

STABILITA SCINTILAČNÍ SMĚSI A PROJEVY RUŠIVÝCH VLIVŮ PŘI KAPALINOVĚ SCINTILAČNÍM MĚŘENÍ

Ondřej Šimek, Ivo Světlík, Lenka Tomášková



Porovnání LSC impulsového spektra 90 Y se spektrem teoretickým ($E_{max} = 2280 \text{ keV}$, měřeno na přístroji TriCarb 3170)

Jak je z obrázku zřejmé, dochází k deformaci spektra vlivem částečného přesunu pozorovaných impulsů do nižších částí spektra.

Využití

- Indikace rušení: Pokud je znám tvar kapalinově scintilačního spektra bez přítomnosti rušivých vlivů, je možné indikovat interference dané přítomností rušivých radionuklidů, nestabilitou scintilační směsi, projevy různých typů stěnového efektu.
- Selektivní měření: Na základě znalosti tvaru LSC spektra lze selektivně zvolit oblast, která je minimálně ovlivněna přítomností případných rušivých radionuklidů. Je možné zpřesnit výsledky současného měření několika radionuklidů v jednom vzorku (např. ⁹⁰Sr s nerovnovážným obsahem ⁹⁰Y).

Hlavní jevy ovlivňující tvar spektra

v oblastech převyšujících přibližně 100 keV

- Zhášení lze rozlišit na chemické (snižuje účinnost přenosu energie scintilačním řetězcem) a barevné (snižuje průchodnost měřicí kyvetou pro scintilační fotony).
- 2. Únik elektronů z měřicí kyvety s ohledem na dosah elektronů dochází při použití 20 mL měřicí kyvety k úniku části elektronů. Uniknuvší elektrony předají scintilační směsi pouze část energie.
- Energetické rozlišení u vzorku dochází ke kolísání účinnosti přenosu energie scintilačním řetězcem.

Vliv zhášení V reálných impulsových spektrech se zhášení projevuje posunem směrem k nižším číslům kanálů



Zhášené a nezhášené impulsové spektrum ³⁶Cl (A), po energetické kalibraci (B). *Chemicky zhášeno přídavkem CH*₃NO₂, *měřeno na přístroji TriCarb 3170.*

U zhášení barevného dochází současně ke zhoršení energetického rozlišení.



Modelování LSC spekter

Pomocí výpočetního kódu bylo pro monoenergetické částice ověřováno zejména:

- Podíl elektronů uniknuvších z kyvety v závislosti na energii;
- Spektra deponované energie od monoenergetických elektronů;
- Odezva na fotonové záření;
- Vliv chemického složení scintilační směsi na spektrum deponovené energie.



- Použit kód MCNP4c2;
- Výsledky porovnány s kódy Penelope, EGS;
- Simulace prováděny pro 7 a 20 ml optickou měřící kyvetu, v geometrickém uspořádání viz. obrázek.



1 ----- 20 ml IG - 10 ml IG + 10 ml H2O ---- 10 ml IG + 10 ml 8M HNO3 0,1 10 ml IG + 10 ml 38% HCI — 10 ml IG + 10 ml nasyceného roztoku NaCl 0,01 0,001 0.5 0,0 1.0 1.5 2,0 2,5 Energie [MeV]

elektronů pro různá složení scintilační směsi



- Tvar reálného spektra je nad 100 keV významně ovlivněn únikem elektronů z měřicí kyvety, z toho důvodu vnitřní části reálných LSC spekter nemají jednoznačnou energetickou interpretaci.
- Tvar spekter deponované energie je chemickým složením ovlivněn zanedbatelně.
- Spektrum deponované energie je pouze ve velmi malé míře ovlivněno fotonovým zářením.

Energetické rozlišení

Pro kvantifikaci energetického rozlišení byly použity zhášené sady radionuklidů s emisí konversních elektronů (¹³⁷Cs a ¹³⁹Ce).

S použitím experimentálně stanovených hodnot byla beta spektra simulovaná pomocí kódu MCNP opravena na vliv daný rozlišením. Pro tento účel byl vyvinut výpočetní program vycházející z gaussovské reprezentace.

Pozorovaná změna tvaru beta spektra je poměrně malá a výrazněji se projevuje pouze v koncových částech spektra.



Výběr radionuklidů s emisí konversních elektronů

| Radionuklid | Energie konv. e. | Výtěžek | T _{1/2} |
|-------------------|------------------|---------|-------------------------|
| ¹³⁷ Cs | 624,21 keV | 8% | 30 y |
| ²⁰³ Hg | 193,66 keV | 17% | 46,6 d |
| ¹¹³ Sn | 363,75 keV | 28% | 115 d |
| ¹³⁹ Ce | 126,93 keV | 17% | 137 d |
| ¹⁴¹ Ce | 103,45 keV | 19% | 32,5 d |
| ¹⁴⁴ Ce | 91,6 keV | 5% | 284,9 d |

Výběrová kritéria:

- Nepřítomnost dalších interferujících konverzních elektronů
- Emise v oblasti nad 100 keV
- Dostatečný výtěžek
- Tvar a maximální energie beta spektra (pozice vůči píku konverzního elektronu)
- Dostupnost radionuklidu
- Chemická vhodnost

Modelování reálných beta spekter, rušivé vlivy



Energetická kalibrace s využitím konversních elektronů

Středupíkuodkonversníhoelektronulzejednoznačněpřiřaditenergii.Polohy středu píkůodkonversníchelektronůbyly protovyužity také proenergetickoukalibraci.

Pokud je však energie přiřazována koncovým bodům spekter beta zářičů, dochází k mírnému podhodnocování, způsobenému energetickým rozlišením.



Energetická kalibrace s využitím koncových bodů spekter



Z naměřeného spektra určeno horní 1% plochy, této hodnotě přiřazena energie odpovídající 1% plochy spektra teoretického.

Energeticky kalibrované spektrum ⁹⁰Y, E_{max}= 2280 keV, měřeno na přístroji TriCarb 3170.

Dodatkové rušivé vlivy

- K deformaci spektra vlivem dodatkových rušivých vlivů může docházet zejména následkem různých forem stěnového efektu a případně i dalších nehomogenit v měřeném vzorku.
- Často dochází k rozpadu scintilační směsi na dvě nemísitelné kapalné fáze s odlišným obsahem měřeného radionuklidu. Pouze malý podíl druhé kapalné fáze se zvýšeným obsahem radionuklidu může ulpívat na stěnách či dně měřicí kyvety.
- Rovněž může docházet ke tvorbě mikrosraženiny či k sorpci radionuklidu na stěnách kyvety.
- Následkem stěnového efektu dochází k navýšení úniku elektronů z měřicí kyvety a výsledné spektrum je deformováno.



Rychlosti vzniku druhé nemísitelné fáze, tvorby mikrosraženiny, záchytu radionuklidu na stěnách kyvety jsou zpravidla řádu hodin až desítek dnů. Pro snadnou indikaci těchto vlivů je výhodné proměřit vzorek po přípravě a poté v odstupu několika týdnů. Následným odečtením spekter (případně jejich grafickým pouze porovnáním) můžeme indikovat nestabilitu vzorku.



Doporučení ke snížení vlivu rušivých efektů

- Pro přesná měření je nezbytná vysoká homogenita proměřovaného vzorku
- Podmínku homogenity nejlépe splňují vzorky v gelové fázi (scintilační koktejl IstaGel). Té Ize dosáhnout vhodnou volbou mísícího poměru vodná fáze / scintilační koktejl.
- Je zapotřebí zvážit rovněž vhodnou hodnotu pH. Pokud je možné, přidat ke vzorku také nosič.
- Gelová fáze vykazuje lepší dlouhodobou stálost, částečně zabraňuje migraci radionuklidu k vnitřním povrchům měřící optické kyvety.
- Není vhodné používat plastové kyvety pro měření žářičů beta s E_{max} nad přibližně 50 keV.

Závěry

- Dominantním efektem ovlivňujícím tvar LSC spekter homogenních vzorků je únik elektronů ze scintilační směsi. Roste úměrně s energií primárních elektronů a je významný u energií přesahujících přibližně 100 keV.
- Odezva na fotonové záření je značně minoritní
- Významný vliv složení scintilační směsi na tvar LSC spektra nebyl pozorován.
- Se zahrnutím vlivu dodatkového stěnového efektu daného částečnou sorpcí radionuklidu na vnitřní povrchy měřící kyvety byl vysvětlen tvar spektra vzorků s obsahem ³⁶Cl a ⁹⁰Y.
- Simulace založené na kódu MCNP jsou v souladu s výsledky měření.

Děkuji za pozornost