ZESZYTY NAUKOWE POLITECHNIKI ŚLĄSKIEJ

Seria: MATEMATYKA-FIZYKA z. 46

Nr kol. 831

Andrzej ZASTAWNY, Barbara RABSZTYN

Instytut Fizyki Politechniki Śląskiej w Gliwicach

SPEKTROMETR GAMMA DO POMIARÓW RADIOAKTYWNOŚCI TORU, RADU I POTASU, PIERWSZE POMIARY

> <u>Streszczenie</u>. Przedstawiono spektrometr scyntylacyjny z osłoną antykoincydencyjną. Błędy pomiarów radioaktywności toru, radu i potasu próbek o objętości 300 cm³ wynoszą odpowiednio około 0,7,0,8 i 3,4 Bq. Podano wyniki pomiarów próbek piasków, wykonanych dla celów chronologii metodą termoluminescencyjną.

WSTEP

W ostatnich kilkunastu latach obserwuje się rozwój scyntylacyjnych i półprzewodnikowych spektrometrów promieniowania gamma (Braurer 1972, Bobrov et al 1975, Hick et al 1969, Ivanov et al 1974, Kaey et al 1973, Kwaśniewicz et al 1979, Vartanov et al 1975) przeznaczonych do pomiarów radicaktywności określonych radioziotopów. Największą grupę stanowią spektrometry do pomiarów radioaktywności toru, uranu i potasu w próbkach stałych. Zapotrzebowanie na takie pomiary wiąże się głównie z kontrolą radioaktywności materiałów budowlanych przeznaczonych na budownictwo komunalne (Beck 1977, Grench et al 1973, Lovborg 1973, Lovborg et al 1976, Lovborg et al 1974, Zastawny et al 1979) oraz z pomiarami radioaktywności toru, uranu i potasu w osadach czwartorzędowych dla potrzeb geochronometrii metodą termoluminescencji.

W pracy przedstawiono spektrometr zestawiony na podstawie doświadczeń z wcześniejszych prac autorów (Rabsztyn et al 1977). Przedyskutowano też czułość i dokładność pomiarów oraz przedstawiono pierwszą listę pomiarów.

SPEKTROMETR

Układ spektrometru jest przedstawiony na rys. 1. Próbka sypka lub pokruszona znajduje się w cienkościennym pudełku aluminiowym o kształcie walca o średnicy 90 mm i wysokości 65 mm, z wnęką o średnicy 56 mm i głębokości 45 mm. W rezultacie objętość próbki wynosi 303 cm³, a grubość warstwy próbki 14 i 20 mm. We wnęce pudełka znajduje się kryształ scyntylacyjny NaJ (T1) 54 x ϕ 54 mm sondy scyntylacyjnej typu 1051 Polon. Pudełko z próbką umieszczone jest z kolei we wnęce 90 x ϕ 100 mm plastykowego bloku scyntylacyjnego o wymiarach 200 x ϕ 200 mm połączonego z fotopowielaczem o średnicy 130 mm. Plastykowy blok scyntylacyjny spełnia rolę osłony antykoincydencyjnej. Cały zestaw jest umieszczony w pozycji poziomej w domku z żelaza o grubości ścian 10 cm wyłożonym od wewnątrz warstwą ołowiu o grubości 2 cm.

Impulsy z sondy pomiarowej są wzmacniane (W_1) i analizowane w trzech kanałach amplitudowych $A_{T,R,K}$ aparatury systemu CAMAC. Impulsy z sondy osłonnej po wzmocnieniu (W_2) i dyskryminacji (D_2), na poziomie odpowiadającym energii rejestrowanego promieniowania 60 keV, sterują obwody antykoincydencji A-C, na które podawane są impulsy kanałów amplitudowych sondy pomiarowej. Rejestracja zliczeń odbywa się automatycznie w odstępach 100 min i taki pomiar określany jest jako pojedynczy. Wyjątek stanowią po-



Rys. 1. Układ spektrometru

 P - próbka, K₁ - kryształ sondy pomiarowej, K₂ - kryształ sondy osłonnej,
 W - wzmacniacze, A - analizatory amplitud, D - dyskryminator, A-C - układy antykoincydencji, T - liczniki impulsów

Spektrometr gamma do pomiarów

miary standardów toru i radu, których wyniki rejestrowane są w odstępach 10 min.

Radioaktywności toru-232, radu-226 oraz potasu-40 są wyznaczone z pomiarów natężenia promieniowania gamma w trzech kanałach amplitudowych oznaczonych indeksami T,R,K, obejmujących intensywne linie gamma następujących radioizotopów: kanał T - linia 2615 keV radioizotopu 208Tl z rodziny toru; kanał R - linia 1765 keV radioizotopu 214Bi, produkt rozpadu radu-226, fragment rodziny uranu-238; kanał K - linia 1460 keV radioizotopu 40K. Szerokości kanałów T,R,K, wybrano tak, aby obejmowały całe interesujące piki: T - (2470-2700) keV, R - (1655-1900) keV, K - (1320-1540) keV.

Do pomiarów kalibracyjnych używa się następujących standardów:

toru - 285,7 g medium + 9,208 g ThO_2 , radu - 264,8 g medium + 5,008.10⁻⁷ g Ra, potasu - 190 g KCl.

Jako medium użyto mieszaniny kredy i mączki kwarcowej w stosunku 1:1. Parametry standardów są przedstawione w tab. 1. Standardy są zamknięte na stałe w pojemnikach o kształcie jak w przypadku próbek, z tym że pojemniki standardów toru i radu są hermetyczne. Jako medium do pomiarów tła wybrano po kilku próbach sól kuchenną NaCl.

Tabela 1

	toru	radu	potasu
Całkowita radioaktywność A _o [kBq] ([nCi])	32,80 (888)	17,98 (486)	3,11 (84)
Radioaktywność właściwa Q [Bq/g] ([nCi/g]) Koncentracja k _o [g/g]	111,4 (3,01) 2,74 10 ⁻²	65,86 (1,78) 1,89 10 ⁻⁹	16,35 (0,442) 0,524

Standardy radioaktywności

POMIARY

Wyniki pomiarów tła B są zamieszczone w tab. 2. Każdy pomiar wykonany był w innym dniu po niezależnej kalibracji spektrometru. Procedurę taką przyjęto dlatego, że notowany rozrzut pomiarów wykonywanych w jednej serii pomiarów jest wyraźnie mniejszy od rozrzutu między seriami.Odnosi się to zarówno do pomiarów tła, jak i próbek. Podane w tabeli błędy są średnimi błędami kwadratowymi pojedynczego pomiaru. Do dalszych wyliczeń przyjęto jako błędy wartości średnich wielkości cztery razy mniejsze od błędów pojecynczych pomiarów.

Tabela 2

Režim pracy		Liczba		
	B _T	B _R	^B ĸ	pomiarów
Z osłoną A-C	0,64 ± 0,06	1,39 ± 0,14	3,63 -+ 0,4	20
Bez osłony	1,4	2,1	4,2	1

Wyniki pomiarów tła

Jak widać osłona A-C więcej niż dwukrotnie redukuje tło w kanale toru, mniej w pozostałych kanałach, Jest to jedyny skutek osłony A-C. Na szybkość zliczeń w kanałach od mierzonych radioizotopów osłona A-C nie wpływa.

Wyniki pomiaru próbki otrzymuje się w postaci szybkości zliczeń ${\rm T}_{\rm T},~{\rm T}_{\rm R}$ i ${\rm T}_{\rm K}$ w odpowiednich kanałach, a po odjęciu tła otrzymuje się wartości ${\rm N}_{\rm T},~{\rm N}_{\rm P}$ i ${\rm N}_{\rm Y}$.

Na szybkość zliczeń N w kanale składają się zliczenia S od właściwego radioizotopu oraz zliczenia od promieniowania o energiach wyższych i równych pozostałych dwu radioizotopów. Z uwagi na widmo emisji gamma badanych rodzin radioaktywnych i wybór energii kanałów słuszny jest układ równań (por. Zastawny et al, 1979):

 $S_T = N_T - e_{TR} S_R$

 $S_R = N_R - b_{RT} S_T$

 $S_k = N_k - b_{kT}S_T - b_{kR}S_R$

Wyrazy $b_{ij} S_j$ są zliczeniami w kanale (i) od izotopu (j). Przyjęcie w kanale T innego oznaczenia ($e_{\rm TR}$) na współczynnik proporcjonalności ma podkreślić fakt, że jego wartość jest znacznie mniejsza od pozostałych współczynników i mógłby być nawet pominięty. Wyniki pomiarów standardów są zamieszczone w tab. 3.

Tabela 3

Kanał	Liczba pom.	TT	[cpm] T _R	т _к
Toru	6	3946 ± 18	4007 [±] 31	4649 ± 40
Radu	8	49,5 ± 4	2790 ± 13	3825 ± 20
Potasu	4	0,6	1,4	253 ± 2

Całkowite szybkości zliczeń standardów

172

(1)

Spektrometr gamma do pomiarów

Podobnie jak w przypadku tła pomiary standardów były wykonane każdy w innym dniu, a błędy są średnimi kwadratowymi pojedynczych pomiarów, przy czym czas pojedynczego pomiaru toru i radu wynosił 10 min, a potasu 100 min. Do dalszych wyliczeń przyjęto błędy wartości średnich.

Współczynniki b_{ij} wyznaczono z pomiarów standardów wg wsoru:

$$b_{ij} = \frac{T_{io} - B_i}{T_{jo} - B_j}.$$
 (2)

Tutaj i dalej indeks "O" odnosi się do standardów. Istotnymi parametrami kalibracyjnymi spektrometru są współczynniki E określające radioaktywność próbki przypadającą na jednostkę zliczeń. Wyznaczono je z pomiarów standardów wg zależności

$$E_{i} = \frac{A_{i0}}{S_{i0}}.$$
(3)

Współczynniki te, jak też dyskutowane wcześniej współczynniki b są przedstawione w tab. 4. W tabeli tej podane są również współczynniki W całkowitej wydajności detekcji kwantów gamma wyliczone wg zależności:

$$\overline{\mathbf{w}}_{\underline{i}} = \frac{1}{E_{\underline{i}} p_{\underline{i}}}, \tag{4}$$

p – ułamek określający intensywność interesujących kwantów gamma na rozpad jest równy:

 $p_{m} = 0,36; p_{p} \approx 0,23; p_{n} = 0,11.$

Tabela 4

Standard	E[Bq/cpm] ([pCi/cpm])	Współczynniki tła kompt. ^b ij	₩×10 ³
Toru	8,327 ± 0,04 (225 ± 1)	$b_{RT} = 1,015 \pm 0,008$ $b_{ET} = 1,177 \pm 0,012$	5,5
Radu	6,447 [±] 0,03 (174,3 [±] 0,8)	$b_{KR} = 1,38 \stackrel{+}{=} 0,01$ $e_{TR} = 0,0176 \stackrel{+}{=} 0,0014$	11
Potasu	12,46 ± 0,14 (336,5±3,8)	and the state of the state	12

Parametry kalibracyjne spektrometru

Radioaktywność A próbki wyznacza się z zależności:

 $A = E \cdot S$

(5)

(6)

oraz radioaktywność właściwą

$$Q = A/m$$
,

m - masa próbki. Błąd 5(A) mierzonej radioaktywności wynosi:

$$S^{2}(A) = S^{2}G^{2}(E) + E^{2}G^{2}(S), \qquad (7)$$

Ponieważ błąd pomiaru masy m jest do pominięcia, błąd radioaktywności właściwej Q = $\frac{A}{m}$ jest równy:

$$G(Q) = G(A)/m. \tag{8}$$

Błędy wielkości S są równe:

$$G^{2}(S_{T}) = (S_{T} + B_{T}) \frac{1}{100} + G^{2}(B_{T}),$$
 (9a)

$$\begin{aligned} 6^{2}(S_{R}) &= 6^{2}(S_{T}) b_{RT}^{2} + S_{T}^{2} 6^{2}(b_{RT}) + (S_{R} + B_{R}) \frac{1}{100} + 6^{2}(B_{R}), \\ 6^{2}(S_{K}) &= 6^{2}(S_{T}) (b_{KT} - b_{KR} b_{RT})^{2} + S_{T}^{2} 6^{2}(B_{KT}) + (S_{R} + B_{R}) \frac{1}{100} + \end{aligned}$$

+
$$\delta^{2}(B_{R})^{2}b_{KR}^{2}$$
 + $S_{R}^{2}\delta^{2}(b_{RT})$ + $(S_{k}+B_{k})\frac{1}{100}$ + $\delta^{2}(B_{k})$.

Przyjęto przy tym, że błędy zliczeń impulsów od próbki są poissonowskie oraz pomiar próbki trwa 100 minut. Biorąc pod uwagę wartości liczbowe poszczególnych składowych wyrażeń (9a) można pominąć niektóre składniki i przyjąć:

$$\begin{aligned} 6^{2}(S_{T}) &= (S_{T}^{+}B_{T}) \frac{1}{100} + 6^{2}(B_{T}) \\ 6^{2}(S_{R}) &= (S_{R}^{+}B_{R}) \frac{1}{100} + 6^{2}(B_{R}) + 6^{2}(S_{T})b_{RT}^{2}, \end{aligned}$$
(9b)
$$6^{2}(S_{K}) &= (S_{K}^{+}B_{K}) \frac{1}{100} + 6^{2}(B_{L}) + (S_{R}^{+}B_{R}) \frac{1}{100} + 6^{2}(B_{R})b_{KR}^{2} \end{aligned}$$

W tabeli 5 podane są wyliczone tym sposobem błędy standardowe minimalne $G_{m}(A)$ dla przypadku znikomej radioaktywności próbek (S=0) i błędy $G_{cl}(A)$ dla radioaktywności właściwych próbek klarkowych ($Q_{T} = Q_{R} = 26 \text{ Bg/kg}, Q_{R} = 370 \text{ Bg/kg}, przyjęto m = 250 g$); przez radioaktywności klarkowe rozumie się średnie ratioaktywności litosfery).

Spektrometr gamma do pomiarów

Tabela 5

Radioizotop	ି <mark>ଲ</mark> (A) [Bq]	([pCi])		G _{C1} (A) [Bq]	([pCi])	1
Tor	0,68	(1,8)		1,0	(2,7)	1.15
Rad	0,79	(2,1)	212	1,3	(3,4)	2.23
Potas	3,4	(9,1)	27	4,61	(12,0)	

Błędy mierzonych radioaktywności

Gdy celem pomiarów jest określenie mocy dawki pochłoniętej P od radioaktywności zawartej w badanym materiale, korzysta się ze wzoru (Zastawny. 1978)

$$P = (13 Q_{T} + 10 Q_{R} + 0,9 Q_{K}) \left[\frac{\mu Gy kg}{rok Bq} \right]$$
(10)

Korzystając z (6), (5), (1) otrzymujemy po przekształceniach:

$$P \cdot a = c_{T}^{\prime} H_{T} + c_{R}^{\prime} H_{R} + C_{R}^{\prime} H_{R}, \qquad (11)$$

gdzie:

$$c_T = c_T - c_R b_{RT} - c_R b_{RT} + c_R b_{RR} b_{RT},$$

 $c_R = c_R - c_R b_{RR},$

c, = a,E,, a, - współczynniki liczbowe występujące we wzorze (10). Pomijając wyrazy, których wkład do całkowitego błędu d²(P.m) jest mały. Damy

$$\delta^{2}(\mathbf{P}_{*}) = C_{T}^{*2} \delta^{2}(\mathbf{N}_{T}) + c_{R}^{*2} \delta^{2}(\mathbf{N}_{R}) + c_{k}^{2} \delta^{2}(\mathbf{N}_{k}).$$
(12)

Z kolei

$$G^{2}(\mathbf{x}) = \frac{T}{100} + G^{2}(\mathbf{B}).$$

W tabeli 6 przedstawione są wartości współczynników C_m , C_R i c_k , $\delta_m(P.m)$ oras 6(P.m) klarkowe.

Tabela 6

Wyliczone błędy mocy dawki dla radioaktywności klarkowych oraz radioaktywności minimalnych

¢,	c' _R	Ck	rOk cpm	dm(P.m) [UGy kg	6(P.m) klar [uGy . kg]
45	49	11	14 200	7,5	15

POMIARY PRÓBEK

Opisanym spektrometrem wykonano pierwsze pomiary do celów chronologii bezwzględnej metodą termoluminescencji. Wykaz próbek jest przedstawiony w tab. 7. Zmierzone wartości radioaktywności i wyliczone moce dawek podsne są w tab. 8.

Tabela 7

Lp.	Nazwa	Miejsce pobrania	Data pobra- nia	Opis próbki
1	Maliniec 300	Konin-Maliniec	1980	piaski z odkrywki - wy- robisk KWB "Konin" 300 cm od powierzchni
2	ţi	Ħ	н	T
3	Maliniec 470	1		# 470 cm od powierzchni
4	\$1	91		1. State 1.
-5	Maliniec 650		H.	n 650 cm od powierzchni
6	я	W		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
7	Maliniec 760	H	T	¤ 760 cm od powierzchni
8	11	51	я	81
9	Frombork 1	Frombork	1982	piasek z moreny z głę- bokości 1 m
10	Frombork 2	H	1982	z głębokości 5 m
11	Frombork 3	PI	W	z głębokości 20 m
12	Raciążek A	Raciążek	1982	piaśek z mułkiem orga- nicznym z warstwy 2,3- -2,5 pod powierzchnią
13	Raciążek B	Raciążek		z warstwy 2,8-3,0 m pod powierzchnią
14	Raciążek C	Raciążek	р	z warstwy 3,15-3,25 pod powierzchnią
15	Rogów	Rogów	1982	gleba kopalna z pyłem lessowym z głębokości 50-80 cm

Wykaz mierzonych próbek

Tabela B

Nr próbki	Q _T [Bq/kg]	Radioaktywność Q _{Ra} [Bq/kg]	Q _K [Bq/kg]	P [UGy]
1	6,1	5,23	140	260
2	5,5	5,23	131	240
3	6,1	6,62	150	290
4	6,5	7,65	178	320
5	10,9	6,97	200	390
6	11,4	7,3	196	400
7	8,5	6,97	159	320
8	8,5	5,92	172	320
9	10,6	9,8	253	460
10	8,1	10,5	225	410
11	13,4	14,3	250	540
12	40,5	30,3	670	1440
13	35,4	29,6	620	1310
14 -	32,4	26	510	1140
15	32,9	27,9	420	1090

Zmierzone wartości radioaktywności próbek oraz wyliczone moce dawek gamma

LITERATURA

 Beck H.L., 1977, The Physical Properties of Environmental Radiation Fields and their Utility for Interpreting Aerial Measurements; HASL, New York
 Bobrov W.A., Kniendielev F.P, 1975, Gamma spektrometricheskij analiz v kamere niskovo fona; Nauka, Novosibirsk.

Braurer F.P., Kaye I.H. 1972, A Dual Ge(Li) - Dual Naj(Tl) Gamma Ray Spec trometer, Nucl. Instr. Meth., <u>102</u>, 223-228.

Grench H.A., Buchman A., 1973, Determination of Natural Radioactivity in Rare Earth Materials; Nucl. Instr. Meth., <u>112</u>, 415-421.

Hick H., Popelnik P., 1969, Summing Ge(Li) - Compton Spectrometer with High Peak - to - Tail Ratio; Nucl. Instr. Meth., <u>68</u>, 240-248.

Ivanov U.B., Shipilov U.I., 1974, A Summing Ge(Li) - Compton Spectrometer Nucl. Instr. Meth. 119, 313-318.

Kaye J.H., Brauer F.P., 1973, Background Reduction of High-Efficiency Ge(Li) Detectors; Nucl. Instr. Meth., <u>113</u>, 5-14.

Lovborg L., 1973, Future Development in the Use of Gamma-Ray Spectrometry for Uranium Prospecting on the Ground; IAEA-PL-490/4, Vienna.

Lovborg L., Kirkegaard P., 1974, Response of 3 x 3 NaJ(T1) Detectors to Terrestrial Gamma Radiation, Nucl. Instr. Meth., <u>121</u>, 239-251.

Lovborg L., Kirkegaard P., 1976, Design of NaJ(T1) Scintillation Detectors for Use in Gamma-Ray Surveys of Geological Sources; IAEA-SM-208/ /21, Vienna.

- Rabsztyn B., Kwaśniewicz E., Zastawny A., 1977, Badanie złożonego spektrometru gamma do pomiaru koncentracji radioaktywnych pierwiastków w materiałach, Zeszyty Naukowe Politechniki Sl. Seria Mat.-Fiz. 33, 101-105.
- Vartanov N.A., Samojlov P.S., 1975, Prikładnaja scintiljacionnaja gamma spektrometria; Atomizdat, Moskwa.
- Zastawny A., Kwaśniewicz E., Rabsztyn B., 1979, Measurements of the Thorium, Uranium and Potassium Concentration in some Samples of Ashes from Power-Station in Poland; Nukleonika, 24, 535-540.
- Zastawny A., 1978, Theoretical calculation of the gamma radiation dose vate in buildings, Nukleonika, 23, 261-266.

ГАММА СНЕКТРОМЕТР ДЛЯ ИЗМЕРЕНИИ РАДИОАКТИВНОСТИ ТОРИЯ, РАДИЯ И КАЛИЯ: ПЕРВЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ

Резрме

В работе представлено сцинтилляционный спектрометр с антисовпаденной защитной, применяемый для определения радиоактивности тория, радия и калия в образцах песка объемом 300 см³. Погрешность измерения радиоактивности этих изотопов соотевтственно равна 0,7, 0,8 и 3,4 бекерельа. Представлено первые результаты измерений радиоактивности образцов датированных методом термолюминесценции.

THE GAMMA SPECTROMETER FOR THE MEASUREMENTS OF THE THORIUM, RADIUM AND POTASSIUM RADIOACTIVITY - FIRST RESULTS

Summary

The performance of the scintillation spectrometer with anticoincidence shield is described. Measurements of the radioactivity of thorium, radium and potassium in natural samples of 300 cm³ volume are made with standard errors equal respectively to 0,7, 0,8 and 3,4 Bq. First results obtained on a series of sand samples dated by means of the thermoluminescence method are given.