/god. Granična vrednost aktivnosti ^{3}H u vodi za piće je 100Bq/l. Granična vrednost ukupne aktivnosti α čestica, je $0,5\text{Bql}^{-1}$; dok je granična vrednost ukupne aktivnosti β čestica,je 1Bql^{-1} .

Ukoliko je izmerena aktivnost ukupne aktivnosti alfa ili beta nestabilnih radionuklida u vodi za piće iznad dozvoljenih vrednosti, neophodna je identifikacija i određivanje sadržaja pojedinačnih radionuklida. Bez određivanja pojedinačnog sadržaja radionuklida, vodu za piće nije moguće zabraniti za upotrebu. U tabeli 2. mogu se naći dozvoljene koncentracije pojedinačnih radionuklida u vodi za piće

Tabela 2. Izvedene koncentracije pojedinačnih radionuklida u vodi za piće^[3]

Radionuklid	Izvedena koncentracija [Bq/l]
¹⁴ C	$2,3 \cdot 10^2$
⁶⁰ Co	$4,0 \cdot 10^1$
⁹⁰ Sr	4,9
¹³¹ I	6,2
¹³⁴ Cs	7,2
¹³⁷ Cs	$1,0 \cdot 10^1$
²¹⁰ Pb	$2,0 \cdot 10^{-1}$
²²⁴ Ra	$2,1 \cdot 10^{-1}$
²²⁶ Ra	$4,9 \cdot 10^{-1}$
²²⁸ Ra	$2,0 \cdot 10^{-1}$
²³² Th	$5,9 \cdot 10^{-1}$
²³⁵ U	2,9
²³⁸ U	3,0
²³⁹ Pu	$5,5 \cdot 10^{-1}$
²⁴¹ Am	$6,8 \cdot 10^{-1}$

1.3. Opšti pojmovi i dozimetrijske veličine

Aktivnost A – predstavlja proizvod verovatnoće raspada jednog radionuklida λ (konstanta radioaktivnog raspada) i ukupnog broja radionuklida N . Matematički se izračunava iz zakona radioaktivnog raspada kada se obe strane jednačine pomnože sa konstantom radioaktivnog raspada:

$$N = N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} / \cdot \lambda$$

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} \quad (1.1)$$

gde N , odnosno A označavaju trenutni broj jezgara, odnosno trenutnu aktivnost; dok N_0 odnosno A_0 označavaju početni broj radionuklida, odnosno početnu aktivnost radionuklida. Merna jedinica za aktivnost je 1Bq (bekerel) i jednaka je aktivnosti nekog radioaktivnog izvora kome se svake sekunde raspadne jedno jezgro. ^[6]

Apsorbovana doza D – definiše se kao odnos energije ΔE koje ionizujuće zračenje preda određenoj zapremini mase Δm kao:

$$D = \frac{\Delta E}{\Delta m} \quad (1.2)$$

Merna jedinica za apsorbovanu dozu je Gy (grej). ^[6]

Ekvivalentna doza H – definiše se da bi se različita biološka dejstva raznih vrsta zračenja i numerički obračunala. Matematički se izražava kao proizvod apsorbovane doze D i bezdimenzionog faktora kvaliteta Q

$$H = D \cdot Q \quad (1.3)$$

Faktor kvaliteta uzima različite vrednosti u zavisnosti od vrste ionizujućeg zračenja. Fotoni i beta zračenje uzimaju vrednost 1, termalni neutroni uzimaju vrednost 5, dok alfa zračenje, protoni, brzi neutroni, i teška jezgra uzimaju vrednost 20. Merna jedinica je 1Sv (sivert). ^[6]

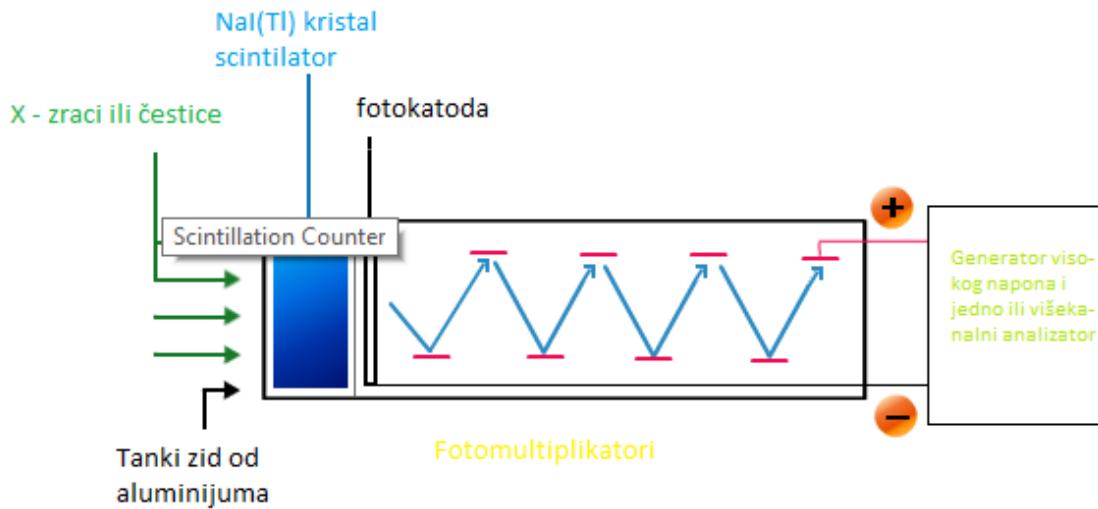
2. Scintilacioni detektori

Scintilacioni detektor je nesumnjivo jedan od najčešće korištenih i najšire rasprostranjenih detektora u današnjoj nuklearnoj i čestičnoj fizici.^[7] Njihov rad se bazira na činjenici da određeni materijali prilikom prolaska jonizujućeg zračenja emituju vidljivu svetlost (scintilacija). Kada se upare sa odgovarajućim pojačavačima koji sadrže fotomultiplikatore, pretvaraju svetlost u električni impuls koji se dalje može analizirati i brojati dajući informacije o zračenju koje je prošlo kroz scintilator.

Prvi scintilacioni detektori su bili u upotrebi početkom 20-og veka, ali to su bili optički detektori gde se pod mikroskopom na foliji moglo golid okom videti gde se interakcija čestice i scintilatora odigrala. Njegova je čuvena primena u Gajgerovim i Madsenovim eksperimentima rasejanja α – čestice. Brzo je izasao iz upotrebe razvojem gasnih detektora. U ponovnu upotrebu je ušao tek 40 - ih godina 20 - og veka kada su ljudsko oko zamenili novorazvijenim fotomultiplikatorima Kurejn i Bejker (Curran i Baker). Tek onda su se slabe scintilacije mogle detektovati i brojati sa zadovoljavajućom efikašnošću uporedivom sa do tada neprevazidjenim gasnim detektorima. Razvoj scintilacionih detektora se nastavio tokom 50 - ih godina tako da su se ubrzo razvili u najpouzdanije i najčešće korištene detektore.

2.1. Karakteristike scintilacionog detektora

Osnovni delovi scintilacionog detektora su dati na slici 2. U osnovi se on sastoji od scintilacionog materijala koji se optički poveže sa fotomultiplikatorom, ili direktno ili kroz svetlosni vodič. Kako čestica ionizujućeg zračenja prolazi kroz scintilator ona eksicuje atome i molekule scintilatora što čini da scintilator emituje svetlost. Svetlost emitovana u scintilatoru se doveđe na fotokatodu koja prilikom udara svetlosti emituje elektrone koji se u fotomultiplikatoru umnožavaju i stvaraju signal koji se na izlazu fotomultiplikatora može detektovati i dalje obrađivati.



Slika 2 – Shematski prikaz kristalnog scintilacionog detektorskog sistema.

Signal dobijen scintilacionim detektorom može da sadrži različite informacije. Neke od važnih karakteristika scintilacionog detektora su:

- Mogućnost određivanja energija čestice koja je izazvala scintilaciju:** Preko određene minimalne energije, scintilacioni detektor ima skoro linearu energetsку zavisnost, što znači da je jačina svetlosti koja se emituje u scintilatoru linearno zavisna od energije incidentne čestice. Pošto je fotomultiplikator takođe linearni uređaj, signal na izlazu detektora koji se detektuje je u linearnoj zavisnosti sa energijom incidentne čestice. Ovo čini scintilacione detektore pogodnim za spektrometriju, mada nisu idealni za to. Pogodniji detektori za spektrometriju su poluprovodnički detektori.
- Brzo vreme odziva:** Scintilacioni detektori su brzi instrumenti u smislu da im je vreme odziva malo, u poređenju sa drugim instrumentima. Brzi odziv im omogućava da detektuju dva različita događaja sa mnogo većom preciznošću. Ovo im omogućava da izbroje mnogo više događaja pošto je “mrtvo vreme”, vreme za koje detektor ne može da detektuje događaj, smanjeno.

3. **Analiza oblika impulsa:** Sa nekim scintilatorima moguće je dobiti informaciju o vrsti čestice koja je prošla kroz scintilator analizirajući oblik impulsa emitovane svetlosti. Ova pojava je posledica različitih fluorescentnih mehanizama ekscitacije u zavisnosti od ionizacione moći čestice. Ovo se naziva diskriminacija oblika impulsa.

Danas imamo šest vrsta scintilacionih materijala koji se koriste za detekciju: organski kristali, organske tečnosti, neorganski kristali, plastike, gasovi i stakla. Iako postoje mnoge vrste scintilacionih materijala ne mogu se svi iskoristiti za pravljenje detektora. Za detektore su pogodni materijali koji ispunjavaju sledeće uslove:

1. Velika efikasnost za konverziju ekscitacione energije u fluorescentnu svetlost.
2. Konverzija ekscitacione energije mora da bude linearno zavisna od energije incidentne čestice.
3. Materijal mora da bude transparentan za sopstvenu emitovanu svetlost tako da dozvoli prolazak emitovane svetlosti kroz aktivnu zapreminu detektora do fotomultiplikatora sa što manje prigušenja.
4. Scintilacioni spektar mora približno odgovarati maksimumu spektralne osjetljivosti fotomultiplikatora kako bi transformacija svetlosti u električni impuls bila bolja.
5. Da ima kratko "mrtvo vreme". Tj. da vreme "raspada" fluorescentne svetlosti bude relativno kratko da bi detektor bio ponovo u mogućnosti da detektuje nov događaj.
6. Scintilator mora biti dobro rastvorljiv i biti što manje osjetljiv na prisustvo supstanci prigušivača.

Ispunjavanje svih ovih uslova bi činilo idealan scintilator koji bi se koristio za detekciju. U prirodi ne postoji scintilator koji ispunjava sve uslove, niti se do sada uspeo sintetisati. Najčešće se koriste neorganski kristali alkalnih halogenida (pogotovo NaI, koji ima najveću efikasnost konverzije čestične interakcije u svetlost 28 %) – oni imaju najveći svetlosni prinos, dobru linearost odziva, ali često spor odziv, i organski tečni ili plastični scintilatori – koji imaju brži, ali slabiji prinos svetlosti. Neorganski scintilatori su zbog velikog atomskog broja Z i velike gustine u kombinaciji sa velikom zapreminom kristala pogodni u γ -spektroskopiji, a organski su zbog velikog sadržaja vodonikovih atoma najzastupljeniji u β -spektroskopiji i detekciji brzih neutrona.

2.2. Tečni organski scintilatori

Tečni organski scintilatori koji se koriste za detekciju su rastvor jednog ili više organskih scintilatora u organskom rastvaraču. Tečni scintilatori imaju veoma kratko “mrtvo vreme” detekcije, zbog kratkog vremena luminiscencije moguće je detektovati veliki broj brzih sukcesivnih događaja. Zbog manjeg rednog broja Z (u odnosu na neorganske scintilatore, npr NaI gde jod ima redni broj 53) u slučaju detekcije fotona, najveći broj interakcija se odvija putem Komptonovog efekta. Znajući da se jedino preko fotoelektričnog efekta predaje celokupna energija fotona materijalu kroz koji prolazi (a verovatnoća za fotoelektični efekat raste sa povećanjem rednog broja $\sim Z^5$), može se zaključiti da organski scintilatori generalno, pa tako i tečni organski scintilatori nisu pogodni za γ – spektroskopiju, mada su pogodni za β -spektroskopiju.

Tečni scintilacioni detektor korišten u ovom eksperimentu (Quantulus 1220TM, koji će detaljnije biti opisan kasnije) koristi takozvanu LSC tehniku (Liquid Scintillation Counting ili tečno scintilaciono brojanje). Ova tehnika podrazumeva rastvaranje radioaktivnog uzorka u specijalne bočice od stakla ili plastike gde se nalazi takozvani scintilacioni koktel, tako čineći homogeni rastvor pogodan za merenje. Scintilacioni koktel obično sadrži rastvarač u kome je rastvorena manja količina scintilacionog materijala.

2.2.1. Interakcija jonizujućeg zračenja sa scintilacionim koktelom

Jedan foton ili čestica jonizujućeg zračenja, zbog svoje stohastičke prirode koju je nemoguće predvideti, interaguje sa materijom na različite načine: stvara jonske parove, pobuduje molekule, slobodne radikale, povećava energiju molekula (vibracionu, rotacionu i kinetičku), stvara sekundarne čestice (bilo rasejane ili novokreirane). Koncentracija tih pobuđenih i jonizovanih molekula zavisiće od tipa procesa (hemijskog: neutralizacija, reakcije slobodnih radikala, dekompenzacija itd, i fizičkog: emisija X-zraka, fluorescencija, fosforescencija, itd.) koji se odvijaju u interakcijama nanelektrisanih čestica sa materijom. Konačni rezultat, emisija fotona iz tečnog scintilacionog rastvora, zavisi od svih ovih konkurentnih reakcija.

α – čestice i teški joni, iako su u mogućnosti da ionizuju bilo koji materijal, scintilatori nisu najbolje rešenje za njihovu detekciju. Veoma velika moć ionizacije α – čestica i teških jona ima za posledicu prigušenje (*quenching*). Za primer možemo uzeti α – česticu čija je energija

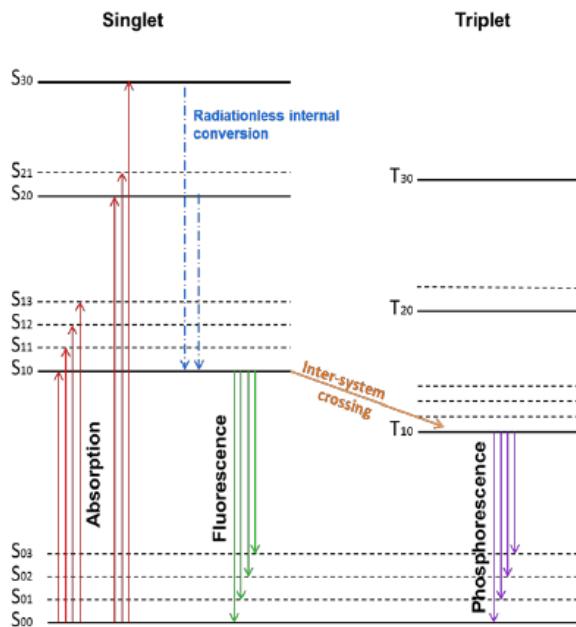
5,5 MeV u vodi (kojom simuliramo tečni scintilator u ovom slučaju) ima relativno mali domet od $R_\alpha = 0,048$ mm u odnosu na β – česticu energije 0,55 MeV koja u vodi ima domet od 1,78 mm. Iako α – čestica ima deset puta veću energiju od beta čestice, ima putanju manju za skoro dva reda veličine, zbog svoje relativno velike mase u odnosu na β – česticu i vrlo velike ionizacione moći što dovodi do toga da α – čestice imaju manju efikasnost transfera energije molekulima rastvarača i scintilatora od β – čestice. α – čestice u scintilacionom koktelu indikuju svega deseti deo intenziteta scintilacija po jedinici svoje energije u odnosu na β – čestice tako da α – čestice na primer 8 MeV imaju monoenergetski pik na 800 KeV ako se posmatra njihov spektar snimljen u tečnom organskom scintilacionom detektoru. Ovo čini tečne scintilacione detektore i generalno organske scintilatore nepogodne za α – spektroskopiju.

2.2.2. Fluorescencija

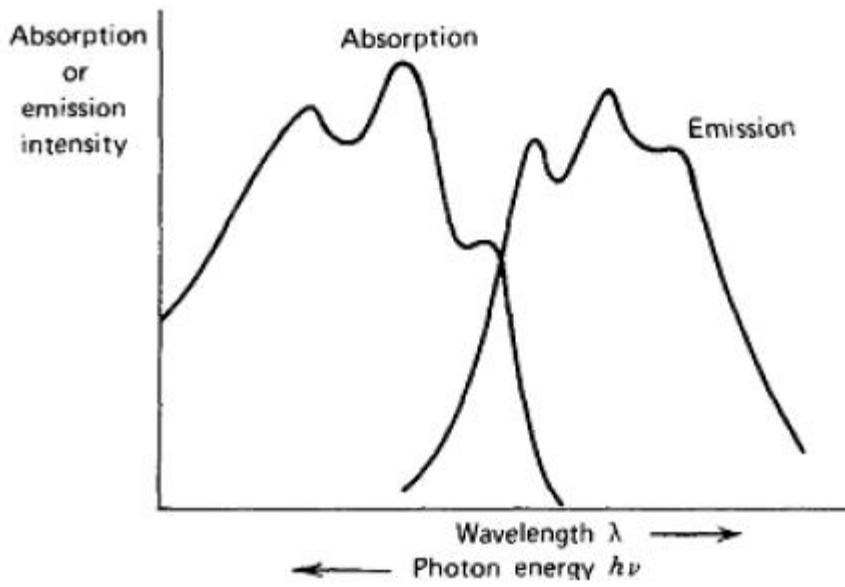
Fluorescencija u scintilatorima je pojava emitovanja svetlosti koja nastaje kao posledica prelaza π – elektrona (elektrona iz π orbitala atoma koji grade hemijsku vezu) između energetskih nivoa pobuđenih molekula. U organskim scintilatorima je ona nezavisna od agregatnog stanja (može biti u vidu pare, dok je kod neorganskih scintilatora moguća samo u određenom agregatnom stanju (npr. kod NaI scintilacioni proces se odvija samo u uređenoj kristalnoj rešetki)). Na slici 3. vidimo shematski prikaz energetskih nivoa organskog scintilatora. Apsorpcijom energije elektroni se ekscituju do viših energetskih nivoa. Energetski nivoi mogu imati spin 0 (singletni nivoi) i spin 1 (tripletni nivoi). Razlika između S_0 i S_1 nivoa je reda veličine 3-4 eV. Energetski nivoi takođe poseduju i finu strukturu koja je posledica njihovih vibracionih stanja čija je razlika reda veličine 0,1-0,2 eV, koja su označena drugim indeksom, npr S_{12} . S_{00} označava osnovni energetski nivo na kojem su svi elektroni u molekulu na sobnoj temperaturi. U procesu apsorpcije dešavaju se ekscitacije i nakon kratkog vremena, deekscitacije putem neradijacione interne konverzije (bez emisije fotona) do nivoa S_1 jer bilo koje stanje sa dodatnom energijom vibracionog nivoa (npr. S_{11} i S_{12}) nije u termalnoj ravnoteži sa susednim stanjima i brzo gubi tu energiju. Interna konverzija i emisija fotona konkurentni su procesi deekscitacije, ali kod organskih molekula interna konverzija dominira u slučaju pobuđenih stanja koji su iznad S_2 energetskog nivoa. Emisija fotona verovatnija za prelaze sa S_1 na neko vibraciono stanje sa osnovnog nivoa. Zato je ukupni efekat ekscitacionih procesa u organskim kristalima generisanje populacije na pobuđenom stanju S_{10} (uglavnom fluorescencija organskih molekula potiče od prelaza sa pobuđenih nivoa S_1 na osnovno stanje). Dakle, deo energije

pobude se potrošio na prelaze između vibracionih nivoa pobuđenog elektronskog stanja. Scintilacije (trenutna fluorescencija) emituju se u prelazima od S_{10} do nekog od vibracionih stanja osnovnog nivoa (maksimalnu energiju foton iznosi pri prelazu $S_{10} \rightarrow S_{00}$). To omogućuje da opseg talasnih dužina emitovane svetlosti bude pomeren u odnosu na opseg talasnih dužina apsorbovane svetlosti (energije pobude), uz malo preklapanje. Emitovana svetlost ima veću talasnu dužinu od svetlosti koju organski materijal apsorbuje (slika 4), pa će svetlost emitovana nakon pobude molekula organskih scintilatora od strane ionizujućeg zračenja, uspeti da izbegne apsorpciju i izade iznoseći informaciju o interakciji koja se odigrala.

Fosforescencija je pojava emisije spektra svetlosti talasne dužine veće od fluorescentnog spektra, i to dosta kasnije. Naime prelazi sa tripletnih stanja su prema zakonu održanja spina zabranjeni, tj nemoguć je prelaz sa tripletnog stanja T_{10} koje ima spin 1, na bilo koje vibraciono stanje osnovnog nivoa S_0 sa spinom 0. Međutim zbog stohastičke prirode ove pojave, to ne znači da su ovi prelazi nemogući nego da su samo manje verovatni. Zbog toga nastaje odložena pojava emitovanja spektra, koji je zbog same činjenice da su tripletna stanja na nižem energetskom nivou od respektivnih singletnih stanja, ima veću talasnu dužinu od singletnih spektara.



Slika 3. Shematski prikaz energetskih nivoa molekula organskog scintilatora

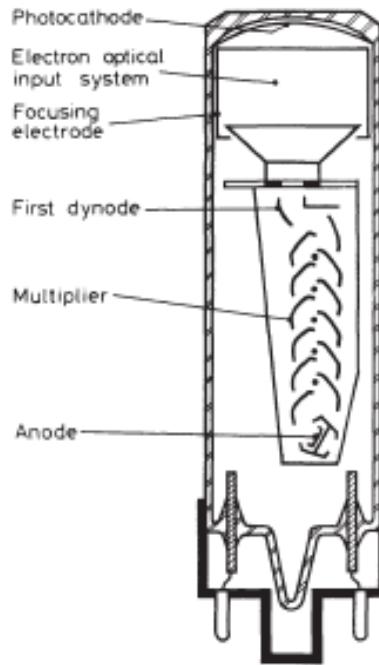


Slika 4. Talasna dužina apsorbovane i emitovane svetlosti organskog scintilatora^[8]

Vreme prelaska elektrona sa prvog pobuđenog singletnog nivoa S_1 na bilo koji vibracioni nivo osnovnog stanja S_0 kod organskih molekula je reda veličine 10^{-9} s, dok vreme prelaska sa tripletnog stanja T_1 na osnovni nivo je reda veličine 10^{-3} s.

2.2.3. Fotomultiplikator

Izvestan broj fotona nastalih u scintilatoru dospeva do fotomultiplikatorske cevi. Fotomultiplikatorska cev se sastoji iz fotokatode napravljene od fotosenzitivnog materijala. Na njoj se vrši konverzija svetlosti u elektrone, tj. fotonii koji dospevaju iz scintilatora izbijaju, putem fotoelektričnog efekta, elektrone iz fotokatode. Mlaz elektrona sa fotokatode se fokusnom elektrodom navodi na prvu dinodu, specijalnu elektrodu na kojoj se pri udaru elektrona ubrzanih električnim poljem stvara još elektrona. Novoizbijeni elektroni se dalje ubrzavaju na drugu dinodu koja je na većem potencijalu. Tako se stvara mlaz elektrona koji se na kraju kolektuje na anodi i taj električni impuls se dalje prosleđuje na pojačavač i analizator. Za katodu i sistem dinoda se uzima da imaju linearno pojačanje u zavisnosti od visine razlike potencijala među dinodama.



Slika 5 – Shematski prikaz fotomultiplikatorske cevi [7]

Faktor pojačanja G fotomultiplikatorske cevi od n dinoda zavisi od koeficijenta sekundarne emisije elektrona na svakoj dinodi δ :

$$G = \delta^n \quad (2.1)$$

Očigledno je da je energija elektrona na svakoj dinodi zavisna od napona između svake dinode. Uzimajući da je napon između dinoda isti dobijamo relaciju za koeficijent sekundarne emisije:

$$\delta = K \cdot V_d \quad (2.2)$$

gde je K koeficijent proporcionalnosti koji zavisi od materijala dinode. Na kraju dobijamo da se ukupno pojačanje fotomultiplikatora može izraziti kao:

$$G = (K \cdot V_d)^n \quad (2.3)$$

Tabela 3. Različiti tipovi fotokatoda sa najoptimalnijim talasnim dužinama i kvantnim efikasnostima na tim talasnim dužinama.^[7]

Tip katode	Sastav	Optimalna λ za najbolji odziv [nm]	Kvantna efikasnost
S1 (C)	Ag – O - Cs	800	0.36
S4	SbCs	400	16
S11 (A)	SbCs	440	17
Super A	SbCs	440	22
S13 (U)	SbCs	440	17
S20 (T)	SbNa - KCs	420	20
S20R	SbNa - KCs	550	8
TU	SbNa - KCs	420	20
Bialkali	SbRb-Cs	420	26
Bialkali D	Sb-K-Cs	400	26
Bialkali DU	Sb-K-Cs	400	26
SB	Cs-Te	235	10

Kvantnu efikasnost definišemo kao odnos kreiranih fotoelektrona na fotokatodi i incidentnih fotona na fotokatodi

$$n(\lambda) = \frac{\text{broj kreiranih fotoelektrona}}{\text{broj incidentnih fotona} (\lambda)} \quad (2.4)$$

gde je λ talasna dužina incidentnih fotona.

2.2.4. LSC koktel

Glavne komponente LSC koktela su organski aromatični rastvarač i scintilator, što čini organski scintilacioni koktel (ne-voden). U LSC koktel se može dodati, uz glavne komponente, i emulgator što ga čini koktelom – emulzijom (vodeni koktel).^[8]

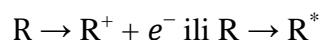
Klasični organski rastvarači koji se koriste u LSC koktelima su (prema rastućim prinosom scintilacija): benzen, toluen, ksilen i 1-2-4 – trimetilbenzen. Međutim klasični rastvarači imaju brojne nepogodne karakteristike za upotrebu: toksični su, zapaljivi su, prodiru kroz plastiku, imaju neprijatan miris. Tako da je došlo do razvoja novih ekološki prihvatljivijih rastvarača koji

su danas u upotrebi: di-izopropilnaftalen (DIN), fenilksililetan (PXE) i dodecilbenzen (LAB). Udeo organskog rastvarača u LSC koktelu može biti 60 – 99 % ukupne zapremine koktela. Naime nepogodne karakteristike rastvarača u LSC koktelima su sledeće: imaju slab kvantni prinos, talasna dužina njihove emitovane svetlosti je u intervalu 200 – 300 nm (za koju su fotomultiplikatori malo osetljivi), značajna samoapsorpcija zbog preklapanja njihovog emisionog i apsorpcionog spektra i dugo vreme gorenja (oko 30 ns) u toku kojeg su procesi prigušenja konkurentni procesi. Zbog toga im se dodaju sekundarni scintilatori.

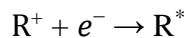
Scintilatori: LSC kokteli obično sadrže jedan ili dva scintilatora. Razlog za to je taj što primarni scintilator izvrši inicijalnu konverziju energije i emituje svetlost, ali talasna dužina emitovane svetlosti nije optimalna da bi se dobila maksimalna kvantna efikasnost u fotomultiplikatoru. S' toga je potrebno talasnu dužinu svetlosti na ulazu u fotomultiplikatorsku cev dovesti na optimalnu dodatkom sekundarnog scintilatora koji pomera talasne dužine na optimalnu za rad fotomultiplikatorske cevi. Ovi scintilatori se nazivaju i *wavelength shift*-eri. Efikasnost energetskog transfera od rastvarača do scintilatora zavisi prvenstveno od koncentracije scintilatora. Naime svetlosni prinos raste koncentracijom do maksimalnog svetlosnog prinosa, posle koga povećavanjem koncentracije scintilatora svetlosni prinos opada. Naime određivanje optimalne koncentracije scintilatora u rastvaraču nije samo pronaći odnos na kome postoji maksimalni svetlosni prinos nego se mora voditi računa i o rastvorljivosti scintilatora u rastvaraču, samoprušenja usled povećavanja interakcija između molekula scintilatora i od samoapsorpcije usled preklapanja emisionog i apsorpcionog spektra kompletног rastvora pri toj koncentraciji scintilatora.

2.2.5. Scintilacioni proces u LSC koktelima

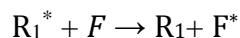
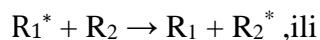
Radioaktivni materijal nalazi se u bočici zajedno sa scintilacionim koktelom (radi pojednostavljenja scintilacioni koktel sadrži samo jednu vrstu scintilatora, molekule rastvarača obeležimo sa R a molekule scintilatora koji emituje fluorescentnu svetlost sa F). Imajući u vidu da su molekuli rastvarača zastupljeni u većoj koncentraciji od rastvorenih molekula scintilatora u koktelu, ionizujuće zračenje (npr. β - čestica) će u sukcesivnim interakcijama sa koktelom verovatnije da ionizuje ili eksituje aromatične molekule rastvarača:



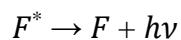
gde je prosečni gubitak energije po formiranom jonskom paru oko 20 eV. Jonizovani molekuli rastvarača zarobe slobodni elektron i konvertuju se do neutralnih (ekscitovanih) molekula:



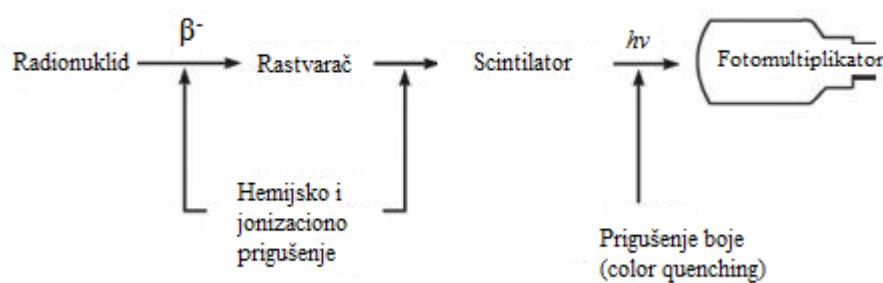
koji vrše transfer dela energije ekscitacije drugih molekula rastvarača ili molekula scintilatora neradijativnim procesima:



Ekscitovani molekuli scintilatora se vraćaju u osnovno stanje emisijama UV ili vidljive (plave) svetlosti talasnih dužina 375 - 430 nm:



koje je transparentno za koktel i zidove bočice. Fotoni koji su nastali nakon apsorpcije nanelektrisane čestice stižu do fotomultiplikatora, intenzitet svetlosti je proporcionalan energiji deponovanoj od strane nanelektrisane čestice u scintilacionom koktelu, odnosno proporcionalan je broju jonizovanih ili ekscitovanih molekula. Takođe broj impulsa po jedinici vremena je proporcionalan broju raspada po jedinici vremena – aktivnosti uzorka. Na slici 6. prikazan je scintilacioni proces u LSC koktelu sa mestima na kojima dolazi do uticaja hemijskog, ionizacionog i obojenog prigušenja.



Slika 6. – Ilustracija scintilacionog procesa u LSC koktelu [9]

2.2.6. Prigušenje u scintilacionim brojačima i metode njegovog otklanjanja

Iako u uzorcima koji se koriste za merenje LSC metodom nema samoapsorpcije, rastvorenii minerali iz prirodnih voda mogu apsorbovati emitovane fotone, što smanjuje efikasnost detekcije. Prigušenje predstavlja gubitak energije u toku njenog prenosa, dakle smanjuje intenzitet generisanih fotona u scintilacionim procesima i efikasnost detekcije radionuklida u scintilacionom koktelu. Da bi smo kvalitativno odredili DPM (*Desintegrations per minute* – aktivnost uzorka) potrebno je izmeriti CPM (*Counts per minute* – odbroj u minutu) na osnovu najbolje moguće konverzije energije incidentne čestice u fotone generisane u scintilacionom detektoru. Postoje tri tipa prigušenja: ionizaciono, hemijsko i obojeno.

Ionizaciono prigušenje odnosi se na redukciju broja gusto pobuđenih molekula scintilacionog koktela usled njihove interakcije, pa je ono posledica jonizacije generisane od strane čestica jonizujućeg zračenja uz redukciju intenziteta fotona. Problem je u nelinearnoj vezi emitovanja fotona iz scintilatora i energije koje deponuje čestica jonizujućeg zračenja.

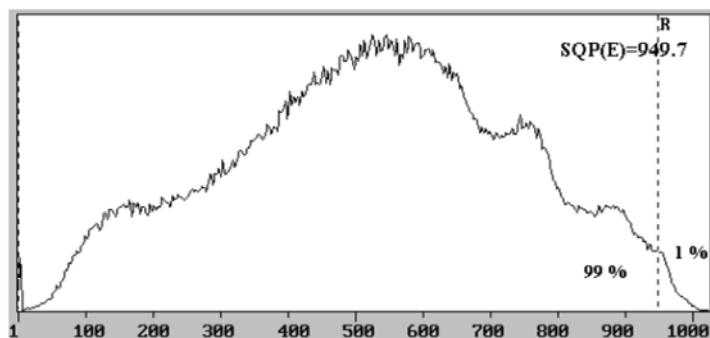
Transfer energije se odigrava u rastvoru scintilacione tečnosti i rastvarača i u njima je moguća pojava hemijskog i obojenog prigušenja koja redukuju efikasnost energetskog transfera ili utiču na apsorpciju emitovanih fotona. Kod hemijskog prigušenja se u toku transfera od rastvarača do rastvorenog scintilatora dešava delimična apsorpcija energije incidentne čestice od strane molekula scintilatora pre konverzije u fotone – jer elektronegativni atomi vezuju π elektrone iz aromatičnih rastvora i time redukuju dostupne π elektrone za efikasan transfer energije. Obojeno prigušenje, s druge strane, predstavlja atenuaciju fotona u procesima apsorpcije ili rasejanja fotona pre njihove detekcije, što opet redukuje broj fotona koji će stići do fotomultiplikatora. Zbog navedenog, detektovani odbroj CPM, a samim tim, i efikasnost detekcije su redukovani.

U cilju određivanja absolutne aktivnosti uzorka, DPM, neophodno je proveriti nivo prigušenja u uzorku i, ukoliko je potrebno, korigovati izmerenu efikasnost (na osnovu utvrđene kalibracione krive prigušenja). Hemijsko prigušenje je prisutno u određenoj meri u svim LSC uzorcima, dok se obojeno prigušenje javlja samo ukoliko se zapaža da uzorak nije transparentan.

Dalje će biti opisana metoda korekcije prigušenja tako zvana metoda eksternog standarda. Eksterni izvor γ -zračenja u interakcijama sa scintilacionim koktelom generiše Komptonov spektar, što olakšava merenje nivoa prigušenja u uzorku, jer spektar uzorka i spektar Komptonovih elektrona eksternog standarda treba da pokažu isti nivo prigušenja. Eksterno γ -zračenje izaziva sekundarnu emisiju Komptonovih elektrona koji indukuju scintilacije u molekulima scintilatora u koktelu poput β -čestica i generišu širok karakterističan spektar energija Komptonovih elektrona preko Komptonovog efekta. Uzorak sa scintilacionim koktelom se najpre meri u odsustvu, a zatim u prisustvu eksternog γ -izvora, koji je smešten u blizini bočice sa uzorkom koje je potrebno izmeriti. Odbroj koji potiče od radioaktivnosti uzorka se oduzima, pri čemu ostaje samo odbroj Komptonovih elektrona. Da bi se utvrdio nivo prigušenja Komptonovih elektrona, teorijska raspodela energija Komptonovih elektrona se poređi sa izmerenim spektrom.

Jedna od metoda eksternog standarda je **SQP(E)** (*Spectral Quench Parameter for External Standard*) koji se meri pomoću ^{226}Ra ili ^{152}Eu kao eksternih izvora γ -zračenja. Potrebno je pripremiti i izmeriti set standarda sa podjednakom poznatom aktivnošću radionuklida, sa rastućim nivoima agensa prigušenja. Odbroji standarda i SQP(E) svakog standarda se mere tehnikama LSA, i dobija se korekciona kriva prigušenja zavisnosti efikasnosti detekcije od SQP(E) parametra. Ova kriva omogućuje da se uzorak nepoznate aktivnosti analizira pomoću LSA, kojom prilikom instrument meri i SQP(E), na osnovu čega se može izvesti sa kojom efikasnošću je uzorak meren.

Izvor γ -zračenja se postavlja ispod uzorka sa pomešanim scintilacionim koktelom i SQP(E) predstavlja kraj spektra koji obuhvata 99,5% ukupnog spektra (slika 7.)



Slika 7. Izmeren SQP(E) ^[10]

3. Quantulus 1220TM

Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer Wallac 1220TM Quantulus, proizvođača Perkin Elmer, Finska, je tečni scintilacioni spektrometar koji može meriti veoma niske nivoje aktivnosti uzoraka (veštačkih, kosmičkih i drugih prirodnih radionuklida). Koristi se za detekciju α - i β - čestica γ - i X - zraka, Čerenkovljevog zračenja, Augerovih elektrona itd. Odlikuje se visokom stabilnošću, čak i u slučaju dugačkog vremena merenja; napredno razdvajanje α - i β - spektara zahvaljujući klasifikaciji na osnovu njihovog oblika impulsa; kombinacija pasivne zaštite od zračenja iz okoline masivnom olovnom zaštitom niske radioaktivnosti sa aktivnom zaštitom od kosmičkog zračenja i zračenja od okoline što sprečava gubitke u efikasnosti detekcije. Ovakva kombinacija aktivne i pasivne zaštite snižava *background*, što omogućava Quantulus-u da meri ultra niske aktivnosti uzoraka. Fotomultiplikatori u Quantulus-u imaju nizak električni šum, veliku spektralnu stabilnost, i karakteriše ih visoka kvantna efikasnost.^[10]

Maksimalna zapremina uzorka za analizu je 20 ml. Uzorci se postavljaju na tri programske kontrolisane 4x5 matrične ploče za uzorke, tako da je u jednom ciklusu moguće merenje 60 različitih uzoraka. Uzorci se mere u ciklusima uz slobodu izbora protokola i redosleda merenja. Moguće je svakom uzorku zadati različita vremena merenja. Temperaturnu stabilnost u detektoru omogućuju 4 Peltije-ova elementa koji su električni bešumni, tako da se omogućavaju stabilna merenja i u ekstremnim uslovima.



Slika 8. Quantulus 1220TM

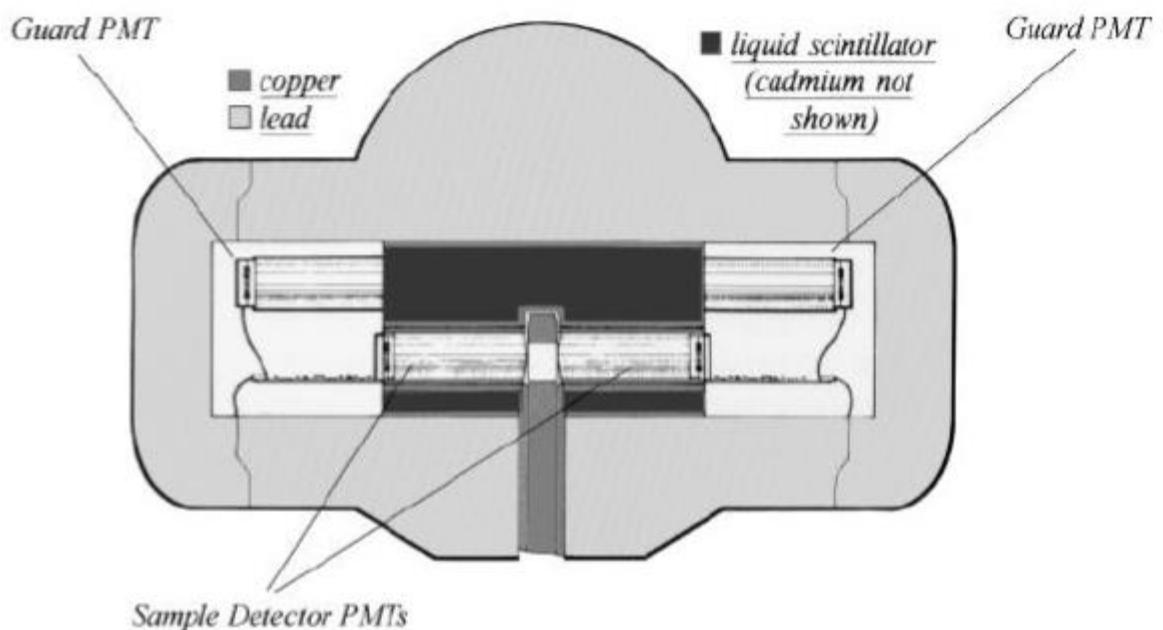
3.1. Detektorska zaštita

Da bi se omogućila što niža granica detekcije u sistem je implementiran sistem detektorske zaštite koji služi da spusti nivo pozadinskog zračenja na najniži mogući nivo da bi pružio stabilnost merenjima tokom dugačkog vremenskog perioda. Sistem detektorske zaštite se sastoji od pasivnog i aktivnog dela. Sistem detektorske zaštite je prikazan na slici 9.

Pasivna zaštita. Čini je asimetrična masivna olovna zaštita niske radioaktivnosti koja atenuira najveći deo γ – zračenja iz okoline i meki deo mionskog spektra kosmičkog zračenja. Drugu komponentu pasivne zaštite predstavlja sloj bakra koji služi za atenuaciju X – zračenja i termalnih neutrona koji nastaju u olovu interakcijom sa pozadinskim zračenjem. Olovna zaštita je najdeblja direktno iznad komore sa uzorcima, oko 20 cm (zbog najjačeg intenziteta kosmičkog zračenja), dok je sa donje strane kosmičko zračenje dobrim delom atenuirano od strane Zemlje pa je zaštita nešto tanja – oko 15 cm. Bočne strane komore zaštićene su od γ -zračenja iz okruženja detektora slojem 7 - 11 cm olova. Pasivna zaštita ne uklanja tvrdu mionsku komponentu kosmičkog zračenja ni visokoenergetsko γ -zračenje.

Aktivna zaštita. Služi za otklanjanje *background* koincidentnih događaja. Služi za otklanjanje prirodnih fluktuacija koje potiču od pozadinskih efekata, tj. otklanja signale koji se registruju i u uzorku a poreklom su od γ - zraka iz okoline i 100 % miona energija reda GeV, čiji fluks varira u skladu sa promenama atmosferskog pritiska i vlažnosti vazduha. Ako merenje traje duži vremenski period nema potrebe za korekcijom atmosferskog pritiska u Quantulus-u. Zasniva se na scintilatoru na bazi mineralnog ulja čije signale registruju dva dodatna fotomultiplikatora.

Komora sa uzorkom je zatvorena unutar zaštitnog (veto) detektora, a pripremljen uzorak i zaštitni detektor su optički 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. Znači da detektor uzorka, odnosno dva fotomultiplikatora oko uzorka, rade u antikoincidenciji sa zaštitnim detektorom - sa dva fotomultiplikatora oko zaštite.



Slika 9. Presek na kom je prikazana pasivna i aktivna zaštita u Quantulus^[19]

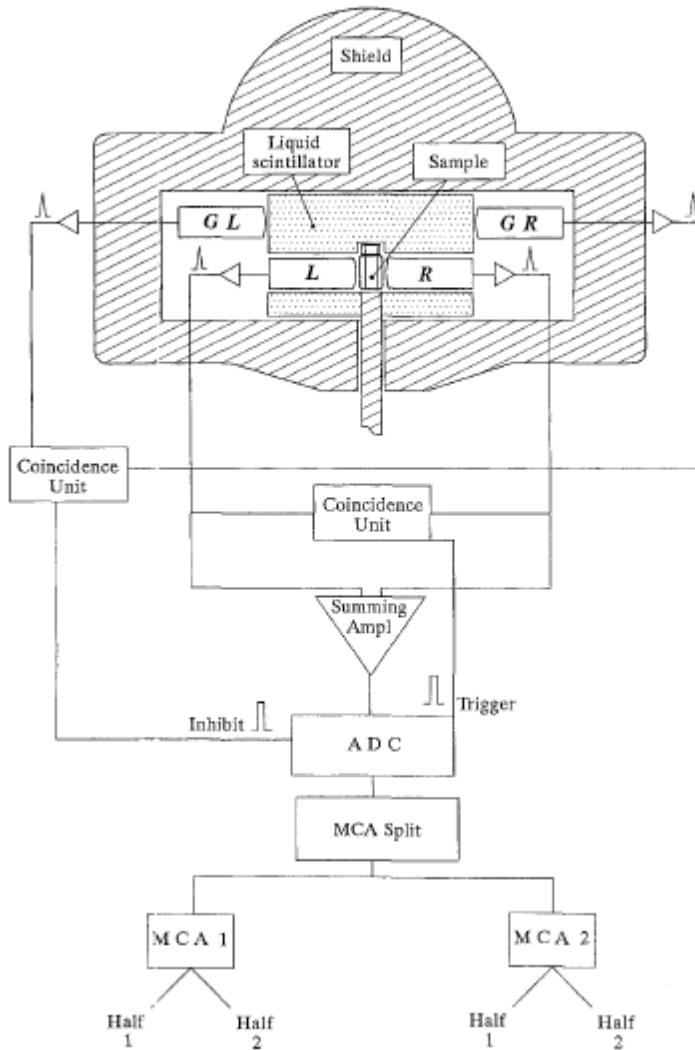
Kosmičko zračenje takođe može da izazove pojavu Čerenkovljevog zračenja u staklu fotomultiplikatorske cevi tako da se fotomultiplikatori takođe smeštaju unutar olovne zaštite.

Ukoliko jonizujuće zračenje ekscituje molekule scintilatora u aktivnoj zaštiti, oni će biti detektovani u fotomultiplikatorskoj cevi zaštitnog detektor-a. Ovaj signal aktivira logički signal. Ukoliko je signal u koincidenciji sa impulsom detektor-a uzorka koji se meri, njegov odbroj se može sprečiti ili omogućiti da se taj signal odvede na drugi kanal višekanalnog analizatora koji snima spektar pozadinskog zračenja (više o multikanalnom analizatoru – MCA u sledećem odeljku).

Aktivna zaštita redukuje pozadinske efekte bez gubitaka u efikasnosti detekcije, i obezbeđuje dobre performanse brojača čak i u području sa značajnom aktivnošću u okruženju, na primer u blizini nuklearnog akcidenta. Osnovni princip primenjen za koincidentno brojanje događaja je u izolaciji između zaštitnog detektor-a i detektor-a uzorka, tj. kvalitet uzorka i scintilatora ne utiče na uspešnost redukcije pozadinskih efekata, jer signal koji potiče od samog uzorka se ne detektuje u zaštitnom detektoru.

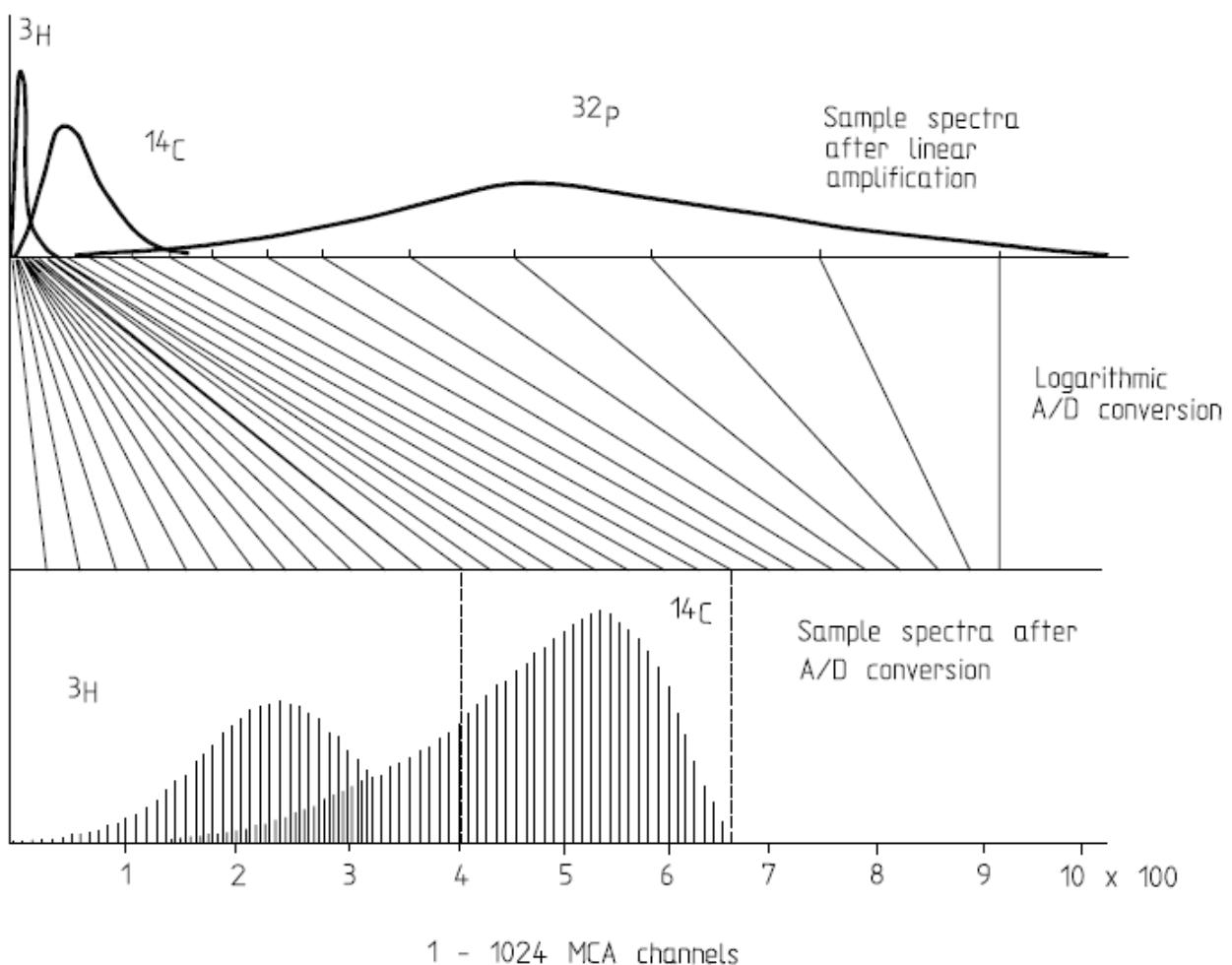
3.2. Višestruki višekanalni analizatori

U Quantulus-u se nalaze dva odvojena višekanalna analizatora (MCA, *MultiChannel Analyzer*), koja se mogu zasebno programirati. Jedan služi kao aktivna zaštita, a drugi beleži spekture (slika 10.) Svaki od njih je podeljen na dve polovine i omogućuju simultano merenje četiri spektra, svakog sa rezolucijom od 1024 kanala. Možemo ih 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 impulsa ili da se izabere polovina memorije višekanalnog analizatora.



Slika 10. Shematski prikaz uloge višekanalnog analizatora u Quantulus detektoru [11]

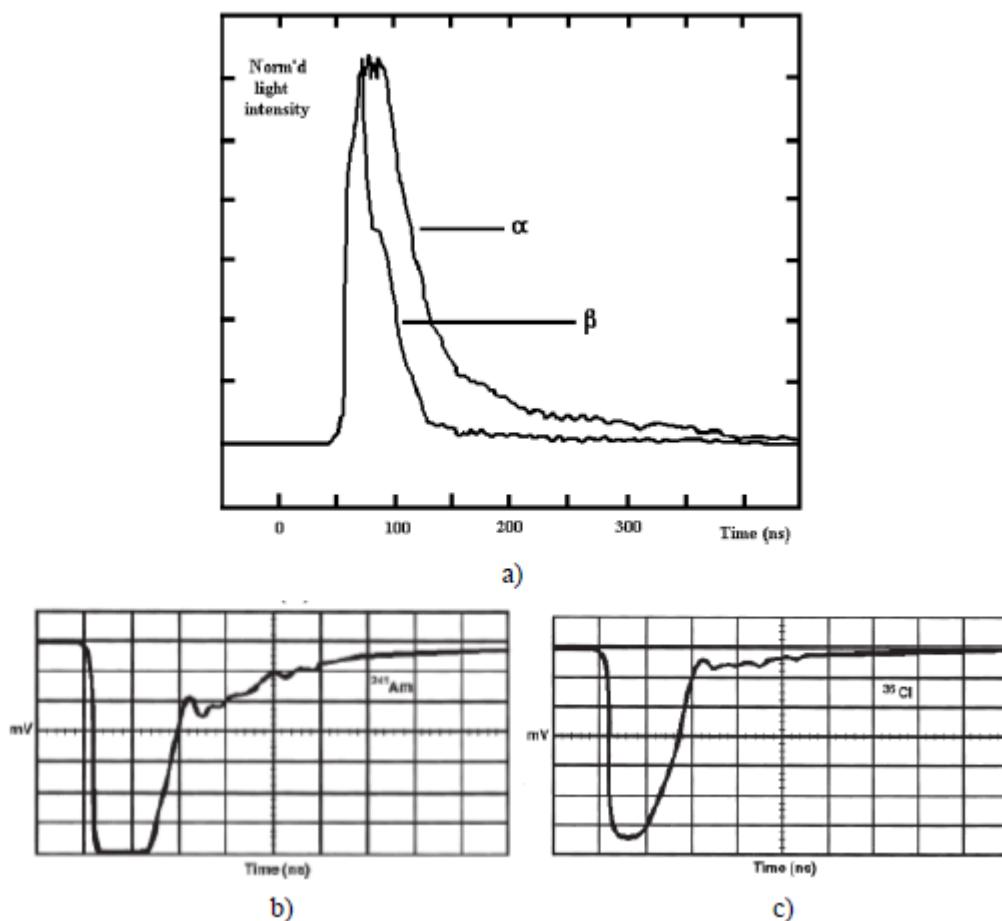
Pojačavač impulsa daje linearni spektar visina impulsa. Konverzija analognog u digitalni signal je logaritamska. Logaritamsko predstavljanje spektra ima tu prednost konstantne relativne energetske rezolucije, a za niskoenergetske izotope, poput tricijuma, poboljšavaju se mogućnosti optimizacije odnosa signal-prema-*background*-u. Logaritamski prikaz spektar prikazuje u većem opsegu kanala u odnosu na linearni spektar višekanalnog analizatora, i zbog toga je moguće, nakon izvršene optimizacije uslova merenja, podesiti opseg merenja u manjim koracima, što će imati za rezultat povećanje rezolucije spektra (slika 11.). Ovakav sistem dva višekanalna analizatora u Quantulusu su omogućila čuvanje potpunih podataka o spektru, čak i spektar odbijenih koincidencija, ako je to potrebno.



Slika 11. Na gornjem grafiku vidimo spektar nakon linearног појачања сигнала из фотомултипликатора. Taj spektar se nakon логаритамске А/D конверзије, конвертује у спектар приказан на donjem grafiku ^[10]

3.3. Analiza oblika impulsa (PSA)

PSA (*Pulse Shape Analyser*) omogućava identifikaciju čestica ionizujućeg zračenja pomoću analize oblika impulsa koje daju na izlazu. Ovo omogućava snimanje čistih α – i β – spektara, detekciju male količine β – aktivnosti u prisustvu visoke α – aktivnosti i obrnuto. Takođe obezbeđuje dodatnu redukciju pozadinskog zračenja od β – komponente uz već gore pomenutu aktivnu zaštitu. Na slici 12. možemo videti razliku između α - i β – impulsa



Slika 12. a) Oblici impulsa i njihovo trajanje za opšte α – i β – impulse; na slikama b) i c) vidimo oblik impulsa i njegovo trajanje za konkretnе primere ^{247}Am i ^{36}Cl respektivno ^[10]

Naime α – čestice imaju energiju od 5 MeV pa na više, tako da interakcijom sa tečnim scintilatorom više eksitiraju njegove molekule tako da se prilikom deeksitacije povećava verovatnoćа intersistemskih prelaza na tripletna stanja (pogledati sliku 3.), što rezultuje emitovanjem fosforecentne svetlosti koja ima duže vreme eksitacije. Teške nanelektrisane

čestice produkuju više tripletnih stanja što dovodi do dužeg vremena ekscitacije, samim tim i dužim vremenom trajanja signala. Merenje dužine trajanja impulsa nam omogućava identifikaciju čestice koja je impuls izazvala, što nam omogućava paralelno snimanje α – i β – spektara. PSA kolo radi simultano sa antikoincidentnim zaštitnim detektorom, ali nezavisno od njega.

Pozadinsko zračenje kod LSC detektora se većim delom sastoji od kratkih impulsa i stoga pripada β - spektru, dok su α - *background* impulsi obično mnogo manji od 0,1 CPM. Zato se raspadi iz nizova prirodnih radionuklida mogu meriti sa većom osetljivošću ako se mere samo njihove alfa emisije, a ne njihova ukupna α/β aktivnost. Druga primena je merenje izrazito niskih α -aktivnosti u prisustvu daleko značajnih β -aktivnosti.

Uticaj prigušenja na analizu oblika impulsa. Dužina impulsa zavisi od prigušenja u uzorku - što je veće prigušenje, kraći je impuls, i to je fizički fenomen, ne zavisi od instrumenta. Kada je nivo prigušenja konstantan, nema potrebe podešavati PSA nivo za svaki uzorak ponaosob jer efikasnost ostaje ista. Ako je pak razlika u nivou prigušenja velika, ili se PSA nivo ponovo podešava, ili se ostavi na optimalnoj vrednosti za uzorce sa najnižim nivoom prigušenja i samim tim, dozvoljava se da efikasnost za alfa čestice opadne kod višeg stepena prigušenja, pa se koristi kalibraciona kriva prigušenja.

3.4. Korekcija prigušenja na Quantulusu

Quantulus koristi metodu eksternog standarda SQP(E), opisanog u predhodnom poglavljju, zbog dobro definisane krajnje tačke spektra u logaritamskoj skali. Visokoenergetski izvor ^{152}Eu sa niskom aktivnošću oko 37 kBq nalazi se u kapsuli od nerđajućeg čelika u blizini komore gde se postavljaju bočice prilikom merenja. Korekcija prigušenja se može izvršiti upotrebom kalibracione krive zavisnosti efikasnosti detekcije od stepena prigušenja, odnosno nivoa eksternog standarda SQP(E). Ova korekciona kriva prigušenja dobija se merenjem seta standarda, serije uzoraka koji sadrže isti radionuklid u scintilacionom koktelu sa istim koncentracijama poznate aktivnosti, ali sa različitim nivoom prigušenja što smanjuje njihove odbroje.

Merenje SQP(E) se vrši u dve faze:

- 1) Eksterni standard se dovodi do uzorka, snima se spektar koji predstavlja zbir odbroja iz uzorka i elektrona nastalih u Komptonovim efektima rasejanja visokoenergetskog γ – zračenja koje potiče od ^{152}Eu (oko 148 keV).
- 2) Eksterni standard se ukloni, snimi se samo spektar uzorka u istom vremenskom intervalu kao i prvi spektar. Spektar eksternog standarda i SQP(E) se računaju na osnovu razlike snimljenih spektara.

Prilikom merenja uzorka nepoznatog nivoa prigušenja koristi se vrednost SQP(E) koju Quantulus automatski izbacuje za svaki uzorak i na osnovu kalibracione krive prigušenja određuje se efikasnost detekcije u datom uzorku.

4. Određivanje ukupne α/β aktivnosti u uzorku

Kao što smo na početku rekli, prirodne vode sadrže mnoge alfa i beta emitere koji potiču iz prirodnih nizova Urana i Torijuma, kao i ^{40}K , i iz veštačkih izvora, produkata fisije, ^{90}Sr i ^{137}Cs . Merenje ukupne α/β aktivnosti spada u standardnu metodu provere radi otkrivanja dugoživećih radioaktivnih izotopa u vodi radi procene bezbednosti vode za piće, tj da li određeni uzorak zahteva dalju analizu.

Standardna ASTM metoda^[1] određivanja ukupne α/β aktivnosti zahteva dugačku pripremu uzorka gde se uzorak prvo tretira da bi mu se postigao optimalan nivo pH vrednosti, da bi se kasnije morao upariti do suvog ostatka na osnovu čije mase se određuje stepen prigušenja (QIP – *Quenching Indicating Parameter*). Druga metoda, koja će kasnije biti predstavljena, ne zahteva detaljnu pripremu uzorka.

Za merenje ukupne alfa i ukupne beta aktivnosti tečnih uzoraka, scintilacioni brojač mora se kalibrirati tako što se određuje efikasnost detekcije za alfa česticu u alfa regiji od interesa (ROI), efikasnost za detekciju alfa čestice u beta ROI, efikasnost detekcije beta čestice u beta ROI i efikasnost detekcije beta čestice u alfa ROI.

4.1. Određivanje efikasnosti detekcije

Efikasnost detekcije α -čestice u α -ROI ($\varepsilon_{\alpha\alpha}$) i efikasnost detekcije α -čestice u β -ROI ($\varepsilon_{\alpha\beta}$) za svaki od pripremljenih α -kalibracionih standarda računa se prema:

$$\varepsilon_{\alpha\alpha} = \frac{R_{\alpha\alpha} - R_{\alpha b}}{c_\alpha V_{s\alpha}} , \quad (4.1)$$

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \frac{R_{\alpha\beta} - R_{\beta b}}{c_\alpha V_{s\alpha}} , \quad (4.2)$$

gde su:

$R_{\alpha\alpha}$ – odbroj kalibracionog standarda (α - emitera) u α - ROI [s^{-1}];

$R_{\alpha b}$ – odbroj matrice/*blank*-a u α - ROI [s^{-1}];

$R_{\alpha\beta}$ – odbroj kalibracionog standarda (α - emitera) u β - ROI [s^{-1}];

$R_{\beta b}$ – odbroj matrice/*blank*-a u β - ROI [s^{-1}];

c_α – koncentracija aktivnosti referentnog α - standarda [$Bq ml^{-1}$];

$V_{s\alpha}$ – zapremina referentnog α - standarda spajkovanog u bočici [ml] .

Efikasnost detekcije β - čestice u β - ROI ($\varepsilon_{\beta\beta}$) i efikasnost detekcije β - čestice u α - ROI ($\varepsilon_{\beta\alpha}$) za svaki od pripremljenih β - kalibracionih standarda računa na sličan način prema formulama:

$$\varepsilon_{\beta\beta} = \frac{R_{\beta\beta} - R_{\beta b}}{c_\beta V_{s\beta}} , \quad (4.3)$$

$$\varepsilon_{\beta\alpha} = \frac{R_{\beta\alpha} - R_{\alpha b}}{c_\beta V_{s\beta}} , \quad (4.4)$$

gde su:

$R_{\beta\beta}$ – odbroj kalibracionog standarda (β - emitera) u β - ROI [s^{-1}];

$R_{\beta b}$ – odbroj matrice/*blank*-a u β - ROI [s^{-1}];

$R_{\beta\alpha}$ – odbroj kalibracionog standarda (β - emitera) u α - ROI [s^{-1}];

$R_{\alpha b}$ –odbroj matrice/*blank*-a u α - ROI [s^{-1}];

c_β –koncentracija aktivnosti referentnog β - standarda [$Bq ml^{-1}$];

$V_{s\beta}$ –zapremina referentnog β - standarda spajkovanog u bočici [ml].

4.2. Spillover faktori

Misklasifikacioni faktori $\alpha - u - \beta$ ROI (X_α) i $\beta - u - \alpha$ ROI (X_β), i njihove merne nesigurnosti, $u^2(X_\alpha)$ i $u^2(X_\beta)$, računaju se prema izrazima:

$$X_\alpha = \frac{\varepsilon_{\alpha\beta}}{\varepsilon_{\alpha\alpha}}, \quad (4.5)$$

$$u^2(X_\alpha) = X_\alpha^2 \left(\frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\beta})}{\varepsilon_{\alpha\beta}^2} - \frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\alpha})}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2} \right), \quad (4.6)$$

$$X_\beta = \frac{\varepsilon_{\beta\alpha}}{\varepsilon_{\beta\beta}}, \quad (4.7)$$

$$u^2(X_\beta) = X_\beta^2 \left(\frac{u^2(\varepsilon_{\beta\alpha})}{\varepsilon_{\beta\alpha}^2} - \frac{u^2(\varepsilon_{\beta\beta})}{\varepsilon_{\beta\beta}^2} \right), \quad (4.8)$$

ukojima figurišu efikasnosti detekcije ($\varepsilon_{\alpha\alpha}, \varepsilon_{\alpha\beta}, \varepsilon_{\beta\beta}, \varepsilon_{\beta\alpha}$).

4.3. Procena minimalne detektibilne aktivnosti MDA [$Bq l^{-1}$]

Minimalna detektibilna aktivnost u α - ROI i β - ROI izračunata je za svaki odnos uzorak:scintilacioni koktel na osnovu odbroja *background*-a u α - ROI i β - ROI^[12],

$$MDA_\alpha = \frac{2,71 + 4,65\sqrt{R_{\alpha b} t_b}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} V t_b} \quad (4.9)$$

$$MDA_\beta = \frac{2,71 + 4,65\sqrt{R_{\beta b} t_b}}{\varepsilon_{\beta\beta} V t_b} \quad (4.10)$$

gde su:

t_b – vreme merenja *background*-a [s];

V – zapremina uzorka [l].

4.4. Određivanje α/β odbroja i njihovih mernih nesigurnosti

Neto odbroj uzorka u α - ROI, R_α [s^{-1}], i njegova greška merenja $u(R_\alpha)$ dobijaju se kao:

$$R_\alpha = R_{\alpha\alpha} - R_{\alpha b}, \quad (4.11)$$

$$u(R_\alpha) = \sqrt{\frac{R_{\alpha\alpha}}{t_s} + \frac{R_{\alpha b}}{t_b}}, \quad (4.12)$$

gde su:

$R_{\alpha\alpha}$ – odbroj uzorka u α - ROI [s^{-1}];

$R_{\alpha b}$ – odbroj *background*-a u α - ROI [s^{-1}];

t_s, t_b – vreme merenja uzorka i *background*-a [s].

Neto odbroj uzorka u β - ROI, R_β [s^{-1}], i njegova greška merenja $u(R_\beta)$ dobijaju se kao:

$$R_\beta = R_{\beta\beta} - R_{\beta b}, \quad (4.13)$$

$$u(R_\beta) = \sqrt{\frac{R_{\beta\beta}}{t_s} + \frac{R_{\beta b}}{t_b}}, \quad (4.14)$$

gde su:

$R_{\beta\beta}$ – odbroj uzorka u β - ROI [s^{-1}];

$R_{\beta b}$ – odbroj *background*-a u β - ROI [s^{-1}].

Na kraju, korigovani α/β odbroji – R'_α i R'_β – tj. α/β neto odbroji korigovani *spillover* faktorom α/β misklasifikacije, a zatim i standardne nesigurnosti ovih korigovanih odbroja – $u_c(R'_\alpha)$ i $u_c(R'_\beta)$ – računaju se prema:

$$R'_\alpha = \frac{R_\alpha - R_\beta X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} , \quad (4.15)$$

$$R'_\beta = \frac{R_\beta - R_\alpha X_\alpha}{1 - X_\alpha X_\beta} , \quad (4.16)$$

$$u_c(R'_\alpha) = \sqrt{\frac{u^2(R_\alpha) + X_\beta^2 u^2(R_\beta) + R'_\alpha^2 X_\beta^2 u^2(X_\alpha) + R'_\beta^2 u^2(X_\beta)}{1 - X_\alpha X_\beta}} , \quad (4.17)$$

$$u_c(R'_\beta) = \sqrt{\frac{u^2(R_\beta) + X_\alpha^2 u^2(R_\alpha) + R'_\beta^2 X_\alpha^2 u^2(X_\beta) + R'_\alpha^2 u^2(X_\alpha)}{1 - X_\alpha X_\beta}} . \quad (4.18)$$

4.5. Određivanje ukupne α/β koncentracije aktivnosti i njihovih mernih nesigurnosti

Ukupna koncentracija alfa aktivnosti i njena merna nesigurnost dobijaju se na osnovu izraza:

$$AC_\alpha = \frac{R_\alpha'}{\varepsilon_{\alpha\alpha} V} , \quad (4.19)$$

$$u_c(AC_\alpha) = \sqrt{\frac{u_c^2(R'_\alpha)}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2 V^2} + AC_\alpha^2 \left(\frac{u^2(V)}{V^2} + \frac{1 + X_\alpha X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} \cdot \frac{u^2(\varepsilon_{\alpha\alpha})}{\varepsilon_{\alpha\alpha}^2} \right)} , \quad (4.20)$$

gde su:

AC_α – ukupna alfa koncentracija aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹];

V – zapremina uzorka [l];

$u_c(AC_\alpha)$ – kombinovana standardna nesigurnost ukupne α - aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹] .

Ukupna koncentracija beta aktivnosti i njena merna nesigurnost dobijaju se na osnovu izraza:

$$AC_\beta = \frac{R_\beta'}{\varepsilon_{\beta\beta} V} , \quad (4.21)$$

$$u_c(AC_\beta) = \sqrt{\frac{u_c^2(R'_\beta)}{\varepsilon_{\beta\beta}^2 V^2} + AC_\beta^2 \left(\frac{u^2(V)}{V^2} + \frac{1 + X_\alpha X_\beta}{1 - X_\alpha X_\beta} \cdot \frac{u^2(\varepsilon_{\beta\beta})}{\varepsilon_{\beta\beta}^2} \right)} , \quad (4.22)$$

gde su:

AC_β – ukupna beta koncentracija aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹];

$u_c(AC_\beta)$ – kombinovana standardna nesigurnost ukupne β - aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹] .

Standardne nesigurnosti koje su uslovljene samo statistikom brojanja računaju se kao:

$$u_{cc}(AC_\alpha) = \frac{\sqrt{u^2(R_\alpha) + X_\beta^2 u^2(R_\beta)}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} V (1 - X_\alpha X_\beta)} , \quad (4.23)$$

$$u_{cc}(AC_\beta) = \frac{\sqrt{u^2(R_\beta) + X_\alpha^2 u^2(R_\alpha)}}{\varepsilon_{\beta\beta} V (1 - X_\alpha X_\beta)} . \quad (4.24)$$

4.6. Granice detekcije ukupnih α/β aktivnosti

Poređenjem neto α -odbroja (R_α) sa kritičnom vrednosti neto odbroja korigovanom *spillover* faktorom ($R_{\alpha C}$) odlučuje se da li je alfa aktivnost detektovana u nekom uzorku,

$$R_{\alpha C} = R_\beta X_\beta + 1,645 \sqrt{\frac{R_{\alpha+\beta} X_\beta}{t_s} + (R_{\alpha b} + X_\beta^2 R_{\beta b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b}\right)} , \quad (4.25)$$

gde je:

$$R_{\alpha+\beta} = \begin{cases} R_\alpha + R_\beta & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta \geq 0 , \\ 0 & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta < 0 . \end{cases}$$

Ukoliko je $R_\alpha > R_{\alpha C}$, α -aktivnost je prisutna u uzorku. Kada koristimo prethodni uslov kao odluku o detekciji, računamo *a priori* minimalnu detektibilnu koncentraciju (MDC) za α -koncentraciju aktivnosti:

$$MDC_\alpha = \frac{2,71 \frac{1+X_\alpha X_\beta^2}{t_s(1-X_\alpha X_\beta)} + 3,29 \sqrt{\frac{AC_\beta V \varepsilon_{\beta\alpha}(1+X_\beta)}{t_s} + (R_{\alpha b} + X_\beta^2 R_{\beta b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b}\right)}}{\varepsilon_{\alpha\alpha} V (1 - X_\alpha X_\beta)} , \quad (4.26)$$

gde je:

AC_β – specifična ukupna beta koncentracija aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹] (ne-negativna);

t_s, t_b – vreme merenja uzorka i *background-a* [s];

$\varepsilon_{\alpha\alpha}$ – efikasnost detekcije α -čestice u α -ROI;

$\varepsilon_{\beta\alpha}$ – efikasnost detekcije β -čestice u α -ROI ($= \varepsilon_{\beta\beta} \cdot X_\beta$);

V – zapremina uzorka [l].

Poređenjem neto β - odbroja (R_β) sa kritičnom vrednosti neto odbroja korigovanom *spillover* faktorom ($R_{\beta C}$) odlučuje se da li je beta aktivnost detektovana u nekom uzorku,

$$R_{\alpha C} = R_\beta X_\beta + 1,645 \sqrt{\frac{R_{\alpha+\beta} X_\beta}{t_s} + (R_{\alpha b} + X_\beta^2 R_{\beta b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)}, \quad (4.27)$$

gde je:

$$R_{\alpha+\beta} = \begin{cases} R_\alpha + R_\beta & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta \geq 0, \\ 0 & \text{ako je } R_\alpha + R_\beta < 0. \end{cases}$$

Ukoliko je $R_\beta > R_{\beta C}$, β -aktivnost je prisutna u uzorku. Kada koristimo prethodni uslov kao odluku o detekciji, računamo *a priori* minimalnu detektibilnu koncentraciju (MDC) za β -koncentraciju aktivnosti:

$$MDC_\beta = \frac{2,71 \frac{1+X_\beta X_\alpha^2}{t_s(1-X_\alpha X_\beta)} + 3,29 \sqrt{\frac{AC_\alpha V \varepsilon_{\alpha\beta}(1+X_\alpha)}{t_s} + (R_{\beta b} + X_\alpha^2 R_{\alpha b}) \left(\frac{1}{t_s} + \frac{1}{t_b} \right)}}{\varepsilon_{\beta\beta} V (1 - X_\alpha X_\beta)}, \quad (4.28)$$

gde je:

AC_α – specifična ukupna alfa koncentracija aktivnosti uzorka [Bq l⁻¹] (ne-negativna);

$\varepsilon_{\beta\beta}$ – efikasnost detekcije β -čestice u β - ROI;

$\varepsilon_{\alpha\beta}$ – efikasnost detekcije α -čestice u β - ROI ($= \varepsilon_{\alpha\alpha} \cdot X_\alpha$).

5. Rezultati i diksusija

Brzom metodom se priprema uzoraka za merenje drastično smanjuje, što je u standardnoj metodi merenja ukupne α/β – aktivnosti bio najduži proces^{[1][8][13]}. U ovoj metodi nije potrebno uzorak dodatno tretirati, što mu povećava minimalnu detektibilnu aktivnost i smanjuje tačnost merenja, ali je pogodno za brze provere.^[13]. Naime, mora se odrediti tačan zapreminski odnos uzorak:scintilacioni koktel za koji je MDA najmanja, i koja zadovoljava prag detekcije.

Za kalibraciju ove metode korišćen je Ultima Gold AB scintilacioni koktel koji je naročito pogodan za niskofonska merenja i preciznu diskriminaciju α/β spektara i simultano merenje α/β aktivnosti. Neaktivni uzorci su pripremljeni sa destilovanom vodom. Za kalibraciju detektorskog sistema su korišćeni standardni kalibracioni izvori (*Czech Metrology Institute Inspectorate for Ionizing Radiation*): ^{241}Am (pripremljen u 20 mg $^{1\text{-}}\text{Sm}(\text{NO}_3)_3$ + 6,3 g $^{1\text{-}}\text{HNO}_3$ rastvoru) specifične aktivnosti 37,57 (8) Bq ml^{-1} na dan 1.10.2013, sa kombinovanom nesigurnosti 0,2 %; i $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ (pripremljen u rastvoru 20 mg $^{1\text{-}}\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ + 20 mg $^{1\text{-}}\text{Y}(\text{NO}_3)_3$ + 3 g $^{1\text{-}}\text{HNO}_3$), specifične aktivnosti 38,18 (19) Bq ml^{-1} na dan 1.10.2013, sa kombinovanom nesigurnosti 0,5%. Pre eksperimenata kalibracije detektora potrebno je utvrditi optimalne vrednosti PSA diskriminatora za svaki zapreminski odnos uzorak:scintilacioni koktel.

5.1. Određivanje optimalne PSA vrednosti

Da bi se omogućilo razlikovanje alfa od beta događaja u spektru, i dodatno redukovali pozadinski efekti, potrebno je pre početka merenja na detektoru podesiti analizator oblika impulsa PSA, snimanjem krivih zavisnosti faktora misklasifikacije (τ) od PSA kalibracionih standarda čistog alfa emitera ^{241}Am i čistog beta emitera $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. Ovi standardi pripremaju se sa scintilacionim koktelom u istoj hemijskoj kompoziciji kao i očekivani uzorci za analizu, što je u ovom slučaju u svim zapreminskim odnosima uzorak:koktel od 4 (ml uzorka) : 16 (ml koktela) do 16:4 – zapremina bočice za uzorke je 20 ml.

Procedura kalibracije podrazumeva snimanje spektara standarda pri različitim PSA nivoima (pri čemu su duži impulsi smeštaju u α -MCA, a kraći impulsi u β -MCA). Faktori misklasifikacije za alfa događaj (τ_α) i beta događaj (τ_β) računaju se za svaku vrednost PSA prema relacijama:

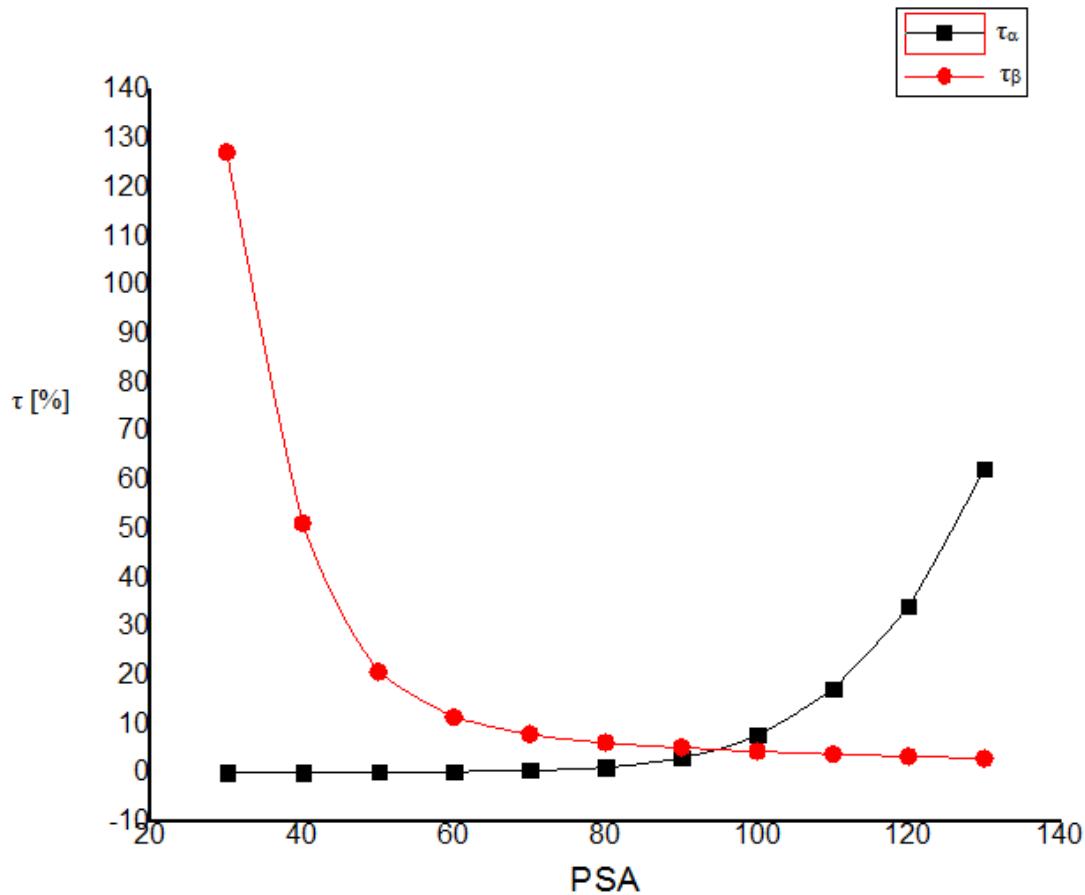
$$\tau_\alpha[\%] = \frac{\alpha \text{ odbroj u } \beta \text{ prozoru}}{\text{ukupni } \alpha \text{ odbroj}} \cdot 100 \quad (5.1)$$

$$\tau_\beta[\%] = \frac{\beta \text{ odbroj u } \alpha \text{ prozoru}}{\text{ukupni } \beta \text{ odbroj}} \cdot 100 \quad (5.2)$$

Spektri su snimani za svaki zapreminski odnos i za vrednosti PSA u opsegu od 30 do 130 u razmaku od 10. Svaki spektar se analizirao u *EasyView* programu gde su se očitavali odbroji. Primer kako se određivao PSA presek za zapreminski odnos 11:9 prikazan je u tabeli 4. Graficka zavisnost faktora misklasifikacije od vrednosti PSA parametra data je na slici 13.

Tabela 4.

Vrednost PSA	Ukupni α odbroj [s ⁻¹]	Odbroj α u β prozoru [s ⁻¹]	Ukupan odbroj β [s ⁻¹]	Odbroj β u α prozoru [s ⁻¹]	τ_α [%]	τ_β [%]
30	56,604	0,003	55,050	69,965	0,005	127,094
40	56,328	0,011	82,707	42,196	0,020	51,019
50	56,910	0,037	103,373	21,332	0,065	20,636
60	56,949	0,070	111,940	12,643	0,123	11,294
70	54,449	0,217	115,423	8,987	0,399	7,786
80	56,532	0,613	117,127	7,213	1,084	6,158
90	54,930	1,694	118,545	6,027	3,084	5,084
100	52,835	4,084	119,193	5,197	7,730	4,360
110	48,652	8,390	120,344	4,454	17,245	3,701
120	42,245	14,448	120,679	3,989	34,200	3,305
130	34,992	21,790	121,238	3,538	62,271	2,918

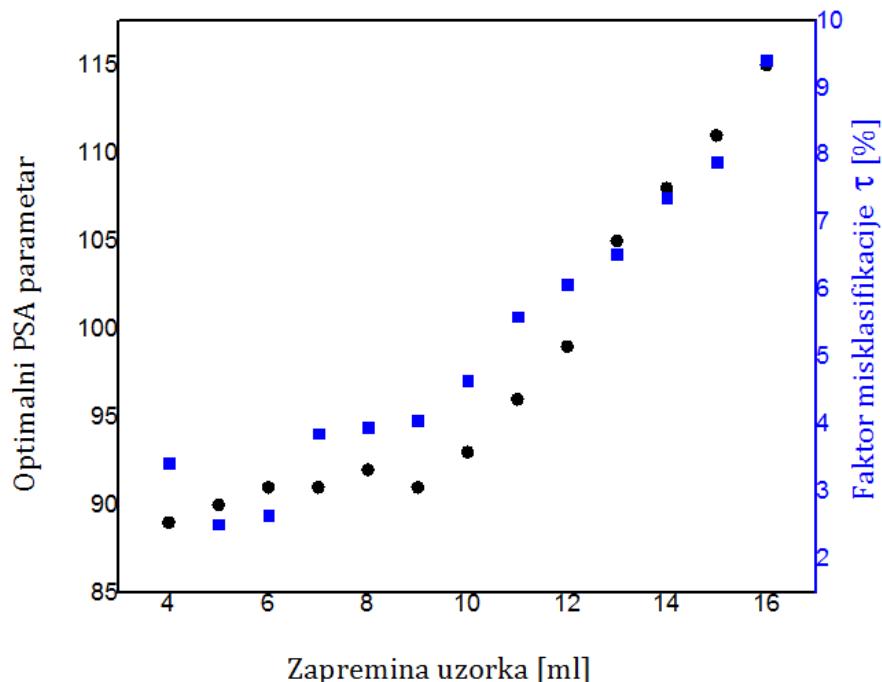


Slika 13. Izgled PSA krivih i presek τ_{α} i τ_{β} krive za određeni uzorak (u ovom slučaju za zapreminski odnos 11:9)

Za minimum interferencije događaja se bira kada je $\tau_{\alpha} = \tau_{\beta}$ tj. minimalan i jednak faktor misklasifikovanih α – događaja u β – prozoru i β – događaja u α - prozoru. Vrednost τ na kojoj je $\tau_{\alpha} = \tau_{\beta}$ naziva se *spillover* faktor τ [%] za datu hemijsku kompoziciju. Vrednost PSA diskriminatora se postavlja na mesto gde je $\tau_{\alpha} = \tau_{\beta}$ i nepoznati uzorak sa istom hemijskom kompozicijom (u ovom slučaju istim odnosom zapremina) se meri za tu vrednost PSA. U tabeli 4. su prikazani optimalni PSA parametar i faktor misklasifikacije za svaki odnos zapremina uzorak:koktel, dok su na slici 14. grafički predstavljene zavisnost optimalnog PSA i Faktora misklasifikacije od zapremine uzorka u rastvoru.

Tabela 5. Vrednosti optimalne PSA vrednosti i Faktora misklasifikacije za svaki zapreminski odnos uzorak:koktel

Zapreminski odnos	Optimalna vrednost PSA	Faktor misklasifikacije
4ml uzorka + 16 ml UGAB	89	3,43
5ml uzorka + 15 ml UGAB	90	2,52
6ml uzorka + 14 ml UGAB	91	2,66
7ml uzorka + 13 ml UGAB	91	3,87
8ml uzorka + 12 ml UGAB	92	3,96
9ml uzorka + 11 ml UGAB	91	4,06
10ml uzorka + 10 ml UGAB	93	4,65
11ml uzorka + 9 ml UGAB	96	5,61
12ml uzorka + 8 ml UGAB	99	6,09
13ml uzorka + 7 ml UGAB	105	6,54
14ml uzorka + 6 ml UGAB	108	7,38
15ml uzorka + 5 ml UGAB	111	7,91
16ml uzorka + 4 ml UGAB	115	9,41



Slika 14. Zavisnosti optimalnog PSA parametra i Faktora misklasifikacije od zapremine uzorka

5.2. Određivanje efikasnosti detekcije za α - i β – događaje

Određivanje efikasnosti detekcije nam je potrebno za određivanje minimalne detektibilne aktivnosti. Efikasnost detekcije određujemo prema relacijama datim u odeljku 4.1. U tabeli 6. date su vrednosti efikasnosti detekcije (sa mernom nesigurnosti) za svaki zapreminske odnos uzorak:koktel.

Tabela 6. Efikasnosti detekcije za sve zapremske odnose uzorak:koktel

Zapreminska odnosa	$\varepsilon_{\alpha\alpha}$ [%]	$\varepsilon_{\alpha\beta}$ [%]	$\varepsilon_{\beta\beta}$ [%]	$\varepsilon_{\beta\alpha}$ [%]
4ml uzorka + 16 ml UGAB	96,98 (23)	4,89 (5)	190,2 (10)	3,36 (6)
5ml uzorka + 15 ml UGAB	96,9 (3)	5,26 (5)	191,4 (10)	3,54 (3)
6ml uzorka + 14 ml UGAB	96,5 (3)	5,29 (4)	190,4 (10)	3,78 (6)
7ml uzorka + 13 ml UGAB	95,9 (3)	5,26 (9)	183,5 (10)	3,911 (23)
8ml uzorka + 12 ml UGAB	94,26 (24)	5,472 (23)	189,4 (10)	4,833 (27)
9ml uzorka + 11 ml UGAB	86,12 (19)	5,57 (5)	190,7 (10)	6,82 (9)
10ml uzorka + 10 ml UGAB	81,53 (17)	5,04 (8)	180,2 (9)	7,48 (12)
11ml uzorka + 9 ml UGAB	72,43 (20)	4,84 (3)	173,9 (9)	8,02 (5)
12ml uzorka + 8 ml UGAB	64,40 (16)	4,12 (5)	158,1 (8)	5,40 (8)
13ml uzorka + 7 ml UGAB	54,33 (23)	3,703 (16)	137,6 (8)	5,97 (8)
14ml uzorka + 6 ml UGAB	41,57 (15)	3,647 (26)	121,2 (6)	5,48 (4)
15ml uzorka + 5 ml UGAB	34,03 (13)	3,44 (3)	105,1 (7)	5,03 (7)
16ml uzorka + 4 ml UGAB	27,77 (6)	3,457 (12)	92,7 (5)	5,72 (13)

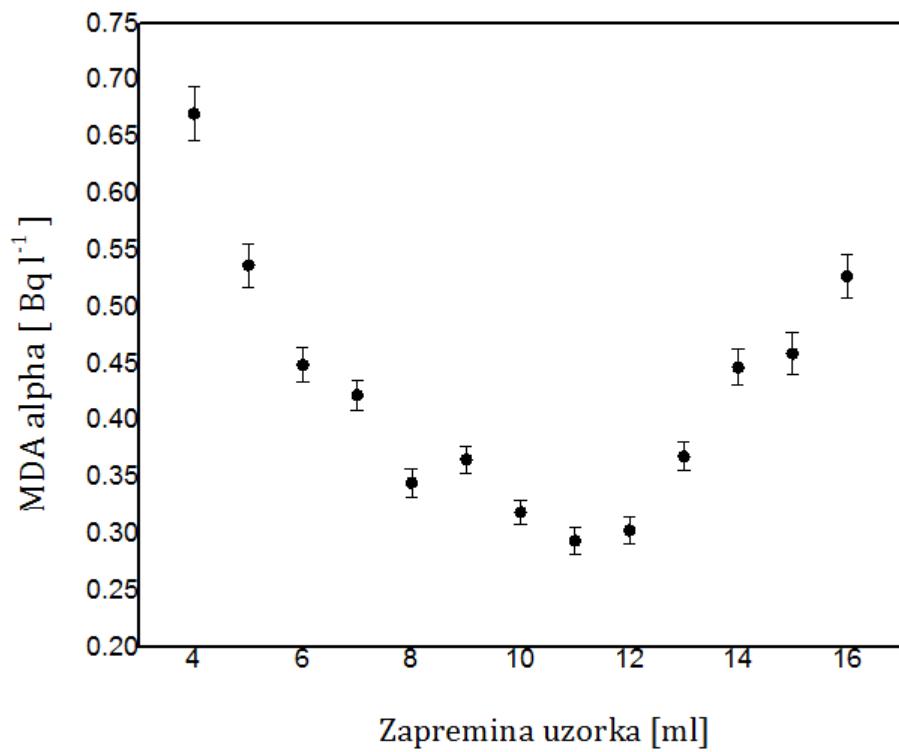
5.3. Određivanje minimalne detektibilne aktivnosti

Minimalnu detektabilnu aktivnost za dati zapreminske odnos računamo prema relacijama koje su date u odeljku 4.3. Minimalna detektibilna aktivnost se određuje na osnovu merenja blank uzorka za vreme merenja od 300 minuta. Dužim merenjem se mogu postići i niže vrednosti. Određivanje minimalne detektibilne aktivnosti nam je od krucijalne važnosti jer se moraju zadovoljiti republički standardi za minimalnu detektibilnu aktivnost od $0,5 \text{ Bql}^{-1}$ za α – emitere i 1Bql^{-1} za β – emitere.^{[5][13]}

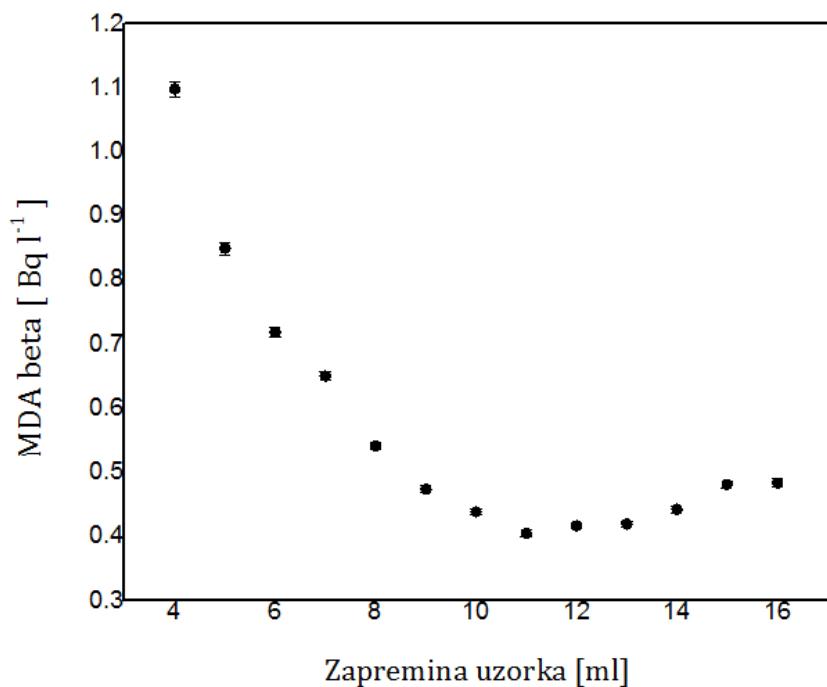
U tabeli 7. je prikazana MDA za α – i β – emitere, za svaki zapreminske odnos uzorak:koktel. Na slikama 15 i 16. grafički su prikazane zavisnosti MDA za α – i β – emitere respektivno, u odnosu na zapreminu uzorka sa njihovim mernim nesigurnostima.

Tabela 7. MDA za alfa i beta emitere za svaki zapreminske odnos uzorak:koktel, za $t = 300 \text{ min}$

Zapreminske odnose	MDA _{α} [Bql ⁻¹]	MDA _{β} [Bql ⁻¹]
4ml uzorka + 16 ml UGAB	0,670(23)	1,097(12)
5ml uzorka + 15 ml UGAB	0,536(19)	0,8494(10)
6ml uzorka + 14 ml UGAB	0,449(16)	0,718(8)
7ml uzorka + 13 ml UGAB	0,422(13)	0,650(7)
8ml uzorka + 12 ml UGAB	0,344(12)	0,541(6)
9ml uzorka + 11 ml UGAB	0,365(12)	0,473(5)
10ml uzorka + 10 ml UGAB	0,319(11)	0,438(5)
11ml uzorka + 9 ml UGAB	0,294(11)	0,404(5)
12ml uzorka + 8 ml UGAB	0,303(12)	0,416(5)
13ml uzorka + 7 ml UGAB	0,368(13)	0,419(5)
14ml uzorka + 6 ml UGAB	0,446(16)	0,442(5)
15ml uzorka + 5 ml UGAB	0,458(19)	0,481(6)
16ml uzorka + 4 ml UGAB	0,527(19)	0,483(6)



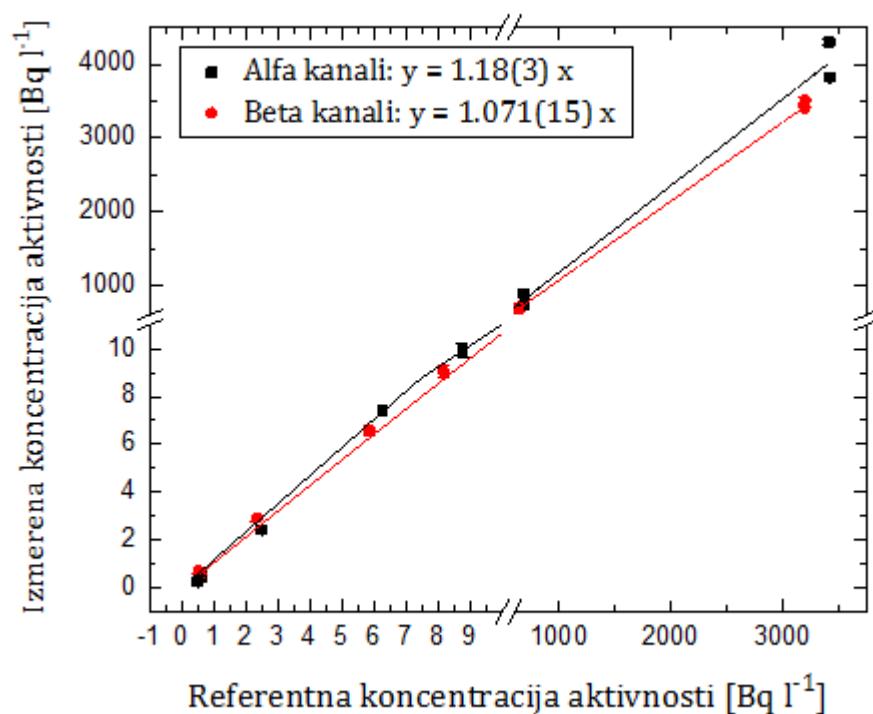
Slika 15. Zavisnost MDA_α u odnosu na zapreminu uzorka, za t = 300min



Slika 16. Zavisnost MDA_β u odnosu na zapreminu uzorka, za t = 300min

5.4. Evaluacija direktnе α/β metode

Urađena je provera tačnosti ove metode na nekoliko spajkovanih uzoraka ^{241}Am i ^{90}Sr (isti izotopi koji su bili korišteni u kalibraciji) sa različitim koncentracijama aktivnosti – od reda veličine MDA; 10 Bq/l koje se mogu naći prilikom redovnog monitoringa; do veoma visokih koncentracija aktivnosti koje se mogu očekivati pri akcidentnim situacijama (neki uzorci su bili oko 600 do 3000 Bq l^{-1}). Svi uzorci su bili pripremljeni kao tipični terenski uzorci: ^{241}Am i ^{90}Sr su spajkovani u boćice sa destilovanom vodom, tretirani su sa HNO_3 . Kasnije su napravljeni uzorci za merenje u boćicama zapremine 20 ml sa gore određenim zapreminskim odnosom 11:9 za direktnu α/β – metodu. Vreme merenja je 300 min. Na slici 17. grafički je prikazan odnos izmerenih koncentracija aktivnosti direktnom α/β – metodom i referentnih koncentracija



Slika 17. Odnos izmerenih i referentnih koncentracija aktivnosti

Sa slike 17. možemo odrediti faktore korelacije za α - i β - koncentracije linearnim fitom zavisnosti:

$$Ik = k \cdot Rk \quad (5.3)$$

gde je I_k izmerena koncentracija, k – faktor korelacije, a R_k referentna koncentracija napravljenog uzorka.

Korelacioni faktori iznose 1,18(3) za α - odbroje i 1,071(15) za β – odbroje, iz čega se izvlači zaključak da direktna α/β metoda ima tendenciju da daje veću vrednost koncentracije α – i β – aktivnosti. Za male koncentracije aktivnosti direktna α/β – metoda daje oko 40% veće aktivnosti i za α – i za β – odbroje, dok za velike koncentracije aktivnosti rezultati se razlikuju za oko 30% za α – odbroje dok je za β – odbroje oko 10%.

Važno je uvideti da su ovi rezultati dobijeni sa radionuklidima koji su bili korišteni i za kalibraciju ove metode (samo sa različitim koncentracijama aktivnosti). Naredni korak bi bio ispitivanje valjanosti metode na drugim radionuklidima koji su inače prisutni u životnoj sredini. Ovde se očekuju manje precizni rezultati, ali svakako je ideja da ovo bude brza *screening* metoda a ne precizno određivanje koncentracije aktivnosti.

5.5 Zaključak

U ovom radu je predstavljen razvoj i optimizacija parametara za direktnu brzu metodu određivanja ukupne α/β – aktivnosti koja je modifikacija standardne ASTM metode.

Iz tabele 7. možemo zaključiti da je minimalna detektibilna aktivnost u zapreminskim odnosima od 6:14 do 15:5 zadovoljava republičku normu za minimalnu detektibilnu aktivnost α – emitera od $0,5 \text{ Bq l}^{-1}$, dok svi zapreminske odnosi osim 4:14 zadovoljavaju republičku normu od 1 Bq l^{-1} ; što znači da je ova metoda zadovoljava republičke standarde^[5].

Optimalni zapremski odnos, na osnovu minimuma MDA_{α} i MDA_{β} , jeste 11 ml uzorka mešanog sa 9 ml *Ultima Gold AB* scintilacionim koktelom. MDA_{α} i MDA_{β} za ovaj zapremski odnos iznose $0,294 (11) \text{ Bq l}^{-1}$ i $0,404 (5) \text{ Bq l}^{-1}$ respektivno. Optimalni PSA parametar za ovaj zapremski odnos je 96.

U daljem toku istraživanja i unapredavanja metode potrebno je ustanoviti korekcije na prigušenje za efikasnost detekcije $\varepsilon_{\alpha\alpha}$ i $\varepsilon_{\beta\beta}$. Rezultati, kao što je prikazano u predhodnom odeljku, odstupaju od realnih vrednosti, i do 40% za male koncentracije aktivnosti, što ne predstavlja preveliki problem iz razloga što *screening* metoda ne mora da se odlikuje preteranom tačnošću. Međutim mora se imati u vidu da su merenja rađena sa identičnim radionuklidima koji su bili

korišteni prilikom kalibracije detektora. Dalja istraživanja takođe uključuju razmatranje mogućnosti kalibracije metode sa drugim radionuklidima.

LITERATURA

1. ASTM International D 7283-06, standard test method for alpha and beta- activity in water by liquid scintillation counting. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, United States
2. Todorović N, Nikolov J, Tenjović B, Bikit I, Vesković M (2012) Establishment of a method for measurement of gross alpha/beta activities in water from Vojvodina region. Radiat Meas 47:1053–1059
3. UNSCEAR 2008 REPORT, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing Radiation: Sources and Effects, Volume II, United Nations, New York.
4. Tykva R., Berg D. (2004), Man-Made and Natural Radioactivity in Environmental Pollution and Radiochronology, Kluwer Academic publishers.
5. Pravilnik o granicama sadržaja radionuklida u vodi za piće, životnim namirnicama, stočnoj hrani, lekovima, predmetima opšte upotrebe, građevinskom materijalu i drugoj robi koja se stavlja u promet, Službeni glasnik Republike Srbije br. 86/2011 i 97/2013.
6. Dr Krmar Miodrag (2013) Uvod u nuklearnu fiziku, Prirodno – matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
7. William R. Leo (1994) ,Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments, A How-to Approach, Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York (1994)
8. Ivana Stojković (2015), Optimizacija tečnog scintilacionog spektrometra za ispitivanje alfa i beta emitera u vodama, doktorska disertacija, Prirodno - matematički fakultet, Univerzitet u Novom Sadu.
9. L'Annunziata M. F. (2012) Handbook of Radioactivity Analysis, Academic Press, 3rd edition.
10. Instrument Manual, Wallac 1220 Quantulus – Ultra Low Level Liquid Scintillation Spectrometer (2005) PerkinElmer, 1220–931–06, Finland.
11. Vaca F., Manjon G., Garcia-Leon M. (1998) Efficiency calibration of a liquid scintillation counter for ^{90}Y Cherenkov counting, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 406: 267–275

12. Curie, L.A. (1968) Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry, *Anal.Chem.* 40: 586–593
13. Ivana Stojkovic, Nataša Todorović, Jovana Nikolov, Branislava Tenjović (2017) Establishment of rapid LSC method for direct alpha/beta measurements in waters.

Biografija:



Nemanja Golubovac rođen je u Somboru 02.09.1992. godine. Osnovnu i srednju školu završio je u Somboru. Osnovne studije na Prirodno – matematičkom fakultetu upisao je 2011. godine na studijskom programu fizičar – medicinski fizičar koje završava 2015. Master studije upisuje 2015. godine na Prirodno – matematičkom fakultetu na studijskom programu Nuklearna fizika. Od februara 2016. godine zaposlen je na Klinici za radiološku terapiju Instituta za onkologiju Vojvodine.

**UNIVERZITET U NOVOM SADU
PRIRODNO MATEMATIČKI FAKULTET
KLJUČNA DOKUMENTACIJSKA INFORMACIJA**

Redni broj:
RBR

Identifikacioni broj:
IBR

Tip dokumentacije:
TD

Tip zapisa:
TZ

Vrsta rada:
VR

Autor:
AU

Mentor:
MN

Naslov rada:
NR

Kalibracija tečnog scintilacionog spektrometra za direkto
određivanje ukupne $\alpha\beta$ aktivnosti u vodi

Jezik publikacije:
JP

Jezik izvoda:
JI

Zamlja publikovanja:
ZP

Uže geografsko područje:
UGP

Godina:
GO

Izdavač:
IZ

Mesto i adresa:
MA

Fizički opis rada:
FO

Novi Sad, Trg D. Obradovića 4,

(5 poglavlja/46 strana/17 slika, grafikona/7 tabela/13 citata)

Naučna oblast:	Fizika
NO	
Naučna disciplina:	Nuklearna fizika
ND	
Predmetne odrednica,	Tečni scintilacioni brojač, Quantulus 1220 TM , direktno
Ključne reči:	određivanje ukupne α/β - aktivnosti
PO	
UDK	
Čuva se:	Biblioteka departmana za fiziku, Trg D. Obradovića 4, Novi Sad
ČU	
Važna napomena:	nema
VN	
Izvod:	U radu je prezentovana metoda kalibracije tečnog scintilacionog spektrometra Quantulus 1220 TM radi direktnog određivanja ukupne α/β – aktivnosti uzorka. Ova metoda predstavlja modifikovanu standardnu ASTM metodu mješanja uzorka bez predhodne pripreme sa scintilacionim koktelom. Optimizacija metode podrazumeva određivanje zapreminskog odnosa uzorak:koktel na osnovu granice detekcije i određivanje optimalnog PSA parametra. Prezentovani su rezultati kalibracije i prvi rezultati određivanja koncentracije aktivnosti uzorka. Pokazalo se da je razlika između stvarne i izmerene vrednosti ~ 40% i manje, ali metoda ima svoje prednosti u odnosu na standardnu metodu jer jse pokazala brzom, jeftinom i jednostavanom <i>screening</i> metodom.
IZ	
Datum prihvatanja teme od strane NN veća:	septembar 2017
DP	
Datum odbrane:	septembar 2017
DO	
Članovi komisije:	
KO	
Predsednik:	dr Jovana Nikolov, docent Prirodno – matematičkog fakulteta u Novom Sadu
Član:	dr Nataša Todorović, redovni profesor Prirodno – matematičkog fakulteta u Novom Sadu
Član:	dr Ivana Stojković, docent Fakulteta tehničkih nauka u Novom Sadu

UNIVERSITY OF NOVI SAD
FACULTY OF NATURAL SCIENCES & MATHEMATICS
KEY WORDS DOCUMENTATION

Accession number:

ANO

Identification number:

INO

Document type:

DT

Monograph documentation

Type of record:

TR

Textual printed material

Contents code:

CC

Master thesis

Author:

AU

Nemanja Golubovac

Mentor:

MN

dr Nataša Todorović

Title:

TI

Calibration of liquid scintillation counter for direct gross α/β determination in water

Language of text:

LT

Serbian (Latin)

Language of abstract:

LT

en/s

Country of publication:

CP

Republic of Serbia

Locality of publication:

LP

Vojvodina

Publication year:

PY

2017

Publisher:

PU

Author's reprint

Publ. place:

PP

Novi Sad, Trg D. Obradovića 4

Physical description:

(5 chapters / 46 pages / 17 pictures, graphs / 7 tables / 13 references)

PD

Scientific field: Physics
SF

Scientific discipline: Nuclear physics
SD

Subject Key words: Liquid scintillation counter, Quantulus 1220TM, direct gross α/β determination in water,
SKW
UC

Holding data: Department of Physics library, Trg D. Obradovića 4, Novi Sad
HD

Note: N

Abstract: Development of rapid gross alpha/beta screening in waters has been presented. Modification of conventional ASTM method assumed direct mixing of samples with liquid scintillation cocktail, without any sample pretreatment. Optimization of method involved sample-to-cocktail ratio determination based on the achieved detection limit and quench level of sample as well as the optimal value of pulse shape analysis discriminator investigation. Results of calibration experiments and method's validity measurements are presented. Direct alpha/beta method provides deviations<40% from reference values, but offers advantages over conventional alpha/beta measurements, it is ultra fast, simple and inexpensive test for efficient screening of water samples.

AB

Accepted on Scientific board on: September 2017
AS

Defended: September 2017
DE

Thesis Defend board:
DB

President: dr Jovana Nikolov, assistant professor, Faculty of Natural Sciences and Mathematics, Novi Sad

Member: dr Nataša Todorović, full professor, Faculty of Natural Sciences and Mathematics, Novi Sad

Member: dr Ivana Stojković, assistant professor Faculty of Technical Sciences, Novi Sad