بیست و هفتمین کنفرانس هسته‌ای ایران
۱۱ الی ۱۴ اسفند ۱۳۹۹- دانشگاه فردوسی مشهد (مجازی)

استفاده از تابش چرنکوف برای اندازه‌گیری تابش بتا رادیوایزوتوپ ^{40}K در آشکارساز سوسوزن مایع

علی بیگانه[۱*]، امیدرضا کاکویی[1]، فرهاد گلفام[۲]

۱. پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، پژوهشگاه علوم فنون هسته‌ای، تهران ـ ایران
۲. شرکت پسماندداری صنعت هسته‌ای ایران، سازمان انرژی اتمی، تهران-ایران

چکیده:
یکی از مهمترین اهداف پسماندداری مواد هسته‌ای، مدیریت ایمن پسماندهای هسته‌ای ناشی از فعالیت‌های هسته‌ای به منظور حفظ سلامتی جامعه بشری و محیط زیست است. شمارشگر سوسوزن مایع یک ابزار کارآمد برای اندازه‌گیری پرتوزایی سطح پایین در نمونه‌های پرتوزای محیطی است. یکی از مهمترین چالش‌ها برای صنعت هسته‌ای به هنگام استفاده از این سیستم، هزینه زیاد و عدم سهولت در دسترسی به کوکتل و رادیوایزوتوپ‌های استاندارد با طول عمر کوتاه برای انجام کالیبراسیون بازدهی آن است. با این حال، با استفاده از شمارشگر سوسوزن مایع امکان آشکارسازی رادیوایزوتوپ‌های بتازا با انرژی پرتو بتا بیشتر از ۲۶۳ keV با استفاده از تابش چرنکوف و بدون نیاز به کوکتل ممکن است. در این مقاله، کالیبراسیون بازدهی یک شمارشگر سوسوزن مایع برای اندازه‌گیری فعالیت رادیوایزوتوپ ^{40}K بدون استفاده از کوکتل و تنها با استفاده از تابش چرنکوف ناشی از پرتو بتا، انجام شده است. نتایج این آزمایش نشان می‌دهد که بازدهی سیستم اندازه‌گیری برای اکتیویته کمتر از $\frac{Bq}{ml}$ ۱/۱ تقریبا ثابت (حدود ۱۸ درصد) است.

کلیدواژه‌ها: تابش چرنکوف، کوکتل، شمارشگر سوسوزن مایع، تابش بتا.

Using Cherenkov radiation for Measurement of Beta-radiation of ^{40}K radioisotope in Liquid Scintillation Counter

Ali Biganeh[1], Omidreza Kakuee[1*], Farhad Golfam[2]

1. Physics and accelerator research school, Nuclear science and technology research institute, Tehran, Iran.
2. Iran Radioactive Waste Management Company (IRWA), Atomic Energy Organization of Iran (AEOI), Tehran, Iran.

Abstract
One of the most important goals of nuclear material waste is the safe management of nuclear waste resulting from nuclear activities in order to maintain the health of human society and the environment. Liquid Scintillation Counting (LSC) is an efficient tool for measuring the low-level activity of environmental radioactive samples. One of the most challenges for the nuclear industry is the inaccessibility of cocktails and standard short-lived radioisotopes for efficiency calibration of the LSC system. However, using a liquid scintillation counter, it is possible to detect beta-radioactive isotopes with a beta ray energy greater than 263 keV using Cherenkov radiation without the need for a cocktail. In this paper, without a cocktail and using only the Cherenkov radiation of Beta emission, the efficiency calibration of an LSC for measuring the activity of ^{40}K is performed. The results of the experiment show that the efficiency of the system for measuring the activity less than 1.1 Bq/ml is almost constant (about %18).

Keywords: Cherenkov radiation, Cocktail, Liquid Scintillation Counter, Beta radiation

*Email address: alibiganeh@aut.ac.ir

۱. مقدمه

در حال حاضر یکی از مهمترین اهداف پسماندارای مواد هسته‌ای، مدیریت ایمن پسماندهای هسته‌ای ناشی از فعالیت‌های هسته‌ای به منظور حفظ سلامتی جامعه بشری و محیط زیست است. عموما چرخه تولید و استفاده از سوخت هسته‌ای منجر به تولید پسماندهای پرتوزا می‌شود. اما پسماندهای هسته‌ای می‌توانند از فعالیت‌های دیگری همچون فعالیت‌های پزشکی هسته‌ای، فعالیت‌های آزمایشگاهی و تحقیقاتی، استفاده از رادیوایزوتوپ‌ها در صنعت و فرآوری سنگ‌های معدن (در مقیاس بزرگ) نیز تولید شوند. پسماندهای با پرتوزایی سطح پایین به پسماندهایی اطلاق می‌شود که پرتوزایی آن‌ها پایین اما بالاتر از سطح پاکی[1] است[۱]. این پسماندها عمدتا دارای رادیوایزوتوپ‌هایی با نیمه عمر طولانی هستند و ممکن است به زمانی در حدود چند ده سال نیاز باشد تا سطح پرتوزایی آن‌ها به سطح پاکی برسد. نمونه‌هایی از پسماندهای با پرتوزایی پایین عبارتند از رزین‌ها و فیلترهای استفاده شده برای تمیز کردن آب راکتورهای هسته‌ای، تجهیزات مورد استفاده در سایت‌های نیروگاه‌های هسته‌ای، تجهیزات استفاده شده در آزمایشگاه‌های تحقیقاتی، و سایر تجهیزاتی که در تماس با مواد پرتوزا در بیمارستان‌ها قرار گرفته‌اند. یکی از مهمترین چالش‌های این حوزه، اندازه‌گیری مقدار پرتوزایی مواد با پرتوزایی سطح پایین است. در حال حاضر، مهمترین روش برای اندازه‌گیری مقدار پرتوزایی این مواد استفاده از سیستم شمارشگر سوسوزن مایع (LSC)[2] است[۲]. یکی از مهمترین چالش‌ها به هنگام اندازه‌گیری سطح فعالیت رادیوایزوتوپ‌ها با استفاده از این سیستم، کالیبراسیون بازدهی آن است. کالیبراسیون بازدهی سیستم LSC به ویژه هنگامی که آنالیز طیف وسیعی از رادیوایزوتوپ‌ها در آزمایشگاه مد نظر باشد، یک فرآیند بسیار زمانبر است. علاوه بر این، برای انجام این کار لازم است رادیوایزوتوپ‌های استاندارد با طول عمر کوتاه که معمولا هزینه زیادی دارند، به صورت دوره‌ای خریداری شوند. از سوی دیگر، استفاده از گسیلنده‌های بتا مثل ^{90}Sr نیز ممکن است خطرات بیولوژیکی زیادی به همراه داشته باشد. دوره‌ی زمانی کالیبراسیون انرژی سیستم LSC بستگی به آزمایشگاه مورد استفاده و چگونگی عملکرد کاربر دارد. از سوی دیگر، پایداری طولانی مدت سیستم به خوبی مشخص خواهد کرد که کالیبراسیون انرژی در چه دوره‌هایی انجام شود. چالش دیگر این حوزه برای پژوهشگران صنعت هسته‌ای، عدم سهولت در دسترسی و هزینه زیاد مایع سوسوزن (کوکتل) استاندارد برای انجام اندازه‌گیری است. در این مقاله، با استفاده از تابش چرنکوف حاصل از گسیل پرتو بتا، بازدهی آشکارسازی سیستم LSC برای اندازه‌گیری اکتیویته سطح پایین رادیوایزوتوپ ^{40}K تعیین شده است.

۲. مبانی نظری آزمایش

به هنگام عبور پرتو پر انرژی بتا از یک محیط دی‌الکتریک با سرعتی بیش از سرعت فاز نور در آن محیط، فوتون‌های مرئی تولید می‌شود. به احترام تلاش‌های فیزیکدان روسی برای کشف ویژگی‌های این پدیده، آن را تابش چرنکوف نامگذاری کرده‌اند[۳]. انرژی جنبشی نسبیتی ذره‌ی باردار را می‌توان مطابق رابطه (۱) تعریف کرد. در این رابطه، m_0 جرم سکون ذره‌ی باردار (برای الکترون برابر با ۵۱۱ $\frac{keV}{c^2}$)، c سرعت نور و $\beta = \frac{v}{c}$ است.

$$E_k = m_0c^2\left(\frac{1}{(1-\beta^2)^{1/2}} - 1\right) \qquad (۱)$$

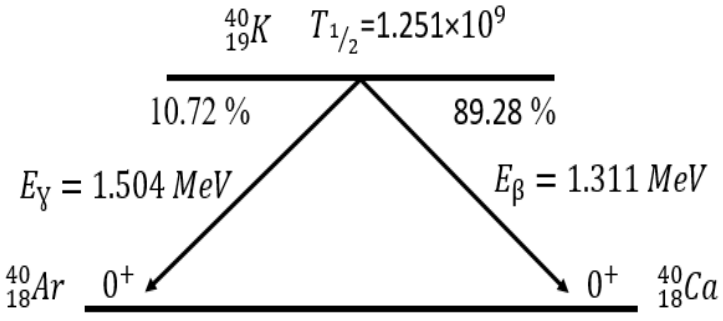
[1] Clearance level
[2] Liquid Scintillation Counting (LSC)

شرط تولید تابش چرنکوف توسط ذره‌ی بارداری با سرعت v در محیطی به ضریب شکست n به صورت $\beta > \frac{1}{n}$ تعریف می‌شود. با جایگزینی مقدار ۵۱۱keV برای m_0c^2 مربوط به ذره بتا در رابطه‌ی (۱) و جایگزینی آن در شرط تولید تابش چرنکوف می‌توان آستانه‌ی انرژی تابش بتا (E_{th})، برای تولید تابش چرنکوف در محیطی به ضریب شکست n را به صورت رابطه (۲) نوشت:

$$E_{th} = 511\ [\frac{n}{(n^2-1)^{1/2}}]\ (keV) \qquad (۲)$$

این مقدار برای محلول آب با ضریب شکست ۱/۳۳۲ برابر با ۲۶۳ keV است. بنابراین تنها تابش‌های بتا با انرژی بیش از مقدار محاسبه شده، امکان تولید تابش چرنکوف را در آب خواهند داشت. این محدودیت، اندازه‌گیری تابش بتا در نمونه‌های ^{3}H (۱۸E_β =keV)، ^{14}C (۱۵۷E_β =keV) و ^{33}P (۲۴۹E_β =keV) با استفاده از تابش چرنکوف در آب را غیر ممکن می‌کند. با توجه به رابطه (۲)، انرژی آستانه برای تولید تابش چرنکوف با افزایش ضریب شکست کاهش می‌یابد. با توجه به این ویژگی، تاکیو[1] و همکارانش با جذب ^{14}C در محیطی با ضریب شکست ۲/۱ در طول موج ۴۸۰nm موفق به آشکارسازی این رادیوایزوتوپ با بازدهی ۱/۵ درصد شدند[۴].

نمودار واپاشی رادیوایزوتوپ ^{40}K در شکل ۱ نشان داده شده است[۵]. با توجه به این شکل، این رادیوایزوتوپ با گسیل پرتو بتا با بیشینه انرژی ۱/۳۱۱MeV (۸۹/۲۸ ٪) و یا از طریق تابش گاما با انرژی ۱/۵۰۴MeV (۱۰/۷۲ ٪) واپاشی می‌کند. مقدار این رادیوایزوتوپ در نمونه را می‌توان از طریق اندازه‌گیری مقدار تابش گاما یا بتا درون نمونه مورد نظر اندازه‌گیری کرد. با این حال، با توجه به تابش زمینه محیطی ناشی از ^{40}K، احتمال کمتر واپاشی گاما و همچنین بازدهی آشکارسازی پایین این تابش، اندازه‌گیری فعالیت سطح پایین[2] این رادیوایزوتوپ با استفاده از تابش بتا می‌تواند نتایج دقیق‌تری ارائه دهد. میانگین انرژی ذرات بتا گسیل شده توسط این رادیوایزوتوپ (۴۳۳ keV) از آستانه انرژی مورد نیاز برای تولید تابش چرنکوف (۲۶۳ keV) بزرگتر است. بنابراین، بخش زیادی از تابش‌های بتا منجر به تولید تابش چرنکوف خواهند شد. گزارش‌های زیادی از اندازه‌گیری تابش بتا از طریق شمارش تابش چرنکوف مربوط به آن در آزمایشگاه‌های معتبر ارائه شده است [۶و۷]، این تکنیک که قابلیت آن در این کار پژوهشی گزارش شده است می‌تواند راهکار مناسبی برای موضوع پسمانداری مواد هسته‌ای در کشور باشد.



شکل ۱. نمودار واپاشی رادیوایزوتوپ $^{40}_{19}K$ [۵].

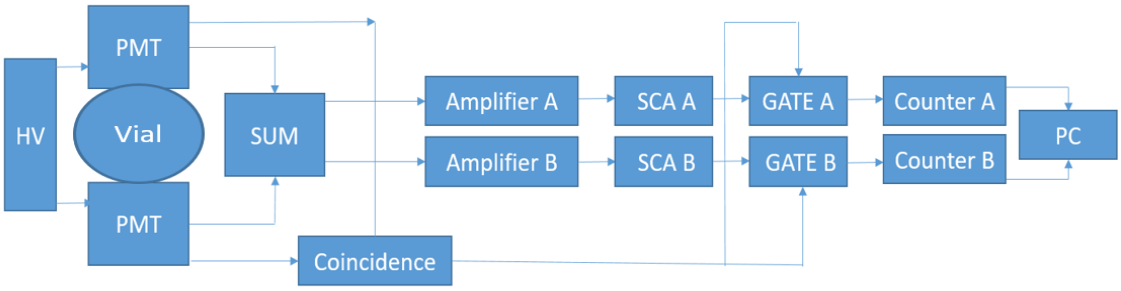
[1] Takiue
[2] Low-level activity

۳. ابزارآرایی آزمایش

برای انجام این اندازه‌گیری از دستگاه شمارشگر سوسوزن مایع CM-500 موجود در آزمایشگاه شرکت پسمانداری مواد صنعت هسته‌ای در سازمان انرژی اتمی ایران استفاده شده است. این دستگاه در شکل ۲ نشان داده شده است. در شکل ۳ پیکربندی الکترونیک هسته‌ای سیستم LSC نشان داده شده است. این سیستم شامل دو عدد تیوپ تکثیر کننده نوری[1]، منبع تامین کننده ولتاژ، یک عدد یونیت جمع کننده سیگنال، دو عدد تقویت کننده، دو عدد دروازه عبور سیگنال، دو تحلیلگر تک کاناله[2]، یک عدد واحد همزمانی و دو عدد شمارنده است. در این سیستم به جای استفاده از سیستم خنک کننده، از سیستم همزمانی برای کاهش نویز گرمایی استفاده شده است. آشکار ساز تابش یک ویال از نمونه به همراه یک سوسوزن مایع است که در محور مشترک دو PMT قرار می‌گیرد. در روش چرنکوف ماده سوسوزن (کوکتل) حذف شده است و ماده مورد نظر برای آشکارسازی درون آب دیونیزه شده حل می‌شود. ویال با استفاده از آسانسور دستگاه به مرکز محور مشترک دو PMT انتقال داده می‌شود. PMT ها با استفاده از یک منبع تغذیه ولتاژ با بیشینه ولتاژ۲kV راه اندازی می‌شوند. در اثر عبور ذرات بتا پرانرژی با مایع درون ویال، تابش چرنکوف با طول موجی در محدوده طول موج فرابنفش تا ۴۲۰nm (نور آبی) تولید می‌شود. با این حال، بیشینه‌ی شدت این طول موج در محدوده نور آبی قرار می‌گیرد و در اثر برخورد این نور با فوتوکاتدهای PMT، الکترون تولید می‌شود. این الکترون‌ها در PMT تحت ولتاژ بالا قرار می‌گیرند و شروع به تکثیر الکترون می‌کنند. الکترون‌های تولید شده در خروجی آند تولید یک سیگنال قابل اندازه‌گیری در محدوده ولتاژ حدود ۱۰۰ میلی ولت می‌کنند. اگرچه تابش چرنکوف همسانگرد نیست اما پس از پراکندگی توسط ویال و مایع درون آن به صورت همسانگرد گسیل می‌شود. برای حذف نویز سیستم، سیگنال خروجی از آند دو PMT با یکدیگر همزمان می‌شوند. در این‌صورت، تنها رویدادهایی که به صورت همزمان در هر دو PMT تولید سیگنال کنند، ثبت می‌شوند و نویزها که در یک بازه زمانی حدود ۱۰ نانوثانیه تنها می‌توانند در یکی از آن‌ها ظاهر شوند، حذف خواهند شد. اندازه ارتفاع سیگنال‌های همزمان با استفاده از یونیت جمع با یکدیگر جمع می‌شوند و سپس برای تقویت وارد یونیت تقویت کننده می‌شوند. خروجی تقویت کننده، واحدهای تحلیلگر تک کاناله را تغذیه می‌کند. سپس سطح سیگنال‌ها در هرشاخه با استفاده از یک آنالیزگر تک کاناله انتخاب می‌شود و سپس با استفاده از یک شمارنده شمارش می‌شود. لازم به ذکر است که شمارش‌ها تنها هنگامی انجام خواهد شد که سیگنال خروجی از هر دو PMT به صورت همزمان در واحد coincidence ثبت شود و این واحد به GATE فرمان ثبت داده‌ها را صادر کند.

[1] Photo Multiplier Tube (PMT)
[2] Single Channel Analyzer (SCA)

شکل ۲. دستگاه شمارشگر سوسوزن مایع CM-500 به همراه ویال‌های پلاستیکی حاوی محلول KCl.



شکل ۳. چیدمان سیستم الکترونیک هسته‌ای دستگاه LSC. در روش ارائه شده در این مقاله ماده سوسوزن حذف شده است.

۴. نمونه سازی و اندازه‌گیری

رادیو ایزوتوپ ^{40}K با فراوانی نسبی ۰/۰۱۱۷ درصد در طبیعت وجود دارد. با توجه به نیمه عمر این رادیوایزوتوپ (1.25×10^9 سال) و درصد انشعاب تابش بتا به هنگام واپاشی آن (۸۹/۲۸ درصد)، می‌توان نرخ واپاشی ۸۸۰ dpm را برای هر گرم از KCl طبیعی انتظار داشت. به منظور اندازه‌گیری بازدهی آشکارساز و تحقیق رابطه‌ی بین غلظت رادیوایزوتوپ و نرخ شمارش تابش چرنکوف، ۸ نمونه حاوی مقادیر مختلف از KCl (۵ – ۰/۲۵ گرم) با دقت ۱۰۰ میکروگرم به همراه ۲۰ml آب دیونیزه شده ساخته شده و درون ویال‌های پلاستیکی قرار داده شده است. با توجه به اینکه تابش چرنکوف یک تابش همسانگرد نیست، برای انجام این اندازه‌گیری از ویال‌های پلاستیکی استفاده شده است. استفاده از ویال پلاستیکی در مقایسه با ویال شیشه‌ای، سبب پراکندگی تابش چرنکوف و ایجاد همسانگردی در آن می‌شود و اندازه‌گیری این تابش در دوسوی مخالف هم در سیستم همزمانی را تسهیل می‌کند. به منظور اندازه‌گیری مقدار تابش زمینه در آب دیونیزه شده و ویال پلاستیکی نیز از یک ویال حاوی آب دیونیزه شده خالص (نمونه ۱) استفاده شده است. برای انجام اندازه‌گیری در ابتدا ولتاژ PMTها برای دست‌یابی به بیشینه نرخ شمارش بهینه‌سازی شد و مقدار ولتاژ آن‌ها ۱۸۰۰ ولت تعیین شد. سپس هر یک از ویال‌ها برای مدت زمان ۱۰ دقیقه درون دستگاه قرار

گرفت و نرخ شمارش آن ثبت شد. به منظور کاهش خطای سیستماتیک در اندازه‌گیری، هر آزمایش ۱۰ مرتبه تکرار شد و نرخ شمارش میانگین برای هریک از ویال‌ها محاسبه شد.

۵. بحث در نتایج

در جدول (۱) نرخ شمارش تابش چرنکوف بر حسب مقادیر مختلف از غلظت KCl درون ۲۰ml از آب دیونیزه شده ارائه شده است. مقدار میانگین تابش زمینه پس از ۱۰ مرتبه اندازه‌گیری برابر با ۱۶ dpm تعیین و این مقدار از مقادیر ثبت شده برای هر یک از نمونه‌ها کسر شده است. سپس با تقسیم نرخ شمارش بر نرخ واپاشی مورد انتظار برای هر نمونه (۸۸۰dpm)، بازدهی سیستم آشکارسازی تعیین شده است. با توجه به نتایج جدول (۱)، برای مقادیر کمتر از ۳گرم KCl در ۲۰ml آب ($\frac{Bq}{ml}$ ۱/۱)، یک رابطه‌ی خطی بین نرخ شمارش تابش چرنکوف با غلظت محلول KCl وجود دارد. در این محدوده، بازدهی سیستم آشکارسازی در حدود ۱۸ درصد تعیین شده است. ثابت بودن مقدار بازدهی آشکارسازی در این محدوده از غلظت، امکان اندازه‌گیری سطح فعالیت ^{40}K در نمونه‌های با فعالیت کمتر از $\frac{Bq}{ml}$ ۱/۱ را فراهم می‌کند. برای غلظت KCl ۴g درون ویال، بازدهی سیستم شمارش تا حدود ۳۱ درصد افزایش می‌یابد. این موضوع احتمالا به دلیل افزایش ضریب شکست محلول و به دنبال آن کاهش E_{th} (مطابق رابطه ۲) است. با کاهش E_{th} تعداد بیشتری از رویدادهای طیف پیوسته بتا ثبت خواهد شد. با توجه به کاهش بازدهی آشکارسازی برای نمونه ۸ تا حدود ۱۲ درصد، می‌توان نتیجه گرفت در صورتی که غلظت KCl در نمونه مورد نظر بیش از ۴ گرم در ۲۰ml محلول باشد، رسوب ایجاد شده درون نمونه سبب کدر شدن محلول و فرونشانی نور سوسوزن تولید شده در اثر تابش چرنکوف شده و علاوه بر از دست رفتن ارتباط خطی بین غلظت رادیوایزوتوپ درنمونه و نرخ شمارش، بازدهی آشکارسازی نیز به شدت افت می‌کند.

جدول ۱. نتایج اندازه‌گیری با استفاده از سیستم LSC.

شماره نمونه	غلظت KCl (g بر ۲۰ml آب)	نرخ شمارش میانگین (dpm)	بازدهی آشکارسازی (درصد)
۱	(آب دیونیزه شده)	۲±۱۶/۳	-
۲	۰/۲۵۰۰	۳±۳۹/۶	۱۸/۶۳
۳	۰/۵۰۰۰	۵±۸۱/۲	۱۸/۴۰
۴	۱/۰۰۰۰	۷±۱۵۹/۳	۱۸/۰۶
۵	۲/۰۰۰۰	۱۰±۳۲۰/۳	۱۸/۱۸
۶	۳/۰۰۰۰	۱۲±۴۸۵/۳	۱۸/۳۷
۷	۴/۰۰۰۰	۱۹±۱۱۱۷/۲	۳۱/۷۳
۸	۵/۰۰۰۰	۱۳±۵۴۳/۴	۱۲/۳۴

۶. نتیجه‌گیری

در این مقاله، کالیبراسیون بازدهی سیستم LSC برای اندازه‌گیری اکتیویته سطح پایین (کمتر از $\frac{Bq}{ml}$ ۱/۱) از رادیوایزوتوپ ^{40}K با استفاده از تابش چرنکوف حاصل از گسیل ذرات بتا انجام شده است. تکنیک ارائه شده برای نخستین بار در کشور جهت معرفی به پسمانداری مواد هسته‌ای اجرا شده است. یکی از مهمترین مزیت‌های استفاده از این روش برای اندازه‌گیری تابش بتا در مقایسه با روش‌های متداول LSC، امکان اندازه‌گیری نمونه به شکل اولیه آن (نمونه حل شده در آب یا هر محلول مناسب دیگر) بدون نیاز به اضافه کردن کوکتل است. بازدهی آشکارسازی در این روش ممکن است به حجم نمونه نیز بستگی داشته باشد. مقدار بهینه این حجم ممکن است با تغییر سیستم اندازه‌گیری، نوع ویال (شیشه یا پلاستیک) و نوع رادیوایزوتوپ تغییر کند. از این روش می‌توان برای اندازه‌گیری فعالیت ^{90}Sr و غلظت تعادلی

^{90}Y درون نمونه‌های آب راکتور، آب آشامیدنی و شیر نیز استفاده کرد. علاوه براین، با توجه به رابطه‌ی (۱)، انرژی آستانه برای تولید تابش چرنکوف با افزایش جرم ذره به شدت افزایش می‌یابد. به این ترتیب تداخل ایجاد شده ناشی از پرتوهای آلفا با انرژی‌های متداول در رادیوایزوتوپ‌ها رفع می‌شود. از این محدودیت نیز می‌توان برای جداسازی تابش بتا از آلفا در نمونه‌های گسیلنده مخلوط آلفا-بتا استفاده کرد.

تشکر و قدردانی

از مدیریت محترم شرکت پسمانداری صنعت هسته ای ایران جهت فراهم نمودن امکان استفاده از شمارنده سوسوزن مایع برای انجام این‌کار پژوهشی بسیار سپاسگزاریم.

۷. مراجع

[1] Edwin D. Bransome Jr, the current status of Liquid Scintillation Counting, Grune and Starton, New York.
[2] J. Klein, liquid scintillation counting, A review, Nucl. Instrum. Method, 112 (1973)117.
[3] Cerenkov, P.A., Visible light from clear liquids under the action of gamma radiation. C.R. Dokl. Akad. Nauk, SSSR 2 (8) (1934) 451-454
[4] M. Takiue, Y. Yoshizawz, H. Fujii, ‘Cherenkov Counting of Low-Energy Beta-Emitters Using a New Ceramic with High Refractive Index’, Appl. Radiat. Isot, 61 (2004) 1335–1337.
[5] Browne, E. "Table of radioisotopes." Table of Isotopes Sixth Edition (1986).
[6]Tsroya, S., et al. "Fast determination of 90Sr/90Y activity in milk by Cherenkov counting." Applied Radiation and Isotopes 82 (2013) 332-339.
[7] Stojković, Ivana, et al. "210Pb/210Bi detection in waters by cherenkov counting–perspectives and new possibilities." Radiation Physics and Chemistry 166 (2020) 108474.