



بررسی quench رنگ و تعیین PSA مناسب جهت اندازه‌گیری غلظت اورانیوم در نمونه های خاک محیطی در روش شمارش سنتیلاسیون مایع

رجائی، امیر*^(۱) - فخاری، حمید^(۲)

سازمان انرژی اتمی، شرکت سوخت راکتورهای هسته‌ای، صندوق پستی: ۱۹۵۷-۸۱۴۶۵

چکیده:

در تعیین غلظت اورانیوم به روش سنتیلاسیون مایع، عوامل خاموشی (Quench) بسیار مهم هستند. عامل یا عواملی خاموشی، عواملی هستند که باعث می‌شوند تعداد فوتونها یا انرژی که از سنتیلاتور به آشکار سازهای نوری (PM tubes) می‌رسند، افت کند. بطور معمول هنگام شمارش نمونه‌ها به روش سنتیلاسیون مایع (LSC)، دو نوع عامل خاموشی بر روی نتیجه شمارش تأثیرگذار است: ۱- خاموشی شیمیایی ۲- خاموشی رنگ [۱]. با توجه به ماهیت نمونه های خاک و رنگی بودن آن، در این مقاله اثر خاموشی رنگ با استفاده از ترکیبهای مختلف، مورد بررسی قرار گرفت. همچنین الگویی جهت دستیابی به PSA مناسب، ارائه گردیده است.

کلیدواژه‌ها: عوامل خاموشی (Quench)، شمارش سنتیلاسیون مایع (LSC)، اورانیوم، تعیین PSA

Abstract:

The quench factors are very important in determination of Uranium by liquid scintillation method. Quench factors cause decreasing received photons to photo multitube detectors. Usually two types of quench factors affect counting results in liquid scintillation method: 1- chemical quench 2- color quench [1]. In this article the effect of color quench has been studied by several compounds, Because of soil nature and their color, also a method for finding suitable PSA, has been established.

مقدمه:

یکی از روشهای تعیین غلظت اورانیوم در نمونه های خاک، روش سنتیلاسیون مایع می باشد. اساس کار این روش بدین صورت است که پرتوهای ساطع شده از نمونه، به مایع سنتیلاتور برخورد می کنند. سنتیلاتور ماده ای است که بر اثر تابش ذرات آلفا و یا بتا، تولید نور با طول موج مشخص می کند. در روش استفاده شده در این مقاله، ترکیب آلی با نام کوکتایل (ترکیب پیچیده ای از چند ماده آلی)، نقش سنتیلاتور را بر عهده دارد. نور تولید شده، توسط آشکارساز نوری، ثبت شده و از طریق قطعات الکترونیکی تبدیل به پالس الکتریکی می گردد که متناسب با شدت پرتو زایی اولیه نمونه است. در مورد نمونه های خاک، نمونه های آماده سازی شده، تا حدودی رنگی هستند و هنگام شمارش به روش سنتیلاسیون مایع، ایجاد خاموشی می کنند. به عبارتی رنگی بودن نمونه ها باعث می شود که فوتونهای رسیده به آشکارساز، تا حدودی کاهش یابد. بنابراین جهت دستیابی به مقدار صحیح و واقعی شمارش باید این اثر خاموشی تا حد امکان تصحیح گردد. بدین منظور از ترکیبهای مختلف جهت ایجاد خاموشی استفاده گردید. از طرفی با توجه به اینکه هنگام



شمارش، مقداری انتقال آلفا به بتا نیز وجود دارد، تعیین PSA مناسب جهت شمارش نیز از اهمیت خاصی برخوردار است. در واقع، PSA (Pulse Shape Analyzer) قطعه‌ای الکترونیکی است که جداسازی پرتوهای آلفا و بتا را ممکن می‌سازد. با این حال، هنگام شمارش پرتوهای آلفا، مقداری از پرتوهای آلفا در دستگاه، به عنوان بتا شناخته و ثبت می‌شود که به این حالت "انتقال آلفا به بتا" گفته می‌شود. در پژوهش‌های پیشین، برای بررسی اثر خاموشی از ترکیبات شیمیایی، مانند تتراکلرید کربن استفاده شده است که بیشتر برای بررسی خاموشی شیمیایی مناسب است و به دلیل بی‌رنگ بودن ترکیب، خاموشی رنگ مورد بررسی قرار نمی‌گیرد. در این پژوهش عملی، دو هدف دنبال شده است: یکی بررسی خاموشی رنگ و دیگری تعیین PSA مناسب. PSA مناسب، PSAی است که انتقالات آلفا به بتا حداقل باشد.

- نکته: در این مقاله، هر جا از نماد α یا β به تنهایی استفاده شده، منظور "آهنگ شمارش آلفا یا بتا (cpm: count per minute) است".

روش کار:

جهت بررسی اثر خاموشی ابتدا لازم است که فاکتوری تحت عنوان پارامتر خاموشی خارجی SQPE (Standard Quench Parameter External) تعریف شود. این فاکتور در واقع پارامتری است برای نشان دادن میزان خاموشی نمونه که با مقدارش رابطه عکس دارد به نحوی که در کمترین Quench بالاترین SQPE را خواهیم داشت. (این فاکتور توسط تجهیز مربوطه، با استفاده از یک چشمه پرتوزای استاندارد محاسبه می‌گردد) برای دستیابی به شمارش‌های دقیق، لازم است که اولاً PSA مناسب شمارش پیدا شود و دوماً نمودار انتقال آلفا به بتا را در SQPE مختلف رسم شود تا بتوان در نمونه مجهول با داشتن SQPE مقدار انتقال بدست آید. روش کلی بدین صورت است که ابتدا یک نمونه استاندارد اورانیوم با اکتیویته مشخص، تهیه و شمارش می‌گردد. تهیه نمونه بدین صورت است که ابتدا نمونه مورد نظر، طی چندین مرحله اسیدی شدن، بصورت محلول درآمده و سپس با استفاده از کوکتایل و از روش استخراج مایع-مایع، اورانیوم از فاز آلی (کوکتایل) به فاز آبی منتقل می‌شود. سپس فاز آبی به روش سنتیلاسیون مایع، شمارش و آنالیز می‌شود (به روش شرح داده شده در مقدمه). سپس مقدار بسیار کمی از ماده ایجادکننده خاموشی، به نمونه اضافه شده و مقدار SQPE و همچنین میزان انتقال آلفا به بتا، برای آن SQPE بدست می‌آید. پس از آن مجدداً به نمونه مقدار دیگری از ماده ایجادکننده خاموشی اضافه شده و SQPE و انتقال مربوطه ثبت می‌گردد. این کار تا جایی ادامه می‌یابد که نمونه کاملاً رنگی شده و افزودن ماده ایجادکننده خاموشی، تغییری در شمارش ایجاد نمی‌نماید. این کار در چندین PSA انجام می‌گردد و سپس از داده‌های حاصل،



نمودار انتقالات (انتقالات آلفا به بتا) بر حسب SQPE رسم می‌گردد. از بین نمودارهای ترسیم شده، نموداری که بهترین تطابق (بهترین رگرسیون خطی) را داشته باشد جهت محاسبه انتقالات در نمونه های مجهول استفاده می‌شود.

در این خصوص بررسی با استفاده از سه عامل ایجاد کننده خاموشی صورت گرفته است. هدف این است که ترکیبی انتخاب شود که ۱- نمودار انتقالات آلفا به بتای آن، روند منطقی با رگرسیون مناسب داشته باشد و ۲- با نمونه های حقیقی، تناسب و همخوانی داشته باشد. بنابراین برای هر ماده ایجاد کننده خاموشی، ابتدا نمودار انتقال، ترسیم شده و سپس با نمونه حقیقی، بررسی و مقایسه شده است.

(۱) استفاده از محلول حاوی Fe^{3+}

برای ایجاد Quench از محلول کلرید آهن (III) که ماده‌ی زرد رنگی است استفاده شد. با چندین مرحله افزایش این ترکیب به محلول استاندارد اورانیوم با اکتیویته مشخص، تغییرات SQPE کم بود و قبل از اینکه SQPE مناسب بدست آید، نمونه، کف آلود شد (شفاف نبود). نمونه غیر شفاف و کف آلود، غیر قابل شمارش بود، بنابراین این ترکیب برای افزایش Quench مناسب نیست.

(۲) استفاده از محلول Na_2CrO_4

این تست همانند تست قبلی بود با این تفاوت که از محلول کرومات سدیم (Na_2CrO_4) برای افزایش Quench استفاده شد. پس از هر شمارش با افزایش این ماده، Quench زیاد شده، SQPE پایین آمده و شمارش تکرار شد. منحنی با استفاده از نسبت آهنگ شمارش آلفا (cpm) به SQPE رسم شد. برای اینکه PSA مناسب برای شمارش بدست آید تمام این شمارشها در $PSA = 80, 85, 90, 95, 100$ انجام گرفت. برای بدست آوردن انتقال آلفا به بتا، با توجه به اینکه محلول اورانیوم تازه استخراج شده حاوی رادیونوکلئید بتا نیز است و فقط حاوی اورانیوم (آلفا) است از نسبت آلفای خوانده شده به مجموع آلفا و بتا (آلفای واقعی) استفاده شد (جدول و نمودار ۱).

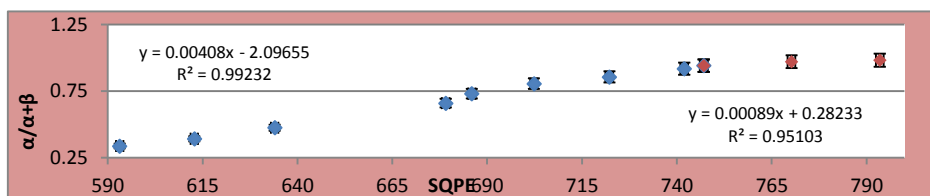
جدول شماره (۱)

PSA=80		PSA=85		PSA=90		PSA=95		PSA=100	
SQPE	$\alpha/\alpha+\beta$	SQPE	$\alpha/\alpha+\beta$	SQPE	$\alpha/\alpha+\beta$	SQPE	$\alpha/\alpha+\beta$	SQPE	$\alpha/\alpha+\beta$
799.10	0.992	795.47	0.990	791.72	0.988	795.48	0.988	793.47	0.983
769.64	0.987	772.36	0.987	770.13	0.982	773.08	0.980	770.22	0.971
746.60	0.981	748.88	0.979	747.93	0.967	750.02	0.954	747.08	0.942
739.58	0.973	738.41	0.967	742.95	0.957	740.31	0.944	741.92	0.918
720.68	0.949	722.03	0.935	717.11	0.913	722.52	0.895	722.21	0.857
710.53	0.923	700.32	0.911	709.13	0.881	701.95	0.851	702.32	0.806
689.16	0.872	686.28	0.850	685.36	0.813	687.56	0.776	685.94	0.731
674.03	0.843	677.53	0.815	673.47	0.768	670.71	0.719	679.07	0.660



635.01	0.656	636.94	0.626	634.53	0.589	632.16	0.534	633.98	0.475
612.85	0.607	615.36	0.561	614.47	0.488	615.32	0.454	612.81	0.392
595.03	0.546	596.28	0.481	601.53	0.438	593.67	0.388	593.13	0.338

پس از رسم نمودارها، به علت ضریب رگرسیون بهتر، منحنی کالیبراسیون در $PSA=100$ برای کالیبراسیون انتخاب شد. (نمودار ۱). اما نیاز است که این نمودار با نمونه واقعی مورد بررسی قرار گیرد.



نمودار شماره (۱)

بنابراین جهت بررسی صحت نمودار بدست آمده از نمونه های حقیقی، با اکتیویته مشخص استفاده شد و پس از آماده سازی و شمارش، نسبت $\alpha/\alpha+\beta$ واقعی در آنها بدست آمد و سپس با استفاده از فرمول کالیبراسیون بدست آمده از محلول کرومات، $\alpha/\alpha+\beta$ محاسبه شد و با هم مقایسه شدند. نتایج در جدول زیر آورده شده است (جدول ۲).

جدول شماره (۲)

واقعی						محاسبه شده	اختلاف محاسبه شده با واقعی
SQPE	Channel	α (cpm)	β (cpm)	$\alpha+\beta$	$\alpha/\alpha+\beta$	$\alpha/\alpha+\beta$	
711.62	602	1827.26	1252.31	3079.57	0.593	0.807	0.214
716.82	616	2113.39	994.28	3107.68	0.680	0.828	0.148
735.58	637	2615.84	511.72	3127.56	0.836	0.905	0.068
759.82	651	2908.00	259.31	3167.32	0.918	0.959	0.040
755.77	653	2871.63	284.72	3156.35	0.910	0.955	0.045

در تمام موارد نسبت $\alpha/\alpha+\beta$ بدست آمده از نمونه های واقعی با نسبت های محاسبه شده از کالیبراسیون اختلاف قابل توجهی داشته و با کاهش SQPE این اختلاف شدیدتر می گردد. بنابراین نتیجه گیری میشود که، انتقالات بدست آمده با Na_2CrO_4 با انتقالات در نمونه های واقعی مطابقت نداشته و این ماده برای ایجاد quench مناسب نیست. بنابراین باید از ترکیب دیگری برای ایجاد خاموشی استفاده نمود.

(۳) استفاده از پساب استخراج نمونه خاک در $PSA=95,100,10,30,50$

Quench در نمونه های حقیقی به علت وجود فاز آبی در فاز آلی می باشد. لذا در این تست از محلول زرد رنگ پساب استخراج خاک استفاده شد. نتایج حاصل از شمارش در دو PSA در جداول ۳ و ۴ آمده است.



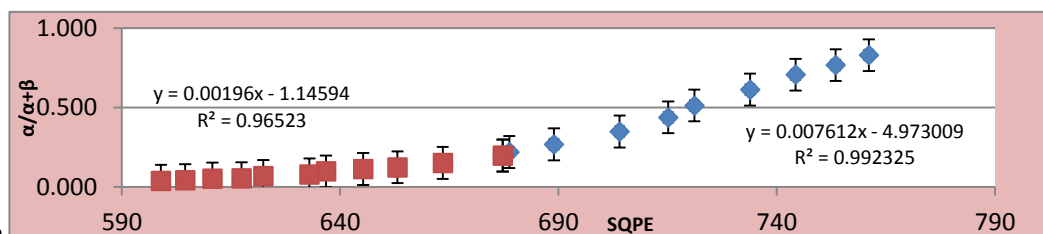
جدول شماره (۳)

SQPE	Channel	α (cpm)	β (cpm)	$\alpha+\beta$	$\alpha/\alpha+\beta$
764.45	651	2742.0	403.28	3145.2	0.872
748.50	639	2593.8	566.81	3160.61	0.821
741.76	640	2459.2	734.94	3194.1	0.770
732.57	626	2115.8	1031.5	3147.3	0.672
726.11	617	1837.4	1352.1	3189.4	0.576
715.16	609	1645.6	1474.2	3119.8	0.527
764.45	651	2742.0	403.28	3145.2	0.872
748.50	639	2593.8	566.81	3160.6	0.821

جدول شماره (۴)

SQPE	Channel	α (cpm)	β (cpm)	$\alpha+\beta$	$\alpha/\alpha+\beta$
761.11	650	2601.1	530.1	3131.2	0.831
753.52	638	2432.2	733.4	3165.6	0.768
744.32	634	2216.9	916.0	3132.8	0.708
733.89	627	1924.7	1212.5	3137.2	0.614
721.13	615	1633.2	1547.2	3180.4	0.514
715.15	609	1378.2	1764.4	3142.6	0.439
704.02	601	1090.0	2031.4	3121.4	0.349
688.97	583	851.1	2316.6	3167.6	0.269
678.75	577	695.1	2459.5	3154.6	0.220
677.24	577	623.2	2520.1	3143.2	0.198
663.49	562	480.6	2679.0	3159.6	0.152
653.14	546	392.2	2756.3	3148.6	0.125
645.25	554	355.1	2773.0	3128.1	0.114
636.74	545	305.2	2778.7	3083.9	0.099
632.97	537	250.0	2867.1	3117.1	0.080
622.39	523	212.2	2834.6	3046.8	0.070
617.41	520	172.7	2925.3	3098.0	0.056
610.71	519	168.0	2955.8	3123.8	0.054
604.49	508	134.9	2958.4	3093.3	0.044
598.95	508	122.5	2975.5	3097.9	0.040

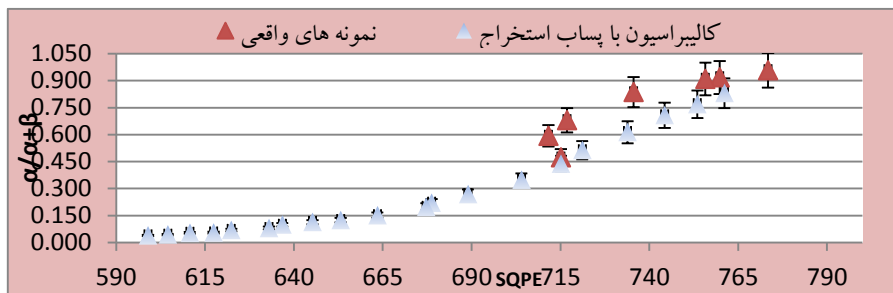
در PSA=95 ضریب رگرسیون مناسب نبود بنابراین ادامه داده نشد و PSA=100 برای این تست انتخاب شد و تستها طبق روش قبل انجام و نمودار مربوطه رسم گردید (نمودار ۲).





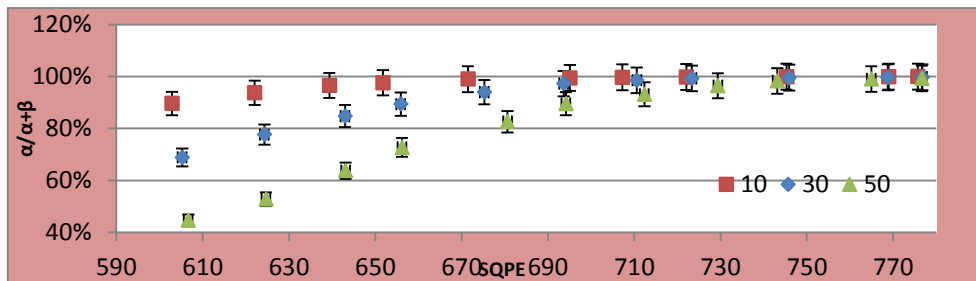
نمودار شماره (۲)

جهت بررسی صحت نمودار فوق، یک نمونه حقیقی مورد آنالیز قرار گرفت که انتقالات محاسبه شده از نمودار با انتقالات واقعی همخوانی نداشت (نمودار ۳).



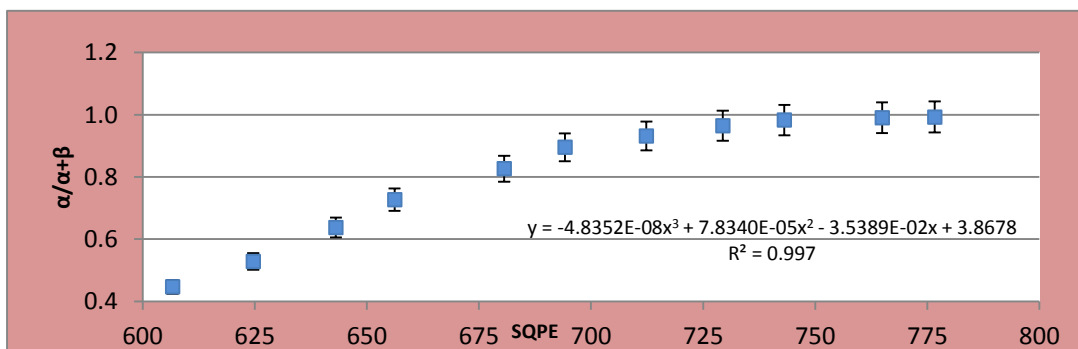
نمودار شماره (۳)

جهت دستیابی به نتایج بهتر، این تست در PSA های پایین تر یعنی ۱۰، ۲۰ و ۵۰ انجام گرفت (نمودار ۴).



نمودار شماره (۴)

از نمودار اخیر نتیجه گرفته می‌شود که در PSA=50 نسبت به PSA های بالاتر، مقدار انتقال آلفا به بتا کم است و از طرفی نسبت به PSA=10, 30، مقدار انتقال بتا به آلفا کم بوده (کمتر از ۳۰٪) و تابش زمینه پایینتر خواهد بود. بنابراین PSA=50 جهت ادامه کار، انتخاب گردید (نمودار ۵).





نمودار شماره (۵)

نتایج:

جهت تصدیق روش، ۳ نمونه خاک محیطی و نمونه خاک آژانس آماده سازی و پس از استخراج در PSA=50 شمارش شد. نتایج بدست آمده با استفاده از نمودار کالیبراسیون در PSA=50 انطباق خوبی با غلظت های حقیقی داشت (جدول ۵).

جدول شماره (۵)

بحث و نتیجه گیری:

برای بررسی اثر خاموشی رنگ از ترکیبات مختلفی استفاده شد که در نهایت پساب حاصل از استخراج نمونه خاک، بهترین گزینه برای ایجاد خاموشی و رسم منحنی انتقالات بود. همچنین رسم منحنی مذکور در PSA های مختلف انجام گردید که PSA=50 بهترین تطابق را با نتایج واقعی داشت.

مراجع:

[1]-Standard test method for uranium in drinking water by high-resolution Alpha-Liquid-

Sample	SQPE	Channel	Read α (cpm)	Read α /Real α	Real α	Cal. ppm	Real ppm	Dif.
1	732.23	621	2.537	97.5%	2.60	1.31	1.71	-23.63%
2	757.97	645	2.558	99.6%	2.57	1.26	1.62	-22.02%
3	699.48	592	2.621	89.6%	2.93	1.72	1.75	-1.72%
IAEA375	736.56	625	2.794	98.1%	2.85	1.62	1.86	-12.94%

Scintillation spectrometry ,ASTM,D 6239(2009).

[2] Guide of Good Practices for Occupational Radiological Protection in Uranium Facilities, DOE-STD-1136 (2009).

[3] Bahman Parsa , "A sequential radiochemical procedure for isotopic analysis of uranium and Thorium in soil",Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry,February1992,Volume 157,Issu1,pp65-73 (1991).

[4] J.Aupiais, "Rapid determination of uranium activity and concentration in water by Alpha-Liquid-Scintillation-with Alpha/Beta discrimination",Analytical.Chim.Acta 517,221-228 (2004).