

Kajian kesan ketumpatan sampel terhadap kecekapan pengukuran sistem spektrometri Gama di Makmal Radiokimia dan Alam Sekitar

[Study on the effects of sample density on Gamma spectrometry system measurement efficiency at Radiochemistry and Environment Laboratory]

***Yii Mei-Wo, Dainee Nor Fardzila bt Ahmad Tugi, Khairul Nizam b Razali**

Kumpulan Radiokimia dan Alam Sekitar
Bahagian Teknologi Sisa dan Alam Sekitar
Agensi Nuklear Malaysia
43000 Kajang, MALAYSIA

*Emel: yii@nm.gov.my

ABSTRAK

Kesan ketumpatan sampel terhadap kecekapan pengukuran sistem spektrometri gama telah dikaji dengan menggunakan empat set punca standard nuklid campuran berketumpatan berbeza antara 0.3 – 1.4 g/ml. Kajian dilakukan ke atas tujuh sistem spektrometri gama HPGe bergeometri pengesan sepaksi 25 % di Makmal Radiokimia dan Alam Sekitar (RAS). Perbezaan nilai kecekapan pada tenaga radionuklid pemancar gama serta sistem pengukuran berbeza dibanding dan dibincang. Faktor pembetulan penyerapan diri dalam sampel yang disebabkan oleh perbezaan ketumpatan matrik sampel dan sistem gama telah dianggarkan. Faktor pembetulan tersebut akan digunakan dalam pengkuantitian kepekatan radionuklid pelbagai jenis sampel berketumpatan berbeza untuk kerja servis dan penyelidikan di RAS.

Kata Kunci: ketumpatan sampel, kecekapan pengukuran, sistem spektrometri gama, HPGe, pengesan sepaksi, penyerapan diri dalam sampel, faktor pembetulan.

ABSTRACT

The effects of sample density on the measurement efficiency of the gamma spectrometry system were studied by using four sets multinuclide standard sources of various densities between 0.3 - 1.4 g/ml. The study was conducted on seven unit 25% coaxial HPGe detector gamma spectrometry systems in Radiochemistry and Environment Laboratory (RAS). Difference on efficiency against gamma emitting radionuclides energy and measurement systems were compared and discussed. Correction factor for self-absorption caused by difference in sample matrix density of the gamma systems were estimated. The correction factors are to be used in quantification of radionuclides concentration in various densities of service and research samples in RAS.

Keywords: sample density, measurement efficiency, gamma spectrometry system, HPGe, coaxial detector, self-absorption in sample, the correction factor.

PENGENALAN

Keradioaktifan berlaku apabila suatu radionuklid tidak stabil memancarkan sinaran alfa, beta atau gama ke persekitaran, agar berlaku transformasi nuklear dalam nukleus atom supaya ia berubah menjadi suatu radionuklid stabil. Keaktifan gama yang dipancarkan, contoh dari radionuklid ^{137}Cs boleh dianggarkan (sebab proses keradioaktifan merupakan satu proses rawak) secara kualitatif dan kuantitatif dengan menggunakan satu peralatan pengukuran yang dinamakan sistem spektrometri gama. Spektrometri gama merupakan peralatan nuklear yang paling banyak digunakan dalam komuniti nuklear untuk menentukan kepekatan serta ralat keaktifan radionuklid dalam sesuatu sampel. Ia amat popular kerana ia tidak melibatkan teknik penyediaan sampel yang rumit, sampel tidak dimusnahkan selepas analisis (tidak seperti teknik kimia yang akan mencernakan sampel) dan yang penting sekali adalah kerana kebanyakan radionuklid memancarkan sinaran gama semasa tranformasi nuklear (Dovlete dan Povinec, 2002).

Kebiasaannya, sampel yang ingin ditentukan keaktifannya akan diisi ke dalam suatu bekas standard, dipadatkan dan diukur dengan sistem pembilang untuk suatu jangka masa yang tertentu. Satu spektra akan dijanakan dan keaktifan serta identiti radionuklid dapat dikenalpasti menerusi spektra tersebut.

Walau bagaimanapun, sebelum keaktifan sampel boleh diketahui, sistem tersebut perlu ditentukkan terlebih dahulu dengan sumber radionuklid gama standard. Kemudian, bahan rujukan yang sesuai dengan nilai keaktifan radionuklid gama yang diketahui akan digunakan untuk mengesahkan bahawa kerja penentuan tenaga dan kecekapan sistem telah dilakukan dengan betul. Bahan standard, bahan rujukan dan juga sampel yang hendak diukur mestilah wujud dalam keadaan pengukuran yang sama untuk mengelakkan salah ukur (anggaran) keaktifan sampel. Keadaan pengukuran yang dimaksudkan termasuk faktor-faktor seperti saiz bekas, jarak sampel ke pengesan, kuantiti sampel (ketinggian atau ketebalan), ketumpatan sampel, serta matriks sampel dan lain-lain (Schultz, 2005; Gilmore dan Hemingway, 1998; Omar dan Laili, 2005). Oleh kerana dari segi pratikal, ketumpatan sampel adalah berbeza dan tidak munasabah ketumpatan sampel akan sentiasa sama dengan ketumpatan standard (ketumpatan sampel akan mempengaruhi penyerapan sinaran gama dalam sampel itu sendiri), maka kecekapan sistem akan berbeza mengikut ketumpatan. Kajian ini dilakukan dengan tujuan untuk mencari faktor pembetulan kecekapan sistem spektrometri di Makmal Radiokimia dan Alam Sekitar dengan menggunakan empat standard yang berlainan ketumpatan.

EKSPERIMEN

Bahan dan Reagen

Bekas plastik 350 ml, larutan standard nuklid campuran terdiri dari ^{210}Pb , ^{241}Am , ^{109}Cd , ^{57}Co , $^{123\text{m}}\text{Te}$, ^{51}Cr , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{88}Y dan ^{60}Co yang dibeli dari Isotope Products Laboratories, USA (No Punca 1755-30). Spesimen kajian yang digunakan terdiri dari isi kelapa kering ($\rho = 0.3 \text{ g/ml}$), serbuk koko ($\rho = 0.5 \text{ g/ml}$), air suling ($\rho = 1.0 \text{ g/ml}$) dan sirap ($\rho = 1.4 \text{ g/ml}$)

Penyediaan bahan kajian / spesimen

Isi kelapa kering dimasukkan ke dalam dua bekas plastik 350 ml yang berbeza. Suatu amaun yang diketahui standard nuklid campuran yang dinyatakan diatas telah ditambah ke dalam salah satu bekas tersebut. Ia kemudiannya diadunkan sehingga sekata. Kedua-dua bekas tersebut dilakri dengan pita PVC untuk mengelakkan tumpahan. Bekas ini telah sedia untuk diukur. Proses tersebut diulang untuk tiga jenis spesimen yang lain. Amaun standard dalam keempat-empat jenis spesimen adalah hampir sama.

Sistem Pembilang

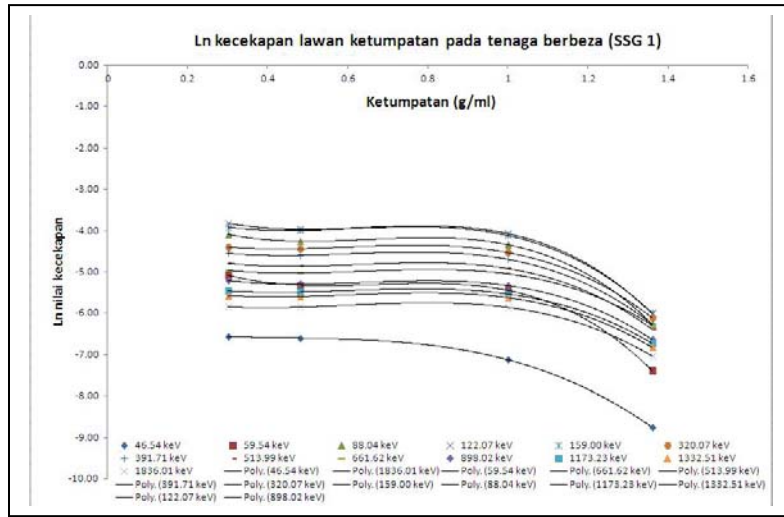
Kajian dilakukan ke atas tujuh sistem spektrometri gama Germanium lampau tulen (HPGe) bergeometri pengesan sepaksi 25 % dalam orientasi menegak, kriostat (*cryostat*) direndam dalam dewar 30 liter berisi cecair nitrogen untuk penyejukan. Peralatan tersebut diperisai dengan perisai plumbum setebal 11 cm (kecuali sistem SSG 1 hanya 6.5 cm) untuk melindungi dari sinar latar belakang dan disalut dengan lapisan kadmium dan kuprum untuk mengurangkan sinar-x *bremsstrahlung*. Nilai resolusi FWHM untuk kesemua sistem pada tenaga 1332.5 keV ^{60}Co adalah antara 1.8 – 2.0 keV. Prestasi kesemua sistem dipantau selalu secara berkala untuk memastikan ia sentiasa dalam keadaan beroperasi elok (Yii *et al.*, 2003). Spesimen isi kelapa kering yang telah ditambah standard akan diukur selama satu jam. Kemudian, bekas berisi isi kelapa kering yang tidak ditambah standard (dianggap sebagai sampel latar belakang) juga akan diukur selama satu jam. Langkah ini diulang untuk tiga jenis spesimen yang lain. Pembilangan dilakukan ke atas kesemua spesimen pada satu sistem yang sama dalam hari yang sama supaya faktor perubahan persekitaran (suhu dan kelembapan) boleh diabaikan (Yii *et al.*, 2003). Proses ini diulang untuk kesemua sistem yang lain.

Penilaian spektra

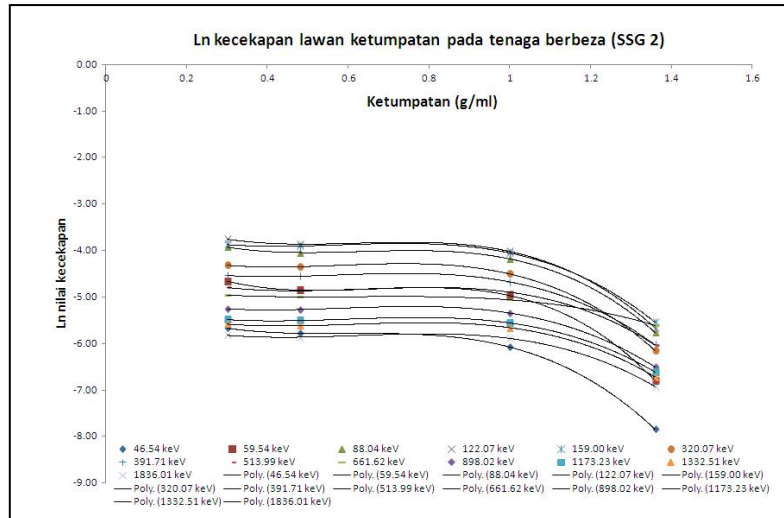
Respon (*Count*) dalam spektra standard ditolak dengan respon di dalam spektra latar belakang yang sejenis untuk mendapat satu spektra bersih. Puncak-puncak radionuklid dalam spektra tersebut akan dikenalpasti berdasarkan nilai tenaganya. Puncak-puncak tersebut ditanda mengikut panduan seperti dinyatakan dalam Gilmore dan Hemingway (1998) dan IAEA (1989). Respon per masa (cps) puncak dinisbahkan kepada keaktifan radionuklid (dps [Bq] berdasarkan nilai dalam sijil) pada puncak tersebut untuk mendapatkan nilai kecekapan sistem. Ia diulang untuk semua puncak dalam spektra bagi memperolehi nilai kecekapan pada nilai tenaga berbeza. Keseluruhan langkah tersebut diulang untuk keempat-empat jenis spesimen.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

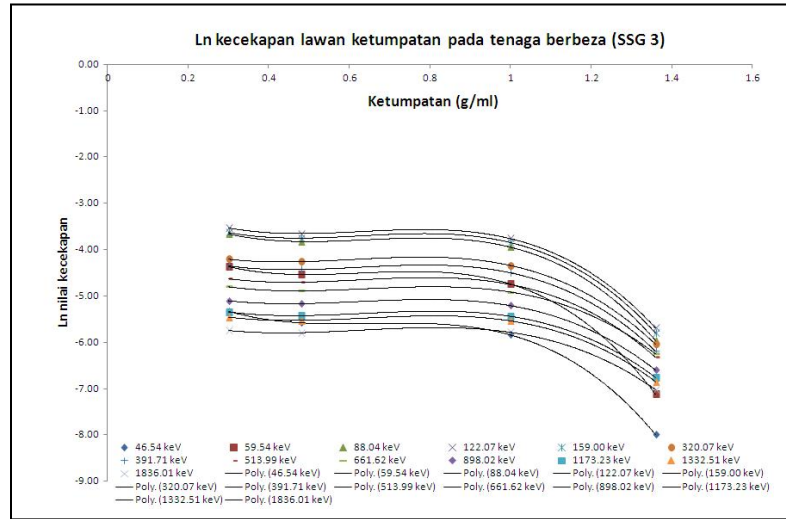
Kesemua empat set spesimen telah diukur pada setiap sistem spektrometri gama jenis sepaksi di makmal RAS. Respon pada puncak radionuklid ditolak dari respon pada latar belakang untuk mendapat spektra respon bersih. Kecekapan alat pada tenaga berbeza dikira berdasarkan nisbah perbezaan nilai diukur berbanding nilai yang dikirakan dari sijil. Keputusan telah diplotkan dalam bentuk graf nilai Ln kecekapan lawan ketumpatan pada tenaga yang berbeza bagi setiap satu sistem (Rajah 1 – 7).



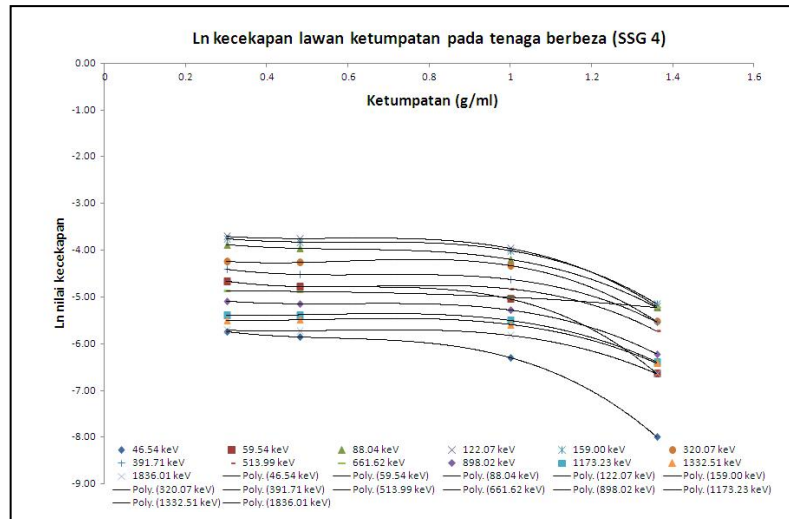
Rajah 1: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 1



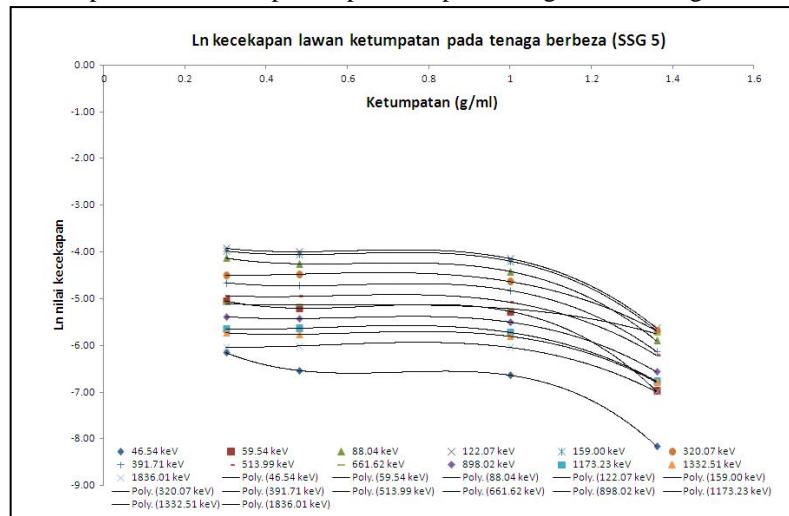
Rajah 2: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 2



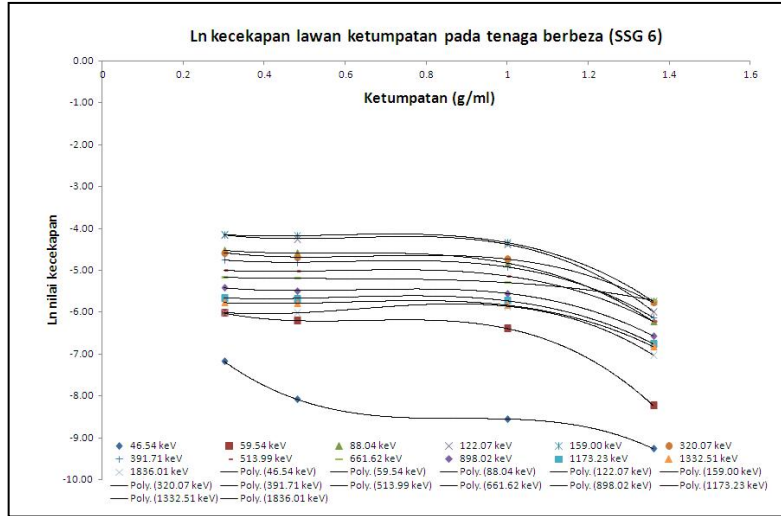
Rajah 3: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 3



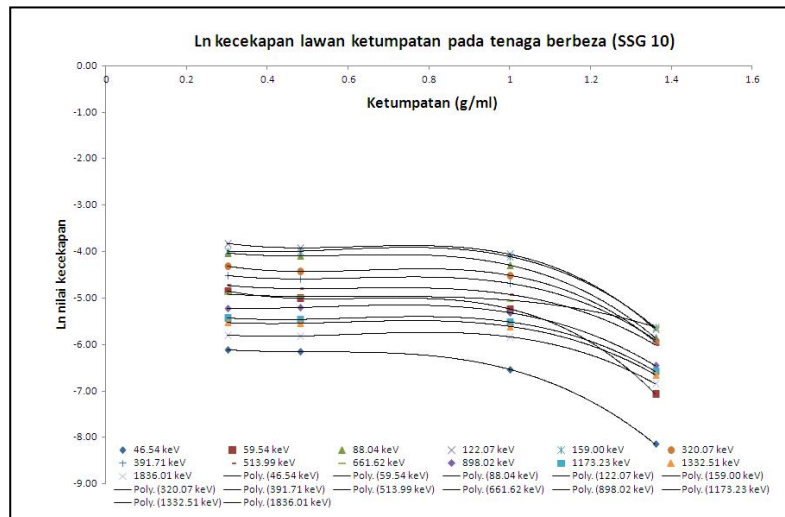
Rajah 4: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 4



Rajah 5: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 5



Rajah 6: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 6



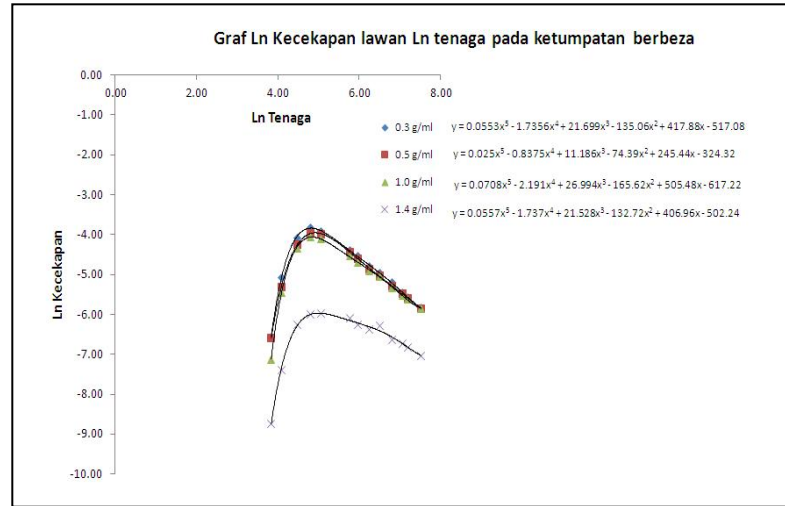
Rajah 7: Graf Ln nilai kecekapan lawan ketumpatan spesimen pada tenaga berbeza bagi sistem SSG 10

Dari rajah-rajah 1 – 7, boleh diperhatikan bahawa nilai kecekapan untuk alat adalah lebih tinggi pada sampel berketumpatan yang rendah berbanding sampel berketumpatan tinggi. Ini adalah disebabkan oleh kesan penyerapan dalam (*self-absorption*) berlaku dalam sampel (Omar dan Laili, 2005). Sampel yang lebih tumpat akan memberi kesan perisaian (*shielding effect*) yang lebih. Dengan menggunakan graf-graf berikut, hubungan polinomial antara nilai kecekapan dengan ketumpatan dapat dikaitkan untuk sampel berketumpatan antara 0.3 – 1.4 g/ml dalam julat tenaga dari 46.5 – 1836 keV. Maka faktor pembetulan nilai kecekapan alat akan dapati dikira.

Sebagai contohnya, jika satu sampel dengan ketumpatan 0.8 g/ml diukur pada alat SSG 4, respon radionuklid, katakan dikesan pada tenaga 800 keV. Maka nilai kecekapan pada tenaga tersebut boleh ditentukan dengan mengikuti langkah berikut:

Pertama, dengan menggunakan hubungan yang terdapat dalam graf Rajah 4, nilai kecekapan boleh dikira untuk tenaga 46.54 keV, 59.54 keV, 88.04 keV, 122.07 keV, 159.00 keV, 320.07 keV, 391.71 keV, 513.99 keV, 661.62 keV, 898.02 keV, 1173.23 keV, 1332.51 keV, 1836.01 keV pada ketumpatan 0.8 g/ml.

Kedua, nilai Ln kecekapan pada setiap tenaga akan diplot berlawanan dengan nilai Ln tenaga dan ini akan membentuk satu graf tipikal kecekapan lawan tenaga seperti dalam Rajah 8 di bawah.



Rajah 8: Graf tipikal Ln nilai kecekapan lawan Ln tenaga

Ketiga, dari Rajah 8, nilai tenaga dan kecekapan akan dapat dikaitkan dengan satu hubungan polinomial. Seterusnya, dari hubungan polinomial tersebut, nilai kecekapan pada tenaga tertentu dapat dikira. Dengan nilai kecekapan ini, respon sampel dalam spektra akan ditukarkan kepada keaktifan (Bq) sampel menurut formula yang dinyatakan dalam Gilmore dan Hemingway (1998) dan IAEA (1989).

Hubungan kecekapan dan tenaga (Rajah 8) tidak wujud sebagai satu hubungan linear kerana pada tenaga gama rendah, tenaga tidak berupaya untuk menembusi bingkai (*casing*) pengesan dan sampai pada hablur germanium (Ge) dalam pengesan. Apabila tenaga bertambah, maka ia semakin berupaya untuk menembusi bingkai pengesan, tenaga seterusnya akan diserap oleh hablur Ge dan mengakibatkan proses pengionan dalam hablur. Tetapi apabila tenaga semakin bertambah, tenaga sinar gama ini akan mula menembusi hablur Ge menyebabkan semakin kurang tenaga yang dapat diserap untuk menyebabkan proses pengionan dalam hablur. Oleh itu, kecekapan pengesan akan menurun semula (Gilmore dan Hemingway, 1998).

Oleh kerana kecekapan setiap sistem adalah berbeza walaupun spesimen yang sama diukur (sebab respon alat berbeza bergantung *noise* alat), maka nisbah kecekapan akan digunakan untuk membuat perbandingan kecekapan antara sistem pembilang. Kecekapan spesimen akan dinisbahkan dengan kecekapan air suling ($\rho = 1.0 \text{ g/ml}$) setiap sistem. Ini kerana pada kebiasaannya, matriks berketumpatan $\rho = 1.0 \text{ g/ml}$ digunakan untuk kalibrasi alat sebab kebanyakan sampel mempunyai ketumpatan $\sim 1 \text{ g/ml}$.

Bagi punca standard 0.3 g/ml, nilai nisbah kecekapan pada semua tenaga (46.54 keV ke 1836.01 keV) adalah dari 0.86 – 1.75 dengan sisihan piawai 5.1%. Nilai sisihan yang kecil pada tenaga sederhana (100 – 1500 keV) menunjukkan kecekapan bagi kesemua tujuh sistem yang dikaji adalah hampir sama. Nilai sisihan yang tinggi (hampiri 8 – 10 %) didapati pada tenaga rendah (< 100 keV) dan tenaga tinggi (> 1836 keV). Ini adalah munasabah sebab pada tenaga rendah, terdapat banyak gangguan isyarat elektronik (*noise*) manakala pada tenaga tinggi (1836 keV), nilai kecekapannya adalah sangat kecil (maka peratusan ralat akan menjadi tinggi walaupun perbezaan nilai kecil).

Bagi punca standard 0.5 g/ml, nilai nisbah kecekapan semua tenaga adalah dari 0.85 – 1.69 dan sisihan piawai adalah 4.8%. Sekali lagi, nilai sisihan yang tinggi dijumpai pada julat tenaga rendah dan tenaga tinggi seperti di atas. Keadaan yang sama didapati berlaku untuk sampel pada ketumpatan ini seperti dengan punca berketumpatan 0.3 g/ml.

Manakala untuk punca standard 1.4 g/ml, nilai nisbah kecekapan adalah antara 0.09 – 0.49. Sisihan piawai bagi semua nilai adalah lebih tinggi (sekitar 5.7 %) berbanding dengan standard 0.3 g/ml dan 0.5 g/ml. Ini mungkin disebabkan oleh ketumpatan sampel yang tinggi telah menghalang sinaran gama, menyebabkan nilai kecekapan menjadi kecil dan menyebabkan peratusan ralat tinggi walaupun perbezaan nilai kecil.

KESIMPULAN

Penentuan nilai kecekapan yang tepat pada suatu sistem spektrometri gama adalah penting sebab nilai ini digunakan dalam perkiraan untuk menukarkan respon (*count*) diukur kepada keaktifan sampel (nilai keradioaktifan sampel). Berdasarkan kajian yang telah dilakukan, ketumpatan sampel sememangnya memberi kesan terhadap nilai kecekapan sistem dimana semakin tinggi ketumpatan, semakin rendah nilai kecekapan disebabkan oleh kesan penyerapan dalaman (*self-absorption*) dan kesan perisaian (*shielding effect*). Hubungan antara kecekapan alat dan ketumpatan sampel telah dapat ditetapkan untuk tujuh sistem spektrometri gama sepaksi 25% di RAS. Dengan menggunakan hubungan tersebut, maka nilai kecekapan sistem spektrometri gama boleh dikira untuk sampel-sampel yang mempunyai ketumpatan yang berbeza.

RUJUKAN

1. Dovlete, C. dan Povinec, P.P., (2002), *Quantification of Uncertainty in Gamma Spectrometric Analysis of Environmental samples, 2nd Regional Training Course on QA/QC of Nuclear Analytical Techniques*. 12-16 August 2002, Kuala Lumpur, Malaysia.
2. Gilmore, G. dan Hemingway, J., (1998), *Practical Gamma-Ray Spectrometry. First Ed.* John Wiley & Sons Ltd, West Sussex, England. 314pp.
3. International Atomic Energy Agency, (1989), *Measurement of Radionuclides in Food and the Environment*. Technical Report Series No. **295**, Vienna, Austria.
4. Schultz, M.K., (2005), *Technical Specifications and Recommendations of Gamma Spectrometry Systems*, www.ortec-online.com/application-notes/gammaspecs.pdf.
5. Yii, Mei-Wo, Zaharudin, A. and Kamarozaman, I., (2003), *The Effect Of Surrounding Conditions On The Radioactivities Measurement Using Gamma Spectrometry System*. MTC Proceeding, MINT Bangi.
6. Omar, M. dan Laili, Z., (2005), Effects of Sample Density in the Determination of Radionuclides by Gamma Spectrometry. *J. Nucl. Related Technol.*, 2(2): 15 – 22.