

# Környezeti minták mérésére szolgáló $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszerek összehasonlító vizsgálata

Sebestyén Róbert<sup>1</sup>, Gólya István<sup>2</sup> és Tarján Sándor<sup>3</sup>

Érkezett: 1991. június 3.

A csernobili reaktorbaleset következményeként a környezetben (ezen belül a táplálékláncban) megjelenő rendkívüli radioaktív szennyezettség nyomon követése több vonatkozásban is a szokásostól eltérő módszerek alkalmazását követelte meg a FM Radiológiai Ellenőrző Hálózatától. A vizsgálatokat és a méréseket a mintákban addig elő nem forduló radioizotópok meghatározására kellett irányítani. A megválasztott követelményeknek a Hálózat a rendelkezésre álló műszerpark segítségével meg tudott felelni, jóllehet a laboratóriumok többsége csak energiaszelektív  $\gamma$ -méréseket volt képes végezni. Az atomerőművi balesetből származó szennyezők vizsgálata során beigazolódott, hogy a továbbiakban nem nélkülözhetők a nuklidszelektív vizsgálatok ( $\gamma$ -spektrometriás mérések), valamint az is, hogy szükség van az egyes szennyezők mennyiségének (aktivitáskoncentrációjának) pontos meghatározására. Különösen az utóbbi az, amely az exportigazolások kiadásának alapját képezi [1].

A GAMMA Művek műszerfejlesztésének – és a beszerzési lehetőségeknek – köszönhetően néhány éve a Hálózat rendelkezésre áll az NK-370 típusú sokcsatornás amplitudó-analizátor adapter, amely – Commodore 64 típusú személyi számítógép-rendszerrel, üreges mérőhellyel és nagytérfogatú üreges szcintillátor-kristállyal felszerelt detektorral összekapcsolva élelmiszerek és egyéb anyagok  $\gamma$ -sugárszennyezettségi szintjének meghatározására szolgál. A laboratóriumok egy részében különböző típusú félvezetődetektoros  $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszer is üzemel.

Az NK-370-es mérőrendszerhez két működtető programcsomag használható. A D-ANALYSER-991 programcsomagot a gyártó fejlesztette ki, a PCA programcsomag a hálózati módszerfejlesztés keretein belül – Tarján Sándor munkájának eredményeképpen – készült el. Működési elvéből, "rugalmasságából", valamint a kiértékelhető energiatartományból követően a PCA programcsomag alkalmazása javasolt a hálózati munkában.

A  $^{40}\text{K}$ -aktivitást a laboratóriumok korábban a minták hamujának káliumtartalmából számították [2]. A szcintillációs  $\gamma$ -spektrometriás méréstechnika telepítésével lehetővé vált a  $^{40}\text{K}$ -aktivitás közvetlen meghatározása.

<sup>1</sup> Megyei Állategészségügyi és Élelmiszer Ellenőrző Állomás, Győr

<sup>2</sup> Megyei Állategészségügyi és Élelmiszer Ellenőrző Állomás, Szombathely

<sup>3</sup> Állategészségügyi és Élelmiszervizsgáló Szolgálat, Radiológiai Osztály, Budapest

Egy korábbi módszerösszehasonlító vizsgálatunkban [3] már tettünk megállapításokat arra vonatkozóan, hogy a  $\gamma$ -spektrometriás mérés technika milyen feltételekkel alkalmas a  $^{40}\text{K}$  aktivitás, de főként a káliumtartalom analitikai célú meghatározására. Ebben a munkánkban a szcintillációs, illetve a félvezetődetektoros  $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszerek teljesítképességét hasonlítjuk össze. Vizsgálataink a csernobili reaktorbaeset következményeként kijutott cézium-izotópok ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ), valamint a környezeti mintákban általában nagy arányt képviselő természetes  $^{40}\text{K}$  izotóp meghatározásának összehasonlítására irányultak.

## Vizsgálati anyag és módszerek

1. táblázat

A minták megoszlása

Az összehasonlító vizsgálatba olyan mintákat vontunk be, amelyekben a meghatározandó radioizotópok aktivitáskoncentrációja széles tartományt reprezentál, ugyanakkor a Hálózat vizsgálati munkatervében jelentős helyet foglalnak el. A minták megoszlását az 1. táblázatban mutatjuk be.

Lucerna	10
Fű	13
Gyümölcs (alma, málna, ribizli)	10
Zöldség (borsó, sóska)	6
Gabona (árpa, búza, kukorica, zab)	14
Gomba és moha	20
Hús (sertés)	3
Összesen:	76

A méréseket kétféle mérőrendszeren végeztük el. A szcintillációs  $\gamma$ -spektrometriás rendszer az alábbi egységekből épült fel:

- NZ-138 típusú nagyterfogatú üreges mérőhely,
- ND-302/E típusú mérőfej, 127 x 127 mm-es üreges NaI(Tl) szcintillátor-kristállyal,
- NA-207 típusú nukleáris spektrométer (mint nagyfeszültségű tápegység),
- NK-370 típusú sokcsatornás amplitudó-analizátor adapter,
- Commodore 64 típusú személyi számítógép-rendszer, a PCA programcsomaggal.

A félvezetődetektoros (nagyfelbontású) CANBERRA mérőrendszert a következő részegységek alkották:

- kombinált ólomvédelem (Model 747),
- koaxiális HPGe detektor (Model 7229P),
- Series 35 PLUS sokcsatornás analizátor (Model 3503),
- IBM XT kompatibilis számítógép, a SPECTRAN-AT programcsomaggal.

A mérési körülményeket, illetve a mérőrendszerek jellemzőit a 2. táblázatban foglaltuk össze.

A táblázatban szereplő adatokhoz az alábbi megjegyzéseket látjuk szükségesnek hozzáfűzni:

- a nagyfelbontású rendszeren a mintákat 20000 vagy pedig 50000 másodperces élő idővel mértük;
- a beméréseket részben a hamuminták sűrűsége, részben a hamuk összes mennyisége korlátozta.

## Mérési körülmények

	CANBERRA	NK-370	
		Győr	Szombathely
Mérési idő:	20000 vagy 50000 s	3300 s	
Bemérés:	12-38 g (A minta sűrűségétől, vagy mennyiségétől függően)		
Geometria:	Gyógyszeres tégely (50 ml)		
Hatásfok [%]:			
Cs-137	1,47	26,77	25,49
K-40	0,77	10,21	10,60
FWHM [keV]:			
Cs-137	1,1-2,1	-	80,5
K-40	2,0-2,3	-	111,2

A CANBERRA mérőrendszer energia- és hatásfok-kalibrálását OMH gyártmányú,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  és  $^{152}\text{Eu}$  izotópokat tartalmazó hiteles anyagmintából készített használati etalonnal végeztük. A szcintillációs rendszer hitelesítésére szolgáló etalonokat  $^{134}\text{Cs}$  és  $^{137}\text{Cs}$  izotópokat tartalmazó hiteles anyagmintából, illetve – az etalon és a hamuminták sűrűsége közötti különbséget csökkentő – kovafölddel kevert KCl-ből készítettük. A KCl – kovaföld arány 3:1 volt.

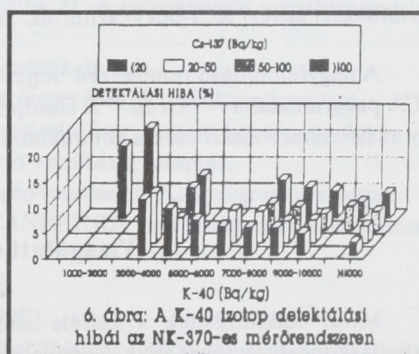
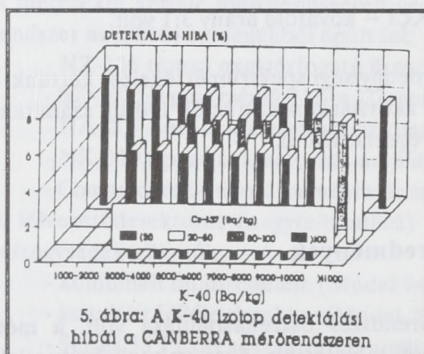
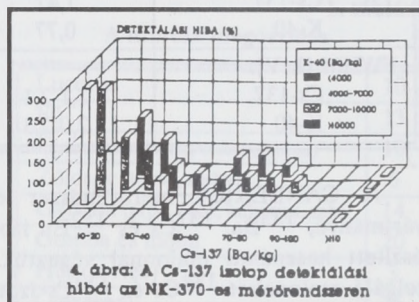
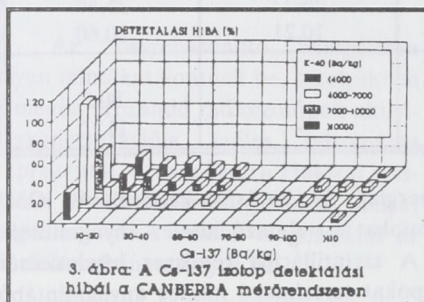
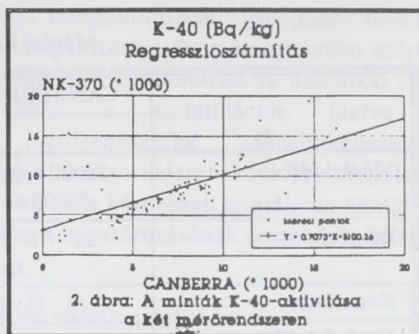
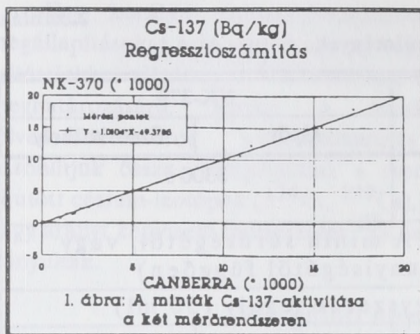
A nagyfelbontású rendszeren "teljes" mennyiségi spektrumértékelést kértünk, a PCA programmal a  $^{137}\text{Cs}$  és  $^{40}\text{K}$  izotópok aktivitáskoncentrációit tudtuk számítani, így az összehasonlítást csak a két nuklidra végezhetjük el.

## Vizsgálati eredmények

Mivel célkitűzésünk a kétféle mérőrendszer összehasonlítása volt, a mért aktivitáskoncentrációkat csak alapadatoknak tekintettük. Arra voltunk kíváncsiak, hogy

- külön-külön a  $^{137}\text{Cs}$  és  $^{40}\text{K}$  izotópok esetén a kétféle mérőrendszeren kapott eredmények megegyezőnek tekinthetők-e, illetve hogy
- sávokra felosztva az előforduló aktivitáskoncentráció tartományokat, hogyan változik az egyes sávokban a mért izotópra vonatkozó detektálási hiba, figyelembe véve a másik izotóp aktivitáskoncentrációját.

A kétféle mérőrendszeren mért  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitásokat az 1. ábrán, a  $^{40}\text{K}$ -aktivitásokat a 2. ábrán mutatjuk be. A  $^{137}\text{Cs}$  izotóp detektálási hibájának alakulását a 3. és a 4. ábrákon, a  $^{40}\text{K}$  izotópét az 5. és a 6. ábrákon hasonlíthatjuk össze.



### Az eredmények értékelése

A félvezetődetektoros, illetve a szcintillációs  $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszer által szolgáltatott – és a vizsgált nuklidokra vonatkozó – mérési eredmények "egyenértékűségének" vizsgálatára az alábbi statisztikai próbákat alkalmaztuk:

- az egymintás (páros) t-próbát, valamint
- a lineáris regressziószámítást [4-6].

A statisztikai számítások fontosabb adatait a 3. és a 4. táblázatban összesítettük, a regressziós egyenesek az 1. és a 2. ábrákon láthatók.

3. táblázat

## Páros t-próba

	Cs-137	K-40
Megfigyelések száma:	76	76
A páronkénti eltérés átlagértéke:	-36,21	1083,33
szórása:	192,63	2659,96
Számított t-érték:	-1,6385	3,5505
Szignifikanciaszint:	0,1055	6,68E-04
A nullhipotézis:	Elfogadjuk	Elutasítjuk

4. táblázat

## Lineáris regresszió

	Cs-137	K-40
<b>Regresszió</b>		
Tengelymetszet:	-49,38	3100,26
Számított t-érték:	-2,1025	4,8978
Szignifikanciaszint:	P<0,05	P<0,001
Meredekség:	1,0104	0,7073
Számított t-érték:	150,41	8,9448
Szignifikanciaszint:	P<0,001	P<0,001
Korrelációs koefficiens:	0,9984	0,7208
<b>Variancia-analízis</b>		
Regresszió F-érték:	2,26E04	80,01
Szignifikanciaszint:	P<0,001	P<0,001

A táblázatok tanúsága szerint a  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitás meghatározására vonatkozóan sem a t-próbával, sem a regressziószámítással nem tudtunk szignifikáns eltérést kimutatni a két méréstechnika között.

Más a helyzet a  $^{40}\text{K}$ -aktivitás meghatározása tekintetében, ott ugyanis mind a t-próba, mind pedig a nálánál erősebb regressziószámítás szignifikáns eltérést jelez. Ez az eltérés összhangban áll a korábbi módszerösszehasonlító vizsgálatunk [3] során szerzett tapasztalatainkkal.

A reziduumok vizsgálatából arra következtethetünk, hogy a viszonylag gyenge korrelációt (és a szignifikáns eltérést) kiugró értékek okozzák. Kiugró eredményeket elsősorban olyan minták esetében kaptuk, amelyeknél alacsony  $^{40}\text{K}$ -aktivitás mellett magas  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitás volt mérhető, másodsorban olyan mintáknál, amelyekben mindkét nuklid aktivitáskonzentrációja magas volt. A szcintillációs mérőrendszer által vétett pozitív hibák oka, hogy a nagy aktivitáskonzentrációban jelenlevő  $^{137}\text{Cs}$  izotóp mellett a mintákban "arányosan" kimutatható volt a baleseti kihullásból származó  $^{134}\text{Cs}$  izotóp is. Ennek 1400.5 keV energiájú összegcsúcsa megjelenik a

spektrumban és beleesik a  $^{40}\text{K}$  izotóp mérésére kijelölt tartományba (ROI-ba). A Vas megyében vett gomba- és mohaminták nagy részében a  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitás elérte a 10-15 Bq/g értéket, ezen mintákban a  $^{40}\text{K}$ -aktivitást a szcintillációs rendszer az említett összegzésűcs miatt többszörösen "fölmérte".

Az előbbinél sokkal kisebb mértékben ugyan, de a  $^{40}\text{K}$ -aktivitás is befolyással van a  $^{137}\text{Cs}$  izotóp aktivitáskoncentrációjának meghatározására. A 661.6 keV energiájú  $^{137}\text{Cs}$ -csúcs a  $^{40}\text{K}$  izotóp által a spektrumban létrehozott Compton-tartományon "ül", ami növeli a nettó csúcsterület meghatározásának bizonytalanságát.

A detektálási hibák alakulását a 3-6. ábrák alapján kvalitatíve értékelhetjük. Ismeretes, hogy az – azonos körülmények között mért – aktivitáskoncentrációk növekedésével a detektálási hiba csökken.

A  $^{137}\text{Cs}$  izotópra vonatkozóan ez a csökkenő tendencia mindkét mérőrendszer esetében megfigyelhető, de – tulajdonságaiból adódóan – a szcintillációs rendszer magasabb hibákkal dolgozik. A bemérhető mennyiségeket figyelembe véve, a mérendő minta  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitásának el kell érnie a 40-50 Bq/kg értéket ahhoz, hogy – tekintettel a korlátozott mérési időre – a detektálási hiba 50 % alá csökkenjen. A 100 Bq/kg feletti aktivitáskoncentrációk már általában 10 % alatti hibával mérhetőek. A minták  $^{40}\text{K}$ -aktivitása az egyes sávokon belül nem befolyásolja kimutathatóan a  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitás detektálási hibáját (3. és 4. ábra).

A  $^{40}\text{K}$  izotóp detektálási hibái mind a két méréstechnika esetén lényegesen szűkebb tartományba esnek, ezért aktivitáskoncentrációtól függő csökkenő tendencia inkább csak a szcintillációs rendszer által szolgáltatott eredményeknél figyelhető meg. A minták  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitása – a fentebb már említett okok következtében – az egyes sávokon belül befolyással van a detektálási hibára: a magasabb – különösen 100 Bq/kg feletti – aktivitáskoncentrációk jelenlétében növekszik a hiba értéke (5. és 6. ábra).

A minimális detektálható aktivitásértékeket az alábbi összefüggés segítségével számíthatjuk ki:

$$\text{MDA} = \frac{2 \cdot k \cdot \sqrt{H}}{\eta \cdot \delta \cdot t \cdot w}$$

ahol: MDA - a legkisebb kimutatható aktivitás [Bq/g],

k - különböző statisztikai biztonsághoz tartozó különböző konstans,

H - a fotocsúchhoz tartozó háttér-impulzus-szám,

$\eta$  - a detektor hatásfoka,

$\delta$  - a bomlási valószínűség [foton/bomlás],

t - a mérési idő [s],

w - a bemérés [g].

A formula alapján a legkisebb kimutatható aktivitás értékének csökkentésére – adott mérőrendszer-összehasonlítás esetén – két lehetőség kínálkozik: a mérési idő és/vagy a bemérés növelése.

A bemért mintamennyiség növelésének a mérőrendszer oldaláról az alkalmazott geometria (térfogata), a minták oldaláról a hamu sűrűsége, illetve rendelkezésre álló összes mennyisége szab határt. A mérendő izotópra nézve végzett bármilyen dúsítási művelet lehetőséget ad a "bemérés" növelésére. Ezért a Radiológiai Ellenőrző Hálózat a mintaelőkészítést (minden minta esetén) szárítással, majd azt követően (a talajminták kivételével) hamvasztással végzi. Nehézséget csupán az jelent, hogy némely mintafajtából szinte lehetetlen olyan mennyiséget gyűjteni, amely feldolgozás után elegendő lenne a mérőedény megtöltéséhez.

A legkisebb kimutatható aktivitás csökkentésének másik módja a mérési idő növelése lehetne. A környezeti mintákban előforduló (többnyire alacsony) cézium-szennyezettség kielégítő pontosságú meghatározása hosszú mérési idők használatát igényli. A nagyfelbontású rendszeren – a  $^{137}\text{Cs}$  izotóp várható aktivitásától függően – 20000 vagy 50000 másodperces élő idővel dolgoztunk. Ezzel elértük, hogy a napi munkaidőben kétszer mintát cserélve, a rendszer csaknem 24 órán át mérési feladatot végezzen. A PCA programcsomag alkalmazhatóságának – a számítógép szabad tárkapacitása következtében legfőbb korlátja az, hogy a vele beállítható maximális mérési idő mindössze 59.9 perc.

A vizsgálat sorozat tapasztalatait összefoglalva megállapíthatjuk, hogy a telepített szcintillációs  $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszer a Radiológiai Ellenőrző Hálózat teljesítőképességét nagymértékben megnövelte. A csernobili reaktorbaleset következtében megfogalmazódott mérési igények kielégítésére alkalmas. Megfelelő hitelesítéssel – nem túl nagy  $^{134}\text{Cs}$  aktivitás esetén – felhasználható a  $^{40}\text{K}$ -aktivitás közvetlen, nukleáris úton történő meghatározására. A GAMMA Művek által gyártott szcintillációs kristályok felbontóképességétől függően potenciális esélyt nyújt további – a környezeti mintákban előforduló – nuklidok vizsgálatára. Az utóbbiak valóra váltásához további hálózati módszerfejlesztő munka szükséges.

## IRODALOM

- [1] Összefoglaló jelentés "Az élelmiszerek radioaktív szennyezettségének ellenőrzése" témakörben vizsgálatokat végző mérőállomások 1986. évi munkájáról, Állategészségügyi és Élelmiszer Ellenőrző Központ, Radiológiai Osztály, 1987. Budapest
- [2] Vizsgálati módszerek a MÉM Radiológiai Adatszolgáltató és Ellenőrző Hálózatban. Kézirat, MÉM ÉVK Radiológiai Osztály, 1980. Budapest
- [3] Sebestyén R., Sudár E.-né, Tarján S.: Radiológiai hamuminták káliumtartalmának /  $^{40}\text{K}$ -aktivitásának meghatározása. Módszerösszehasonlító vizsgálat. Élelmiszervizsgálati Közlemények, 37 (1991) 2, 113-124
- [4] Sváb J.: Biometriai módszerek a kutatásban. Mezőgazdasági Kiadó, 1981. Budapest
- [5] Juvancz I., Paksy A.: Orvosi biometria. Medicina Könyvkiadó, 1982. Budapest
- [6] Kemény S.: Kísérleti tervezés és értékelés BME Mérnöki Továbbképző Intézet, 1985. Budapest

## Környezeti minták mérésére szolgáló $\gamma$ -spektrometriás mérőrendszerek összehasonlító vizsgálata

*Sebestyén R., Gólya I. és Tarján S.*

A szerzők összehasonlították a szcintillációs, illetve a félvezetődetektoros rendszer teljesítőképességét (detektálási hibáit). Az összehasonlítást a csernobili reaktorbaleset következtében kihullott cézium-izotópokra, valamint a környezeti mintákban nagy arányt képviselő  $^{40}\text{K}$  izotópra nézve végezték el. A mérendő mintákat úgy válogatták ki, hogy azokban mindegyik izotóp aktivitáskoncentrációja széles tartományt reprezentáljon. Vizsgálati eredményeik statisztikai és kvalitatív értékelése után azt találták, hogy a  $^{137}\text{Cs}$ -aktivitás meghatározása a két mérőrendszeren nem mutat szignifikáns eltérést. A  $^{40}\text{K}$ -aktivitás meghatározásánál kimutatható eltérést elsősorban a kiugró értékek okozzák. A szcintillációs rendszer a PCA programmal alkalmas a reaktorbaleset alkalmával megfogalmazódott igények kielégítésére.

## Comparative Investigation of $\gamma$ -Spectrometric Measuring Systems for The Study of Environmental Samples

*Sebestyén, R., Gólya, I. and Tarján, S.*

Authors compared the efficiency (detection errors) of scintillation and semiconductive detector systems. Comparisons were performed for cesium isotopes fallen out in consequence of Chernobyl reactor accident as well as  $^{40}\text{K}$  isotopes, representing a great part in environmental samples. Test samples were chosen to represent a wide activity concentration range for both isotopes. After statistical and qualitative evaluation of the results it was found that the determination of  $^{137}\text{Cs}$  activity did not show significant difference. The differences detected in the case of  $^{40}\text{K}$  activity measurement were caused primarily by high values. Scintillation system with PCA program is suitable to satisfy the needs emerging on the occasion of a reactor accident.

## Vergleichende Untersuchung von $\gamma$ -Spektrometer Meßsystemen zur Messung von Umweltproben

*Sebestyén, R.; Gólya, I. und Tarján, S.*

Verfasser haben die Leistungsfähigkeit des Szintillations- bzw. Halbleiterdetektorsystems verglichen. Der Vergleich wurde für die infolge des Reaktorunfalls von Tschernobyl angefallenen Cesium-Isotope sowie für das in Umweltproben einen großen Anteil bildende  $^{40}\text{K}$ -Isotop durchgeführt. Die zu messenden Proben wurden so ausgewählt, daß ein breiter Bereich der Aktivitätskonzentration von jedem Isotop repräsentiert wird. Nach der statistischen und qualitativen Auswertung der Untersuchungsergebnisse wurde festgestellt, daß die Bestimmung der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität mit beiden Meßsystemen keine signifikante Abweichung aufweist. Bei der Bestimmung der  $^{40}\text{K}$ -Aktivität haben in erster Linie die Extremwerte nachweisbare Abweichungen verursacht. Das Szintillationsystem mit PCA-Programm ist geeignet die beim Reaktorunfall aufgetretenen Fragen zu beantworten.