

Samu Ruotsalainen

# NaI-gammaspektrometrin mittausohjelmiston ja analyysiosan kehitys ja validointi

Insinöörityö

Metropolia Ammattikorkeakoulu  
Insinööri (AMK)  
Kemiantekniikan koulutusohjelma  
Insinöörityö  
11.4.2012

Tekijä(t) Otsikko Sivumäärä Aika	Samu Ruotsalainen NaI-gammaspektrometrin mittausohjelmiston ja analyysiosan kehitys ja validointi. 45 sivua + 5 liitettä 11.4.2012
Tutkinto	Insinööri (AMK)
Koulutusohjelma	Kemiantekniikan koulutusohjelma
Suuntautumisvaihtoehto	Ympäristötekniikka
Ohjaaja(t)	Laboratoriojohtaja Kaj Vesterbacka Yliopettaja Jukka Toivonen
<p>Insinööriyössä tutkittiin Säteilyturvakeskuksessa kehitettyä mittausohjelmistoa ja siihen liitettävää analyysiosaa, jolla voidaan määrittää näytteessä olevien radioaktiivisten nuklidien aktiivisuudet. Ohjelmisto on uusi eikä sitä ole aiemmin käytetty näytemittauksissa. Tehtävänä oli arvioida mittausohjelmiston sekä analyysiosan käytettävyyttä, soveltuvuutta, tuloksia ja niiden toistettavuutta. Insinööriyö tehtiin osana projektia, jossa uudistetaan ja kehitetään koko Suomen kattavan laboratorioverkoston mittauslaitteistoja ja -ohjelmistoja. Mittaukset tehtiin natriumjodidi-gammaspektrometrillä Säteilyturvakeskuksen tiloissa.</p> <p>Mittauslaitteistolle tehtiin tarvittavat kalibroinnit. Tehokkuuskalibroinnin sovituksen avulla mittausohjelmiston analyysiosa kykeni arvioimaan näytteille aktiivisuudet. Toistomittaukset tehtiin maitojauhenäytteillä, joissa oli eri määrät cesium-134- ja cesium-137-nuklideja. Mittausajan keston vaikutusta näytteen aktiivisuuden tuloksen luotettavuuteen arvioitiin eripituisilla mittausajoilla. Laitteistolle arvioitiin aktiivisuuden mittaustuloksen kokonaisepävarmuus ja havaitsemisraja. Uusittavuutta arvioitiin tekemällä toistomittauksia eri mittauspäivinä.</p> <p>Mittauksilla määritetty natriumjodidi-ilmaisimen tehokkuus todettiin onnistuneeksi. Vaikka tehokkuuskäyrän muotoa ei päästykään vertaamaan Monte Carlo -simuloinnilla, todettiin tehokkuuskalibrointi onnistuneeksi vertailunäytemittausten avulla. Toistomittauksilla todettiin, että laitteisto toistaa tuloksia hyvin.</p> <p>Analyysiohjelman syöttötiedot ja asetukset pidettiin mittauksissa lähes vakioina, sillä tehtävänä oli tutkia ohjelmistoon vaikuttavia muita asioita ja varmistaa, että ohjelmisto toimii oikein. Jos asetuksia muutetaan, analyysiohjelmisto toimii selvästi erilailla. Analyysiohjelman toimivuutta on tarkasteltava tulevaisuudessa siten, että parametreja ja asetuksia muutetaan. Tässä työssä saatuja tuloksia voidaan käyttää tulevissa mittausohjelmiston kehittämisvaiheissa.</p>	
Avainsanat	gammaspektrometri, gammasäteily, tuikeilmaisin

Author(s) Title Number of Pages Date	Samu Ruotsalainen The development and validation of a NaI gamma spectrometer's measurement software and analytical part 45 pages + 5 appendices 11 April 2012
Degree	Bachelor of Engineering
Degree Programme	Chemical Engineering
Specialisation option	Environment Technology
Instructor(s)	Kaj Vesterbacka, Head of Laboratory Jukka Toivonen, Principal Lecturer
<p>The purpose of this thesis project was to study a measurement software, and the analytical part linked to it, developed by Säteilyturvakeskus. The analytical part is used to define the activity of the radioactive nuclides in samples. The software is new and has not been used in sample testing before. The mission was to assess the usability, suitability, results, and reproducibility of the measurement software and the analytical part. This thesis project was carried out as part of a project in which the measuring equipment and software of a national laboratory network is developed and renewed. The measurements were made in the premises of Säteilyturvakeskus with a sodium iodide gamma spectrometer.</p> <p>The necessary calibrations for the measuring equipment were made. With the help of efficiency calibration, the analytical part of the measurement software was able to determine the activities for the samples. The repeated measurements were made with dried milk samples that contained different amounts of caesium-134 and -137 nuclides. The effects of the measuring time on the result reliability of the sample activity were estimated with measuring times of different length. The total uncertainty and the detection limit of the measurement results for the equipment were estimated. The reproducibility was assessed by making replicate measurements on different days.</p> <p>The measurements defined the efficiency of the sodium iodide detector successful. Even though the shape of the efficiency curve could not be compared with the Monte Carlo simulation, the efficiency calibration was found successful through reference sample measurements. The measurement equipment was found to repeat results well through replicate measurements.</p> <p>The input data and settings of the analysis software were held nearly constant, because the mission was to examine other things influencing the software and to make sure that the software runs correctly. If the settings are changed, the analysis software runs differently. The functionality of the analysis software should in the future be examined by changing the parameters and settings. The results obtained during the thesis project can be used in future development phases of the measurement software.</p>	
Keywords	gamma spectrometer, gamma radiation, scintillation detector

## Sisällys

1	Johdanto	1
1.1	Työn aihe ja tavoitteet	1
1.2	Säteilyturvakeskus	1
1.3	Paikallislaboratoriot	1
1.4	Ympäristön säteilyvalvontalaboratorio	2
2	Radioaktiivisuus	3
2.1	Johdanto	3
2.2	Eksponentiaalinen hajoamislaki	3
2.3	Ionisoiva säteily	5
2.4	Alfahajoaminen ja -säteily	6
2.5	Beetahajoaminen ja -säteily	6
2.6	Gammasäteily	7
2.7	Vuorovaikutusilmiöt	8
3	Gammaspektrometria	10
3.1	Johdanto	10
3.2	Tuikeilmaisoin	10
3.3	Valomonistinputki	11
3.4	Pulssinkorkeusanalysointilaite	12
3.5	Natriumjodidi-gammaspektrometria	13
3.6	Näytteen valmistus	14
3.7	Spektrin muodostuminen ja tulkinta	15
3.8	MAJAVA-ohjelmisto	17
3.8.1	Piikkianalyysi	17
3.8.2	Aktiivisuuslaskenta	18
3.9	Laitteiston kalibrointi	18
3.9.1	Energiakalibrointi	18
3.9.2	Tehokkuuskalibrointi	19
3.10	Monte Carlo -simulointi	22
4	Validointi	23
4.1	Johdanto	23

4.2	Mittausepävarmuus	23
4.3	Toistettavuus	24
4.4	Uusittavuus	24
4.5	Luottamusväli	24
4.6	Kokonaisepävarmuus	26
4.7	Havaitsemisraja	26
5	Mittaukset	28
5.1	Gammaspektrometrin kalibrointi	28
5.2	Energiakalibroinnin tekeminen	28
5.3	Tehokkuuskalibroinnin tekeminen	29
5.4	Menetelmän validointi	34
5.4.1	Toistettavuus	34
5.4.2	Uusittavuus	36
5.4.3	Mittausajan vaikutus aktiivisuustuloksiin	37
5.4.4	Luottamusväli	39
5.4.5	Kokonaisepävarmuus	39
5.4.6	Havaitsemisraja	41
6	Yhteenveto	42
	Lähteet	44
	Liitteet	
	Liite 1. Esimerkki tehokkuuskalibroinnin mittausdatasta	
	Liite 2. Tehokkuuskalibroinnin tulokset	
	Liite 3. $^{134}\text{Cs}$ :n ja $^{137}\text{Cs}$ :n aikamittausten aktiivisuustulokset	
	Liite 4. Maitojauhemittojen aktiivisuustulokset	
	Liite 5. $^{134}\text{Cs}$ :n ja $^{137}\text{Cs}$ :n toistomittausten gammapiikkien pinta-alat ja epävarmuudet	

# 1 Johdanto

## 1.1 Työn aihe ja tavoitteet

Insinööriyö tehtiin Säteilyturvakeskukselle (STUK). Työn mittaukset ovat osana projektia, jossa uudistetaan ja kehitetään koko Suomen kattavaa laboratorioverkostoa, mittauslaitteistoja ja -ohjelmistoja. Nykyisin käytössä olevien laitteiden ohjelmistot on toimitanut niiden valmistaja eikä STUKilla ole juurikaan mahdollisuuksia niiden ominaisuuksien muokkaamiseen. STUKissa on kehitetty mittausohjelmisto (Majava) ja siihen liitettävä analyysiosia, jonka käytettävyyttä, soveltuvuutta ja tuloksia insinööriyö käsittelee. Majava-ohjelmiston on uusi, eikä sitä ole aikaisemmin käytetty näytemittauksissa. Tavoitteena on saada validoitu mittausmenetelmä ympäristönäytteille, määrittää mittausmenetelmälle määritysrajat, toistettavuus, uusittavuus ja kokonaisuvarmuus. Tarkoituksena on tutkia, antaako ohjelma oikeita mittaustuloksia, kun kaikki tuloksiin vaikuttavat asiat on selvitetty. [1.]

## 1.2 Säteilyturvakeskus

Säteilyturvakeskus on viranomainen, joka vastaa Suomen säteily- ja ydinturvallisuusvalvonnasta. STUKin palveluksessa on noin 340 henkeä. Tutkimustoiminta keskittyy säteilysuojeluun ja säteilyn terveyshaittoihin. Tutkimus ja ympäristönvalvonta -osastolla on kaikkiaan seitsemän laboratoriota, joista kuusi sijaitsee Helsingissä ja yksi Rovaniemellä. Osaston tehtäviin kuuluu muun muassa tuottaa säteilyyn liittyvää uutta tietoa, toteuttaa Suomessa esiintyvän säteilyn valvontaa, antaa asiantuntija- ja mittauspalveluja sekä tukea viranomaisvalvontaa. [2; 3.]

## 1.3 Paikallislaboratoriot

Suomessa on noin 40 paikallislaboratoriota, jotka ovat kunnallisia elintarvikelaboratorioita tai yksityisiä laboratorioita. Jokainen laboratorio palvelee useamman kunnan aluetta. Laboratorioilla on valmius mitata radioaktiivisten aineiden pitoisuuksia elintarvikkeissa STUKin ohjeiden mukaisesti. Laboratoriot tekevät mittauksia laskeumatilanteen sattuessa, jotta tilanteen vakavuus voidaan kartoittaa. Tarvittaessa laboratoriot mittaa-

vat oman alueensa tuotantolaitosten ja asukkaiden omia elintarvikkeita. Säteilyturvakeskus on toimittanut paikallislaboratorioihin natriumjodidi-ilmaisimeen perustuvat gammaspektrometrilaitteistot. Kyseisellä laitteistolla paikallislaboratoriot voivat tehdä yksinkertaisia gammamittauksia. Jotta mittaustaito säilyisi, STUK järjestää paikallislaboratorioille koulutustilaisuuksia ja laboratoriot suorittavat säännöllisesti näytemittauksia sekä raportoivat mittaustulokset Säteilyturvakeskukselle. [4.]

#### 1.4 Ympäristön säteilyvalvontalaboratorio

Ympäristön säteilyvalvontalaboratorio on Säteilyturvakeskuksen Tutkimus- ja ympäristönvalvontaosaston laboratorio, joka vastaa ja kehittää valtakunnallista ulkoisen säteilyn valvontaverkkoa. Ulkoisen säteilyn valvontaverkkoon kuuluu 260 automaattista mitausasemaa. Laboratorio vastaa myös muusta ympäristön säteilyvalvonnasta, joka kattaa elintarvikkeiden, pintaveden, juomaveden ja laskeuman radioaktiivisuuden valvonnan. Lisäksi laboratorion tehtävänä on valmiustoiminnan ylläpito, kehittäminen ja ohjeistaminen. [5.]

## 2 Radioaktiivisuus

### 2.1 Johdanto

Radioaktiivisessa hajoamisessa atomien ytimet muuttuvat toisiksi ytimiksi. Epästabiilin ytimen hajoaminen tapahtuu ilman ulkoisten tekijöiden vaikutusta. Hajoamisen seurauksena ydin lähettää säteilyä, joka voi olla hiukkas- tai sähkömagneettista säteilyä. Nuklidi on atomin ydin ja siinä on tietty määrä protoneja ja neutroneja. Tietyn alkuaineen nuklideissa on aina sama määrä protoneja, mutta niissä voi olla eri määrä neutroneja. Isotoopit ovat saman alkuaineen eri muotoja, jotka eroavat toisistaan ytimessä olevien neutronien lukumäärän ja ytimen ominaisuuksien suhteen. Radioaktiivisessa hajoamisessa käytetään alkuperäisestä nuklidista nimitystä emonuklidi ja syntyvästä uudesta nuklidista tytärnuklidi. [6, s. 18; 7, s. 19–20.]

Radioaktiivisen lähteen aktiivisuus  $A$  on lähteessä tapahtuvien hajoamisen lukumäärä aikayksikössä. SI-järjestelmän mukainen aktiivisuuden yksikkö on becquerel (Bq). Jos lähteessä tapahtuu keskimäärin yksi hajoaminen sekunnissa, sen aktiivisuus on 1 Bq. Radioaktiivinen hajoaminen on satunnaisilmiö, joten radioaktiivisen ytimen hajoamisen ajankohtaa ei voida tarkasti ennustaa. Hajoamisvakio  $\lambda$  kuvaa radioaktiivisen aineen hajoamisen nopeutta. Hajoamisvakio on todennäköisyys sille, että tietty ydin hajoaa aikayksikön kuluessa. Hajoamisvakion SI-yksikkö on  $s^{-1}$ . Puoliintumisaika ( $T_{1/2}$ ) tarkoittaa sitä aikaa, jonka kuluessa tietystä radionuklidista koostuvan radioaktiivisen lähteen aktiivisuus laskee puoleen alkuperäisestä aktiivisuudesta. [8, s. 13; 9, s. 7–8.]

### 2.2 Eksponentiaalinen hajoamislaki

Radioaktiiviset lähteet sisältävät usein erittäin suuren määrän ytimiä, joten lähteen aktiivisuus voidaan määrittää hyvinkin tarkasti huolimatta hajoamisen satunnaisuudesta. Kun hajoamistodennäköisyyttä tarkastellaan lyhyellä aikavälillä ( $t, t + dt$ ), saadaan yhden hajoamisen todennäköisyydelle arvo  $\lambda dt$ . Ytimien lukumäärän  $N(t)$  muutokselle  $dN(t)$  saadaan puolestaan lauseke  $dN = -\lambda N dt$  eli

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N. \quad (1)$$



Jos ytimien määrä hetkellä  $t = 0$  on  $N_0$ , saadaan differentiaaliyhtälön (kaava 1) ratkaisuna ytimien määräksi hetkellä  $t$

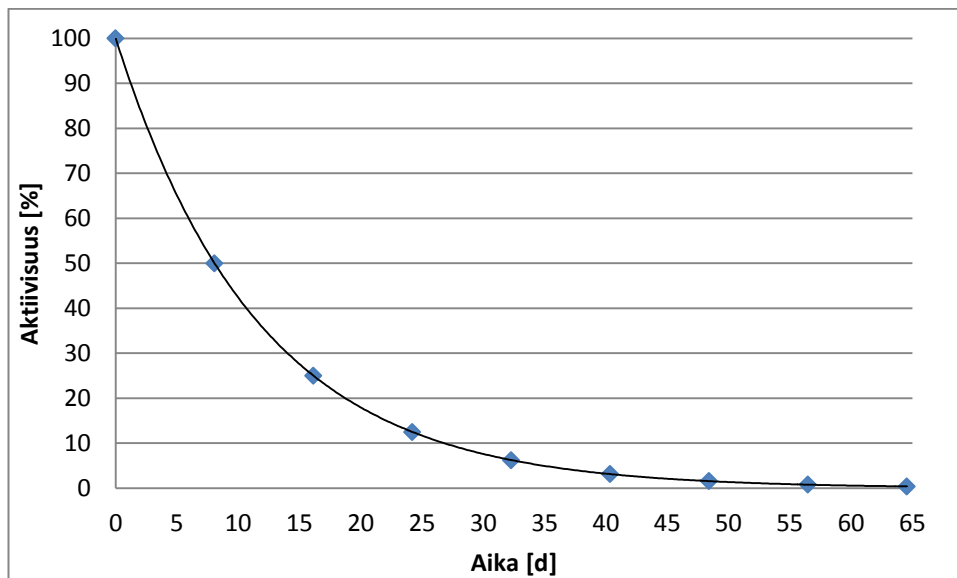
$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}. \quad (2)$$

Kyseisen ainemäärän aktiivisuus  $A(t)$  saadaan hajoamisten lukumääränä aikayksikköä kohti, joka on yhden ytimen hajoamistodennäköisyys aikayksikköä kohti kerrottuna ytimien lukumäärällä

$$A(t) = \lambda N(t) = A_0 e^{-\lambda t}, \quad (3)$$

missä  $A_0 = \lambda N$  hetkellä  $t = 0$ . [7, s. 27–28; 9, s. 8–10.]

Radioaktiivisen näytteen eksponentiaalista hajoamista on havainnollistettu kuvassa 1. Näytteenä olevan  $^{131}\text{I}$  puoliintumisaika on 8,07 vuorokautta. Hajotessaan se muuttuu ksenonin stabiiliksi isotoopiksi  $^{131}\text{Xe}$ . Kuvaajan pisteet on merkitty välein, jolloin on kulunut aina yksi puoliintumisaika.



Kuva 1.  $^{131}\text{I}$ :n aktiivisuuden pieneneminen ajan funktiona.

Puoliintumisajan ja hajoamisvakion välinen yhteys voidaan ratkaista kaavan 3 avulla. Kun kaavaan sijoitetaan ajan tilalle yksi puoliintumisaika ( $t = T_{1/2}$ ) ja aktiivisuudeksi puoliintumisajan määritelmän mukaan  $A(t) = 0,5A_0$ , saadaan

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}. \quad (4)$$

Aktiivisuuden eksponentiaalinen väheneminen koskee kerrallaan vain yhtä radionuklidia. Jos lähteessä on useampia eri nuklideja, noudattaa jokaisen nuklidin aktiivisuus erikseen eksponentiaalista hajoamislakia. [7, s. 27–28; 9, s. 8–10.]

Mittauksissa käytettyjen näytteiden aktiivisuuskorjaukset laskettiin kaavalla

$$A = 2A_0 \frac{t}{T_{1/2}}, \quad (5)$$

missä  $A$  on aktiivisuus mittaushetkellä,  
 $A_0$  on aktiivisuus näytteen referenssihetkellä,  
 $t$  on kulunut aika näytteen referenssipäivästä ja  
 $T_{1/2}$  on näytteen puoliintumisaika.

Aktiivisuuskorjauskaava on johdettavissa edellä esitetyistä kaavoista.

### 2.3 Ionisoiva säteily

Ionisoiva säteily on joko hiukkas- tai sähkömagneettista säteilyä. Hiukkassäteilyä ovat alfa-, beeta- ja neutronisäteily, kun taas sähkömagneettista säteilyä on esimerkiksi gammasäteily. Säteilyn tunkeutumiskyky ja vaikutus väliaineeseen riippuu säteilyn lajista ja energiasta sekä väliaineen laadusta. Taulukossa 1 on esitetty eri säteilylajien ominaisuuksia. Edetessään väliaineessa hiukkasen nopeus hidastuu ja osa hiukkasen energiasta siirtyy väliaineeseen. Hiukkassäteilyn havaitseminen perustuu tähän ilmiöön. Sähkömagneettinen säteily on puolestaan välillisesti ionisoivaa säteilyä, mikä tarkoittaa,

että vuorovaikuttaessaan väliaineen kanssa syntyy ionisoivia sekundäärihiukkasia. Sähkömagneettisen säteilyn ja aineen välisiä vuorovaikutuksia on kuvattu luvussa 2.7. [10, s. 20; 9, s. 6.]

Taulukko 1. Säteilylajien ominaisuuksia. [10, s. 20.]

Laji	Varaus	Suhteellinen lepomassa	Tyypillinen energia [MeV]	Keskimääräinen matka	
				ilmassa	vedessä
$\alpha$	+2e	4	3–9	2–10 cm	20–40 $\mu\text{m}$
$\beta$	-e	0,0005	0–3	0–10 m	0–15 mm
n	0	1	0–10	0–100 m	0–1 m
$\gamma$	0	0	0,01–10	0,01–100 m	0,1–10 cm

#### 2.4 Alfahajoaminen ja $\alpha$ -säteily

Alfahajoamisen yhteydessä emittoituu alfahiukkasia, jotka ovat heliumytimiä. Heliumatomin ydin koostuu kahdesta protonista ja kahdesta neutronista. Tytärynuklidilla on siis  $\alpha$ -hajoamisesta johtuen kaksi yksikköä pienempi varausluku ja neljä yksikköä pienempi massaluku kuin emonuklidilla. Seuraavassa on esimerkki  $\alpha$ -hajoamisesta, jossa uraani-238 hajoaa torium-234 ja  $\alpha$ -hiukkaseksi. [11, s. 24.]



Kevein tunnettu  $\alpha$ -aktiivinen nuklidi on cerium-142. Tätä raskaammilla nuklideilla  $\alpha$ -hajoaminen on yleistä. Väliaineen jarrutuskyky alfahiukkasille on paljon suurempi kuin samanenergisisille beetahiukkasille, koska  $\alpha$ -hiukkasen massa ja varaus ovat suuremmat kuin beetahiukkasella.  $\alpha$ -hiukkaset kulkevat ilmassa vain muutamia senttimetrejä ja pelkkä paperiarkki pysäyttää hiukkaset täysin. [7, s. 20; 12, s. 3.]

#### 2.5 Beetahajoaminen ja $\beta$ -säteily

Beetahajoamisessa ytimen varaus muuttuu, mutta massaluku ei muutu. Ydin siirtyy alempaan energiatilaan lähettämällä beetahiukkasen. Beetahiukkaset kulkevat ilmassa muutamia metrejä ja pysähtyvät ohueen alumiinilevyyn tai ihon pintakerrokseen. Beeta-

hajoaminen voi tapahtua spontaanisti kolmella eri tavalla.  $\beta^-$ -hajoamisessa yksi ytimen neutroni hajoaa protoniksi ja elektroniksi, joita sanotaan  $\beta$ -hiukkasiksi radioaktiivisen hajoamisen yhteydessä. Vastamuodostunut protoni jää ytimeen, kun taas elektroni sinkoutuu ulos  $\beta^-$ -säteilynä. Tytärytimellä massaluku säilyy samana ja järjestysluku on yhtä suurempi kuin emoytimellä. Lisäksi syntyy antineutriino. Tämä hiukkanen on välttämätön liikemäärän ja energian säilymisen kannalta. [12, s. 3; 13, s. 418–420.]



$\beta^+$ -hajoamisessa yksi ytimen protoneista hajoaa neutroniksi ja  $\beta^+$ -hiukkasiksi eli positroniksi.  $\beta^+$ -hajoamisen yhteydessä esiintyy myös sähkömagneettista annihilaatiosäteilyä, kun positroni kohtaa elektronin. Positroni on negatiivisesti varautunut elektronin antihhiukkanen. Näiden hiukkasten yhtyessä niiden lepomassa muuttuu yleensä kahdeksi annihilaatiosäteilyn kvantiksi, jotka sinkoutuvat vastakkaisiin suuntiin. Lisäksi reaktiossa syntyy neutriino. Koska emoytimeistä poistuu positiivinen varaus, tytärytimen järjestysluku on yhtä pienempi kuin emoytimen. [12, s. 3; 13, s. 418–420.]



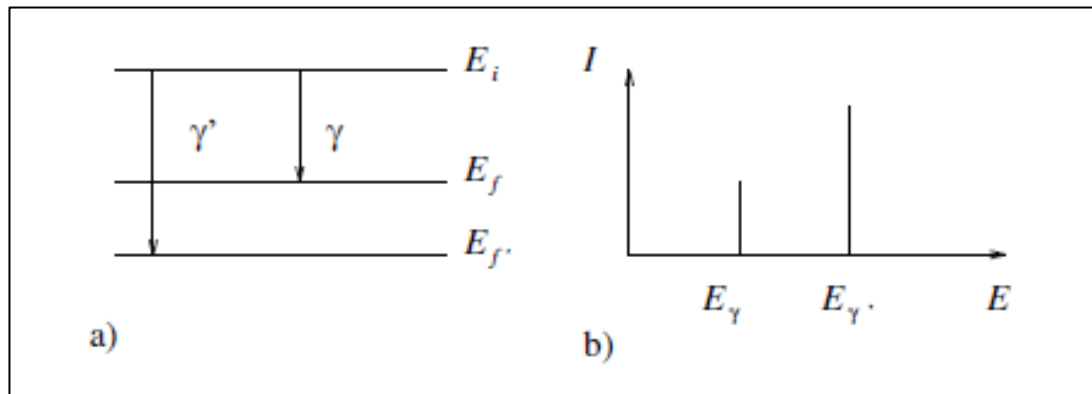
## 2.6 Gammasäteily

Gammasäteilyssä ei liiku hiukkasia vaan gammasäteily on sähkömagneettista aaltoliikettä. Kun atomin ydin on virittyneessä tilassa, voi se purkautua sähkömagneettisena säteilynä eli gammasäteilynä. Gammakvantin (fotonin) energian  $E_\gamma$  suuruus vastaa viritystilan purkautumisessa vapautunutta kahden energiatilan erotusta

$$E_\gamma = h\nu = E_i - E_f, \quad (9)$$

missä  $E_i$  on alkutilan energia ja  $E_f$  on lopputilan energia,  $h$  on Planckin vakio ( $6,6261 \cdot 10^{-34}$  Js =  $4,1357 \cdot 10^{-15}$  eVs) ja  $\nu$  on säteilyn taajuus. Gammakvantin havaitseminen perustuu tähän viritystilan purkautumiseen. Usein samasta lähtötilasta on mahdollista siirtyä monelle eri tilalle. Tämän takia havaitut gammasäteilyn intensiteetit ovat verrannollisia vastaavien siirtymien todennäköisyyksiin. Kuvan 2 kohdassa a) näkyy,

kuinka lähtötilasta voidaan siirtyä kahdelle eri tilalle, ja kohdassa b) on vastaavien energiasiirtymien intensiteetit (todennäköisyydet). [12, s. 3; 14, s. 1; 9, s. 6.]



Kuva 2. Gammasiirtymiä kuvattuna a) energiatilojen ja b) energian intensiteetin avulla. [14, s. 1.]

## 2.7 Vuorovaikutusilmiöt

Gammakvanttien (fotonien) tärkeimmät vuorovaikutustavat materian kanssa ovat valosähköinen ilmiö, Compton-sironta ja parinmuodostuminen. Valosähköinen ilmiö (fotosähköilmiö) on tärkein vuorovaikutus pienillä energioilla  $0,01 \text{ MeV} < E_\gamma < 0,5 \text{ MeV}$ . Valosähköisessä ilmiössä fotonin luovuttaa koko energiansa atomin elektronille. Tästä seuraa, että elektroni sinkoutuu ulos atomista ja saa liike-energiäkseen fotonin energian, josta on vähennetty elektronin sidosenergia. Fotonin energian saanutta elektronia sanotaan fotoelektroniksi. [7, s. 44–46; 14, s. 3.]

Compton-sironta on vallitseva ilmiö energia-alueella  $0,1 \text{ MeV} < E_\gamma < 10 \text{ MeV}$ . Compton-sironnassa fotonin ja vapaa elektroni törmäävät, jolloin fotonin menettää vain osan energiastaan elektronille (comptonelektroni) ja loppu jää fotoniksi (comptonkvantti). Fotonin energiamenteyksen määrä riippuu siroavan fotonin energiasta ja sirontakulmasta (fotonin etenemissuunnan muutoksesta). Comptonin ilmiö on huomattava hajasäteilyn syy röntgen- ja gammasäteilyn lähteiden ympäristössä. [7, s. 47; 15, s. 12; 14, s. 3.]

Parinmuodostuminen on tärkein vuorovaikutus, kun fotonin energia  $E_\gamma$  on suurempi kuin  $10 \text{ MeV}$ . Fotonin energian tulee olla suurempi kuin  $2m_e c^2 = 1,022 \text{ MeV}$  ( $m_e$  on elektronin massa ja  $c$  on valonnopeus tyhjiössä), jotta parinmuodostuminen on mahdollista. Ytimen voimakenttään joutunut fotonin häviää, jolloin sen energiasta syntyy elekt-

roni ja positroni. Kyseiset hiukkaset saavat energiakseen fotonin energiasta lepomassojen synnyttämisen jälkeen ylijääneen osan  $E_\gamma - 2m_e c^2$ . Tavallisimmin tämä energia jakaantuu tasan kummallekin hiukkaselle. Positroni häviää elektronin kanssa annihilaatiossa. Kyseisessä tapahtumassa syntyy kaksi annihilaatiokvanttia, joiden molempien energiat ovat 0,511 MeV. [7, s. 47; 14, s. 3.]

### 3 Gammaskpektrometria

#### 3.1 Johdanto

Gammaskpektrometrisillä menetelmillä tutkitaan radioaktiivisten näytteiden koostumusta ja aktiivisuutta. Menetelmän tehokkuus perustuu siihen, että gammaskäteilyä lähettävien nuklidien aktiivisuudet voidaan määrittää yhdellä mittauksella. Jokaisella radionuklidilla on sille ominainen gammaskäteilyn energajakautuma, joten näytteen radioaktiiviset nuklidit voidaan identifioida rekisteröimällä ja analysoimalla niiden lähettämää gammaskäteilyä. [7, s. 139.]

Gammaskpektrometreissa käytetään säteilyilmaisimia. Säteilyilmaisimen toiminta perustuu siihen, että ilmaisimessa oleva aine on vuorovaikutuksessa säteilyn kanssa. Säteily menettää energiaansa vuorovaikutuksessa, jolloin väliaineen atomeja virittyy. Säteily tuottaa myös lämpöä, joka voidaan havaita ilmaisimilla. Kun ilmaisimissa havaitsee aineessa syntyviä muutoksia, voidaan havainnot muuttaa mitattavaan muotoon signaalinkäsittelyjärjestelmän avulla. Säteilyilmaisimet voidaan jakaa karkeasti kahteen luokkaan: ilmaisimiin, joissa esimerkiksi ionit tai elektronit saavat aikaan virran ilmaisimen elektrodien välille, ja ilmaisimiin, joissa säteilyn aiheuttaman viritystilän purkautuminen synnyttää valoa. Ilmaisimet voidaan jakaa myös kahteen ryhmään niiden antaman informaation mukaan. Signaali-ilmaisimissa laskee hiukkasten, kvanttien ja säteilypulssien määrää sekä laatua, kun taas ratailmaisimella saadaan esiin hiukkasen tai säteen kulkemata. [7, s. 116.]

Ilmaisimet, joissa ionit, elektronit ja aukot kehittävät virran elektrodien välille, ovat joko kaasutäytteisiä tai kiinteitä aineita, tavallisesti puolijohdemateriaalia. Valoa synnyttävän ilmaisimen ilmaisinkide voi olla esimerkiksi epäorgaanista ainetta, johon on lisätty pieni määrä epäpuhtausatomeja, tuikeainetta. [7, s. 116.]

#### 3.2 Tuikeilmaisimien

Kun epäorgaaniseen kiteeseen lisätään epäpuhtausatomeja, kiteeseen syntyy energiatasoja, joiden ansiosta luminesenssi voi tapahtua. Luminesenssilla tarkoitetaan ilmiötä, jossa esimerkiksi atomi palaa alemmalle energiatasolle, jolloin ylimääräinen energia

vapautuu valona. Säteilyn havaitseminen perustuu väliaineen atomien virittymiseen. Kun virittynyt atomi palaa perustilaansa, se lähettää vastaanottamansa energian näkyvän valon tai ultraviolettifotonin muodossa. Esimerkkinä epäorgaanisesta fotonilmaisimesta olkoon natriumjodidikide, joka on aktivoitu talliumilla (NaI(Tl)). Natriumjodidikide on hyvin yleisesti käytetty fotonisäteilyn tuikeilmaisin. Tuikeilmaisimen kide on optisesti kytketty valomonistinputkeen. Tutkittava säteily aiheuttaa skintillaattorissa (tuikeaineessa) valovälähdyksiä, jotka puolestaan irrottavat fotoelektrodeja valomonistimen katodilta. Sekä tuikeaine että valomonistin on suojattava valolta. [7, s. 124; 10, s. 22–23.]

Toimiakseen tuikeaineena aineella tulee olla tietynlaisia ominaisuuksia. Aineen tiheyden on oltava tarpeeksi suuri, jotta säteilyn absorptiotodennäköisyys on riittävä. Epäorgaanisten tuikeaineiden suuri tiheys tekee niistä sopivia gammasäteilyn ilmaisulle. Absorptiota seuraavan luminesenssin tulee olla tarpeeksi voimakas ja tämän lisäksi tuikeaineen on oltava läpinäkyvä tälle valolle. Valomonistinputken herkkyysalueen tulee vastata emittoituvan valon aallonpituutta. [7, s. 123.]

### 3.3 Valomonistinputki

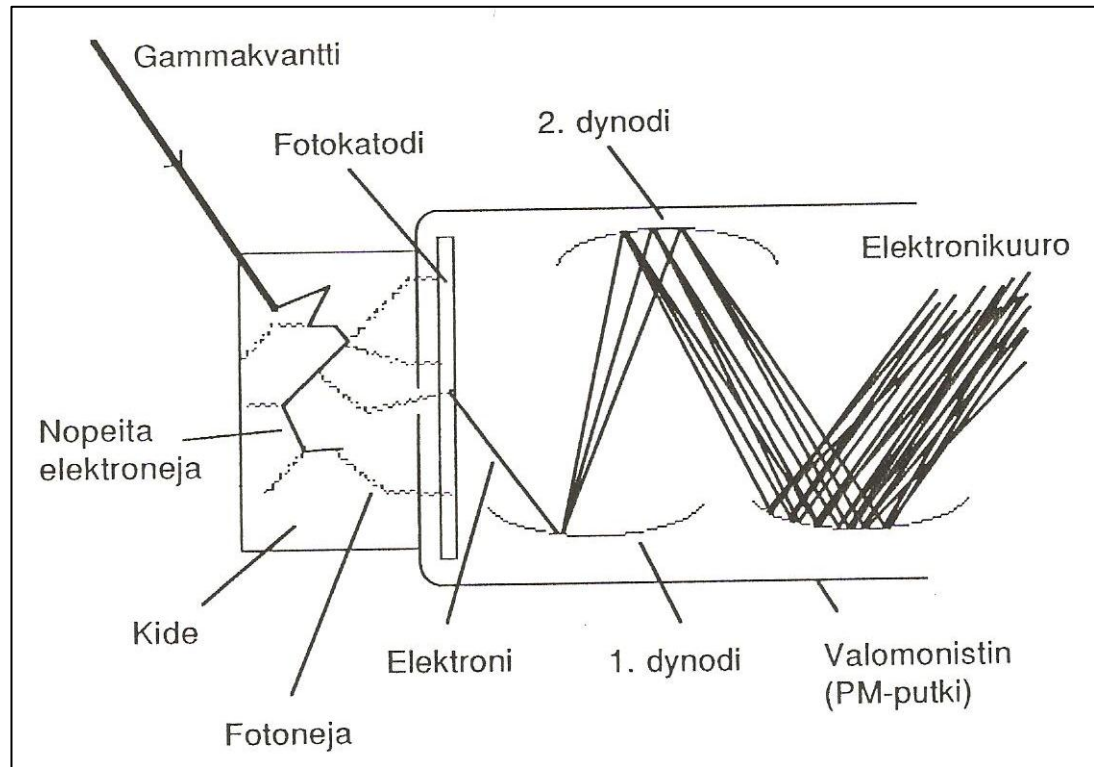
Fotonit ohjataan tuikeaineesta valomonistinputken fotokatodille, joka on puoliläpäisevää materiaalia. Fotokatodi emittoi elektroneja, kun valo osuu siihen. Elektronit kiihdytetään noin 1 000 voltin jännitteellä valomonistinputkessa sarjalla elektrodeja (dynodit), joita on 10–14 kappaletta. Jännitteellä saadaan elektronit kulkemaan haluttuun suuntaan fotokatodilta anodille. Kun elektrodi osuu dynodiin, emittoituu siitä paljon uusia elektroneja. Määrä siis moninkertaistuu jokaisella dynodilla, minkä johdosta katodilta dynodisarjan kautta anodille kulkeutuvien elektronien määrä lisääntyy noin miljoonakertaiseksi. Anodille saapuva elektronipulssi on verrannollinen tuikeaineeseen osuneen fotonin energiaan. Monistuskerroin  $M$  määritetään kaavalla

$$M = AkV_d^{0,7n}, \quad (10)$$

missä  $A$  on aineesta riippuva vakio,  $k$  katodin konversiokerroin eli yhtä katodille osuvaa fonia kohti emittoituneiden elektronien lukumäärä,  $V_d$  peräkkäisten dynodien välinen jännite ja  $n$  dynodien lukumäärä. Jännitelähteen on oltava hyvin stabiili, sillä kaavasta



10 nähdään, että monistuserroin riippuu suuresti dynodiin välisestä jännitteestä  $V_d$ . Kuvassa 3 on havainnollistettu tuikeilmäiskiteeseen tulevan gammakvantin vaikutusta ja fotokatodista irronneen elektronin monistumista valomonistinputkessa. [7, s. 125; 11, s. 20.]

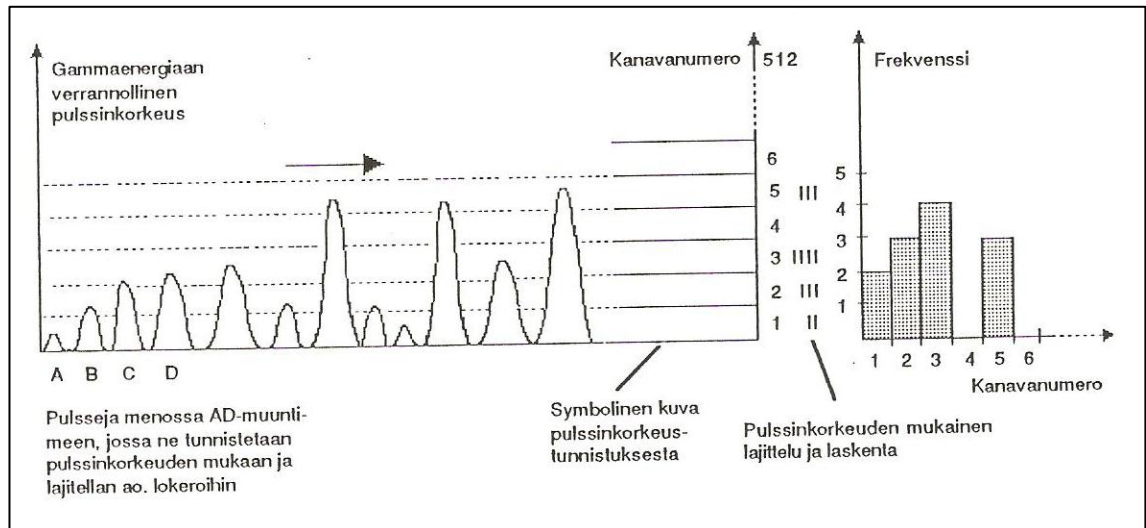


Kuva 3. Tuikeilmäisimen ja valomonistinputken toimintaperiaate [11, s. 20].

### 3.4 Pulssinkorkeusanalysaattori

Kun ilmaisimesta saatu heikko virtapulssi on ensin varausherällä esivahvistimella muutettu jännitepulssiksi, se johdetaan vahvistimeen. Vahvistimelta pulssit siirretään pulssinkorkeusanalysaattoriin (analogia-digitaalimuunnin). Analysaattori lajittelee jännitesignaalit pulssikorkeuden eli energian suuruuden mukaan eri kanaviin. Kanavat on numeroitu nousevan pulssikorkeuden mukaan ja näin kanavanumero on verrannollinen gammaenergiaan. Kuvassa 4 on havainnollistettu pulssinkorkeusanalysaattorin toimintaa. Kuvasta nähdään, että vasemmalta tuleva gammaenergiaan verrannollinen pulssi A tulee lasketuksi kanavaan 1 (oikealla), pulssi B kanavaan 2 ja pulssit C ja D kanavaan 3. Näin saadaan gammakvanttien lajittelusta aikaan histogrammi, joka näkyy kuvassa oikealla. Histogrammi esittää vastaavien gammaenergioiden jakaumaa, koska pulssi-

korkeus on verrannollinen gammaenergiaan. Tästä syystä saatua histogrammiesitystä voidaan kutsua energiaspektriksi. Ennen kuin saadaan selville, mitä energiaa tietty kanava paikka vastaa, täytyy tehdä energiakalibrointi laitteistolle. Energiakalibroinnista on kerrottu kohdassa 3.9.1. [11, s. 21.]



Kuva 4. Pulssikorkeusanalysointoriin tulevien jännitesignaalien lajittelu spektriin. [11, s. 21.]

### 3.5 Natriumjodidi-gammaspektrometri

Natriumjodidi-gammaspektrometrilaitteisto on suunniteltu radioaktiivisten lähteiden ja näytteiden lähettämän gammasäteilyn havaitsemiseen ja mittaamiseen. NaI-gammaspektrometrilla mitataan esimerkiksi elintarvikenäytteitä, kuten marjat, viljat, sienet ja kuivattu kala. Laite soveltuu myös hyvin laskeumatilanteen jälkivaiheeseen, kun säteilyn aiheuttamia vaikutuksia arvioidaan. Laitteen detektorina on NaI-tuikemaisiin ja valomonistinputki. Detektorin ympärillä on lyijysylinteri, jonka tarkoituksena on pienentää taustasäteilyn osuutta. Kun heikko virtapulssi on vahvistettu jännitepulssiksi, johdetaan pulssi vahvistimeen, jossa sitä muokataan ja vahvistetaan. Analogia-digitaalimuunnin, eli pulssinkorkeusanalysointori, kääntää pulssien korkeudet vastaavaksi digitaaliseksi informaatioksi, jota tietokonepohjainen ohjelma edelleen muokkaa. Energia-alue, jota gammaspektrometrilaitteisto mittaa, on jaettu sarjaksi yhtä leveitä energiavälejä, kanavia. Mittauksissa käytettävä gammaspektrometri (kuva 5) käyttää 1024-kanavaista analogia-digitaalimuunninta. Muokkaamalla pulsseja voidaan parantaa lähekkäisten pulssien erottelukykyä ja tehdä pulsseista vakiomuotoisia. [7, s. 142–143; 11, s. 2–3, 21.]



Kuva 5. Työssä käytettävä NaI-gammaspektrometri (vasemmalla) ja mittauksissa käytetty 320 millilitran näytenpurkkigeometria (oikealla).

### 3.6 Näytteen valmistus

Gammaspektrometrillä mitataan suoraan näytteen aktiivisuutta. Nuklidien määrän mittaamiseen on myös menetelmiä, jotka eivät perustu säteilymittauksiin. Isotooppien määrän mittaamista voidaan käyttää esimerkiksi massaspektrometrillä määrittämistä, jossa isotooppien määrää mitataan niiden massaluvun mukaan. Gammaspektrometrinen määrittäminen perustuu suureksi osaksi näytteenottoon ja näytteen sisältämien radioaktiivisten aineiden mittaamiseen. Tästä johtuen näytteen edustavuudella on erittäin tärkeä rooli mittauksen onnistumisen kannalta. [7, s. 138–139.]

Gammaspektrometriin mittauksiin tarvittavan näytteen määrä on usein paljon suurempi kuin esimerkiksi kemialliseen määrittämiseen tarvittavan näytteen määrä. Mikäli mitattu näyte ei edusta tutkittavaa asiaa hyvin, on mahdollista, että analyysin tulos voi olla jopa väärä. Näytteenotosta aiheutuva epävarmuus voi olla moninkertainen mittausmenetelmän epävarmuuteen nähden. Tästä johtuen näytteenotto on suunniteltava kutakin tarkoitusta varten erikseen ja huolellisesti. Kvalitatiivinen analyysi voidaan

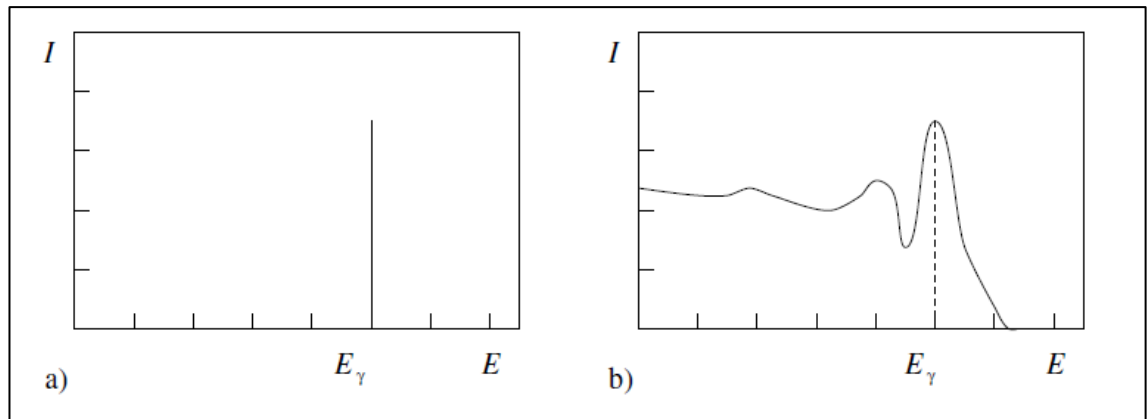
usein tehdä niin, että tutkittavia alkuaineita ei tarvitse erottaa muusta näytteen materiaalista. Analyysi voidaan tehdä jopa kokonaan ilman näytteen valmistusta tai esikäsitteilyä. Kvantitatiivisissa mittauksissa homogeenisuus on sen sijaan erittäin tärkeää. Näyttemateriaalissa olevien analysoitavien aineiden on oltava tasaisesti jakaantuneena. [7, s. 138–139.]

Ympäristönäytteissä on yleensä alhainen aktiivisuustaso eivätkä radioaktiiviset aineet ole jakaantuneet tasaisesti tutkittavaan aineeseen. Ennen mittauksia on näyte konsentroitava, jotta mahdollisimman paljon radioaktiivista materiaalia saadaan kalibroituun näytetilavuuteen ja mahdollisimman lähelle ilmaisinta. Erilaisia konsentroidintimenetelmiä ovat esimerkiksi kuivaus ja poltto sekä nestemäisten näytteiden haihdutus ja ioninvaihto. Mittauksissa käytettiin esimerkiksi maidosta haihdutettua jauhetta. Näitä konsentroidintimenetelmiä käytettäessä on huolehdittava näytteen homogeenisuudesta sekoittamalla ja siitä, että näytteen aineet saattavat haihtua osittain tai kokonaan käsittelyn aikana. Mikäli näytettä ei pystytä konsentroidimaan tarpeeksi, on sitä varten kehitetty Marinelli-astia, jossa näyttemateriaali saadaan mahdollisimman lähelle ilmaisinta. Astia ympäröi sekä sylinterimuotoisen ilmaisimen vaippaa että päätä. Mittauksissa käytetty näytenpurkin geometria näkyy kuvassa 5. [7, s. 139–140.]

Näytteen tiheydellä ja määrällä on suuri merkitys säteilyn mittauksessa. Kevyt tai paljon väliainetta sisältävä säteilyn lähde, kuten sorainen maa-aines, ei juuri absorboi lähettämäänsä säteilyä, vaan gammakvantti pääsee etenemään aineessa jopa satoja metrejä. Tiheä ja painava lähde taas absorboi lähettämäänsä säteilyä, mikä voi vaikuttaa mittaustuloksiin. [1.]

### 3.7 Spektrin muodostuminen ja tulkinta

Gammaspektriä sanotaan käyrää, joka kuvaa säteilyn intensiteetin jakautumista erienergistien kvanttien tai hiukkasten kesken. Kuvassa 6 on esimerkki ideaalisen ilmaisimen antamasta gammaspektristä (a) ja kokeellisen mittauksen antamasta todellisesta gammaspektristä (b), jossa esiintyy eri vuorovaikutuksista ja taustasta aiheutuva säteilyä. [14, s. 2.]



Kuva 6. a) Teoreettinen gammaspektri lähteelle, joka lähettää vain tiettyä energiaa (monospektri) ja b) vastaava kokeellisesti havaittu spektri. [14, s. 2.]

Spektrissä piikin paikka ilmaisee gammakvantin energian. Piikin pinta-ala on puolestaan verrannollinen kvanttien määrään ja siten näytteessä olevan radioaktiivisen aineen aktiivisuuteen. Piikin pinta-ala määritetään laskemalla piikkiin kuuluvissa kanavissa olevien pulssien määrä. Kun monoenerginen gammaspektri absorboituu ilmaisimeen, tapahtuu useita eri vuorovaikutuksia. Eri vuorovaikutukset näkyvät usein gammaspektrissä ja ne hankaloittavat spektrin tulkintaa. Seuraavassa on esitetty muutamia tavallisimpia ilmiöitä, jotka on tunnettava tulkittaessa mitattuja spektrejä.

- Ilmaisimessa syntyneiden varausten lukumäärän tilastollisesta vaihtelusta johtuen kokonaisabsorptiopiikin muoto on lähellä normaalijakaumaa. Tämä vastaa ideaalisen spektrin yhtä viivaa. Piikin leveyttä kasvattaa myös elektronisten komponenttien aiheuttama kohina. Kohinaa aiheuttavat pulssin muokkaus- ja vahvistuslaitteet sekä itse ilmaisinkide.
- Comptonin ilmiössä fotonin siroaa löyhästi sitoutuneesta elektronista, jonka sidosenergia on paljon pienempi kuin fotonin energia. Fotonin menettämä energia siirtyy elektronin liike-energiaksi. Sironnakulma ja fotonin alkuperäinen energia vaikuttavat energiamenetyksen suuruuteen. Energiamenetyks on suurimmillaan eli fotonin luovuttaa suurimman mahdollisen määrän energiaa takaisinsironnassa, jolloin sironnakulma on  $180^\circ$ . Tätä vastaava jakauman kohta on muuta Compton-aluetta korkeampi, niin sanottu Compton-reuna.

- "Compton-häntä" on alue 0 keV ja Compton-reunan välissä. Alue muodostuu, kun fotonin luovuttaa energiansa kahdessa tai useammassa peräkkäisessä Compton-vuorovaikutuksessa, mutta viimeinen siroava fotonin karkaa kiteestä.
- Annihilaatiokvantit aiheuttavat parinmuodostumisesta aiheutuvat pakopiikit 511 keV kohdalle. Kvantit ovat muodostuneet kiteessä positronin annihiloitumisessa. Annihilaatiosta kerrotaan luvussa 2.7.
- Taustan aiheuttama säteily. Taustamittauksilla voidaan määrittää spektrometrin havaitsema pulssijakauma, joka aiheutuu näytteen ympäristön säteilystä. Taustasäteily on otettava huomioon laitteen kalibroinnissa. Taustan säteilylähteitä voivat olla esimerkiksi taustasuojassa, ilmaisimessa tai mittaustilan ilmassa olevat radioaktiiviset aineet. Lisäksi taustasäteilyyn vaikuttaa kosmisen säteilyn vuorovaikutus ilmaisimen ja sitä ympäröivän materiaalin kanssa.
- Jos mitattavasta lähteestä emittoituu kaksi gammakvanttia samanaikaisesti, on mahdollista, että molemmat absorboituvat ilmaisinkiteeseen. Tässä tapauksessa kiteessä syntyy summapulssi, joka on yhtä suuri kuin yksittäisten fotonien aiheuttamien varausten summa. [7, s. 47, 144–147, 151; 14, s. 3–4.]

### 3.8 MAJAVA-ohjelmisto

Työn mittaukset tehtiin STUKissa Javalla kehitetyllä MAJAVA-ohjelmistolla. Samalla ohjelmistolla tehtiin myös spektrien analysointi ja aktiivisuuksien laskenta. MAJAVA-ohjelmisto käyttää mitatun spektrin analysointiin STUKissa kehitettyä aMuFi-kirjastoa. Se etsii spektristä piikit, analysoi niiden pinta-alat ja laskee niiden perusteella löydetyille nuklideille aktiivisuudet. aMuFi tallettaa kaikki tulokset MySQL-pohjaiseen Linssi-tietokantaan. [1.]

#### 3.8.1 Piikkianalyysi

Piikkien etsintä aMuFilla tehdään niin sanotuille ROI (Region Of Interest) -alueille, jotka käyttäjän täytyy ohjelmalle etukäteen kertoa. Koko spektri voidaan analysoida joko

yhdessä osassa tai jaettuna useampiin ROI-alueisiin. Tässä työssä spektri oli jaettu noin 6 eri ROI-alueeseen.

Käyttäjän täytyy määrittää etukäteen ROI-alueista etsittävät piikit. Jos ROI-alueessa on piikki, jota ohjelma ei tunnista, jää se myös analysoimatta. Menetelmä soveltuu sellaisten näytteiden analysointiin, joiden radioaktiivisuudesta on etukäteen jonkinlainen tuntemus.

Ohjelma sovittaa gaussiset piikit pienimmän neliösumman menetelmällä ROI-alueeseen etukäteen kerrottujen piikkien kohdille. Ohjelma sovittaa piikkejä mitattuun spektriin kunnes se löytää ongelmaan matemaattisesti parhaan ratkaisun. Lopuksi se palauttaa löydettyjen piikkien pinta-alat ja niiden epävarmuudet ja tallentaa ne Linssi-tietokantaan. [1.]

### 3.8.2 Aktiivisuuslaskenta

Kun aMuFi on tehnyt piikkianalyysiin, jatkaa ohjelma aktiivisuuslaskennalla. Aktiivisuuslaskuja varten aMuFi tarvitsee tehokkuuskalibroinnin (kohta 3.9.2). Ohjelma hakee tietokantaan talletetun tehokkuuskalibroinnin ja piikkianalyysivaiheessa tietokantaan talletetut piikkien pinta-alat ja niiden hajoamistodennäköisyydet. Niiden avulla ohjelma laskee jokaiselle piikille aktiivisuuden huomioiden hajoamiskorjauksen. Lopuksi aMuFi tallettaa tulokset tietokantaan. [1.]

## 3.9 Laitteiston kalibrointi

### 3.9.1 Energiakalibrointi

Analysointia varten tulee gammaspektrometri kalibroida. Ensin on määritettävä energiakalibroinnilla gammasäteilyn energian ja sitä vastaavan spektrometrin muistipaikan eli kanavan välinen yhteys. Tutkittava energia-alue, käytössä olevien kanavien lukumäärä ja vahvistimen asetukset vaikuttavat gammasäteilyn ja spektrometrin yhteyteen. Energiakalibrointi tehdään sopivien, tunnettujen nuklidien avulla. Sopivalla tarkoitetaan, että nuklidin lähettämä gammaenergia kattaa energia-alueen, jota tutkitaan. Spektrillä esiintyvän piikin paikka kanava-asteikolla voidaan määrittellä joko sovittamalla pisteisiin

normaalijakauma tai piikin pinta-alan painopisteenä. Yhteys energian ja kanavan välillä saadaan, kun sovitaan mittauspisteisiin funktio. Valomonistimelta tulevan signaalin amplitudi on käytännössä lineaarisesti verrannollinen siihen energiaan, jonka kyseessä oleva gammakvantti on jättänyt ilmaisimeen. Näin ollen usein riittävä tarkkuus saavutetaan sovittamalla mittauspisteisiin suoran yhtälö. [7, s. 147–148; 11, s. 11.]

### 3.9.2 Tehokkuuskalibrointi

Tehokkuuskalibroinnissa on tarkoitus selvittää spektriin rekisteröityjen pulssien määrän suhde lähteessä syntyneiden fotonien määrään. Tehokkuuteen vaikuttavat muun muassa fotonin energia, ilmaisimen ominaisuudet ja vuorovaikutukset näytteessä sekä näytteen ja ilmaisimen välisessä aineessa. Mittausgeometria vaikuttaa myös tehokkuuteen: näytteen koko, muoto ja sijainti. Tästä syystä sekä kalibrointilähde että tutkittava näyte on mitattava samassa geometriassa. Ilmaisimen tehokkuutta voidaan kuvailla monilla eri suureilla, joista tärkeimmät ovat piikki- ja kokonaistehokkuus. [7, s. 148; 11, s. 14.]

Piikkitehokkuus kuvaa tietyn energisen fotonin rekisteröitymistä kyseistä energiaa vastaavaan fotopiikkiin eli sitä, miten suuri osuus kiteeseen osuvista fotoneista absorboituu ja rekisteröityy juuri kyseistä energiaa vastaavaan fotopiikkiin. Piikkitehokkuus  $\varepsilon_p$  määritetään yhtälöstä

$$\varepsilon_p(E) = \frac{N_p}{R}, \quad (11)$$

missä  $N_p$  on fotopiikin, energialla  $E$ , pulssimäärä ja  $R$  on fotopiikin lähteen mittausajassa emittoimien fotonien lukumäärä, joilla on sama energia  $E$ . [7, s. 148]

Kokonaistehokkuudella  $\varepsilon_t$  puolestaan kuvataan todennäköisyyttä sille, että lähteen emittoima fotoni tulee yleensäkin rekisteröidyksi. Kokonaistehokkuus fotonin energialla  $E$  saadaan yhtälöstä

$$\varepsilon_t(E) = \frac{N_t}{R}, \quad (12)$$



missä  $N_t$  on pulssien kokonaismäärä, jonka kyseessä oleva energia tuottaa spektriin. [7, s. 148]

Piikkitehokkuus  $\varepsilon_p$  saa tämän työn mittauksissa seuraavan muodon:

$$\varepsilon = \frac{A_{cnt}}{A_{cons} \gamma t}, \quad (13)$$

missä  $A_{cnt}$  on nuklidin energiapiikin pinta-ala pulssimääränä,  
 $A_{cons}$  on nuklidin aktiivisuus,  
 $\gamma$  on hajoamistodennäköisyys ja  
 $t$  on mittausaika. [1.]

Tässä työssä puhuttaessa tehokkuudesta tarkoitetaan piikkitehokkuutta ja sen tunnuksena on  $\varepsilon$ . Tehokkuus siis kuvaa ilmaisimen kykyä rekisteröidä nuklidin gammasäteilyä suhteessa sen aktiivisuuteen ja mittausaikaan. Samalle nuklidille pitäisi siis tulla yhtä suuri tehokkuus huolimatta nuklidin aktiivisuuden suuruudesta. Toisin sanoen kun pinta-ala  $A_{cnt}$  on suuri, aktiivisuus  $A_{cons}$  on myös suuri. Tehokkuuden yksiköksi saadaan [ $\varepsilon$ ] = 1/(Bq·s).

Hajoamistodennäköisyys (yield-kerroin,  $\gamma$ ) on todennäköisyys sille, että nuklidin hajoessa se lähettää gammakvantin sille ominaisella energialla. Esimerkiksi  $^{137}\text{Cs}$ :n hajoamistodennäköisyys energialla 661,7 keV on 0,851 (85,1 %). Näin ollen 85,1 prosenttia  $^{137}\text{Cs}$ :n gammasiirtymistä 661,7 keV kohdalla tulee havaituksi ja siksi käytetään korjauskerrointa. [1.]

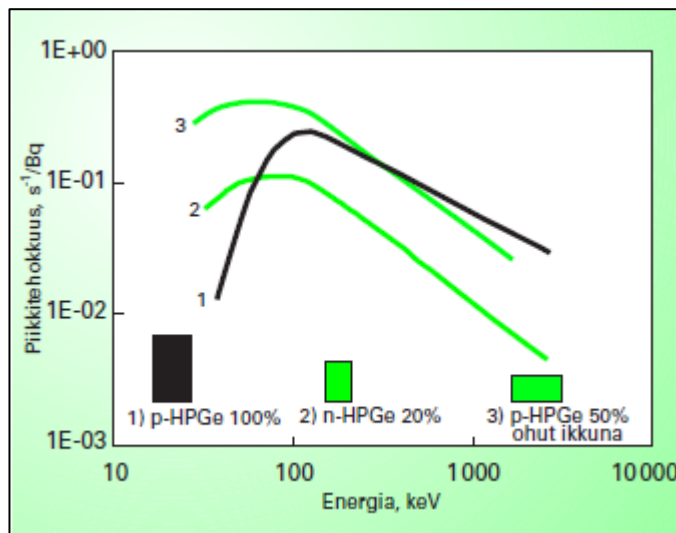
Standardinäytteen tehokkuuslaskussa ei huomioitu näytteen massaa, joten tähän näytteeseen liittyvissä laskuissa käytettiin kaavaa 13 ja aktiivisuuden yksikkönä oli Bq. Muissa mittauksissa näytteiden massat huomioitiin, koska aktiivisuuden yksikkönä oli Bq/kg. Näiden tehokkuudet lasketaan kaavalla 14, joka eroaa kaavasta 13 siltä osin, että näytteen massa on huomioitu ja käytetyt aktiivisuuden arvot on suhteutettu näytteen massaan.

$$\varepsilon = \frac{A_{cnt}}{\gamma A_{cons} tm}, \quad (14)$$

missä  $m$  on näytteen massa.

Tehokkuuden yksikkö  $[\varepsilon] = 1/(\text{Bq}\cdot\text{s})$  on sama kuin kaavassa 13.

Kuvassa 7 on esitetty kolmen erilaisen germaniumilmaisimen havaitsemistehokkuudet energian funktiona. Ilmaisimen muoto vaikuttaa havaitsemistehokkuuteen. Tehokkuuskäyrä on logaritmiasteikolla muodoltaan lähes suora, kun energia on yli 150 keV. Pie-nemmillä energioilla fotonin havaitsemistehokkuus heikkenee nopeasti. Näytteenä on ympyränmuotoinen levy, jonka halkaisija on 42 millimetriä. Näyte on suoraan ilmaisimen päällä. Germaniumilmaisimet ovat puolijohdeilmaisimia, joissa muodostuu säteilyn ja aineen vuorovaikutuksen seurauksena elektroni-aukkopareja. Kyseiset varaukset kerätään sähkökentän avulla virtapulssiksi. Pulssin suuruus on suoraan verrannollinen absorboituneeseen energiaan. Työssä käytettävän natriumjodidi-ilmaisimen tehokkuuskuvaaja on muodoltaan samankaltainen, mutta käyrän paikka on luonnollisesti ilmaisimen erilaisten ominaisuuksien johdosta eri kohdassa. [7, s. 147–149.]



Kuva 7. Kolmen erilaisen ilmaisimen havaitsemistehokkuudet energian funktiona. [7, s. 149.]

### 3.10 Monte Carlo -simulointi

Ilmaisimien kalibroimiseksi on kehitetty laskennallisia menetelmiä, sillä kokeelliset kalibroinnit ovat usein hyvin työläitä. Laskennallisissa menetelmissä havaitsemistehokkuus lasketaan ilmaisimen ja lähteen geometristen tekijöiden sekä absorptio- ja siron- taominaisuuksien avulla. Laskennallisena menetelmänä voidaan käyttää esimerkiksi Monte Carlo -simulointia. Kalibroinnin tarkkuus riippuu siitä, kuinka hyvin ilmaisim ja kaikki muut rakenteet pystytään mallintamaan. [7, s. 150–151.]

Monte Carlo -simuloinnilla yritetään mallintaa tehokkuuskäyrää halutulla energia- alueella. Tehokkuuskalibroinnin kokeellisia mittaustuloksia voidaan verrata Monte Carlo -simuloinnilla saatuun tehokkuuteen. Mittauksilla todetaan, soveltuuko simuloinnin an- tama malli todellisuudessa saatuihin tuloksiin.

## 4 Validointi

### 4.1 Johdanto

Mittausmenetelmän validointi on tärkeä toimenpide analyysin antamien tulosten luotettavuuden kannalta. Käytännössä validointi on joukko ennalta hyvin suunniteltuja testejä. Testien tulokset antavat tietoa menetelmän laadusta. Validoinnin laajuus riippuu siitä, onko menetelmä täysin uusi vai halutaanko vain muuttaa menetelmän jotain tiettyä tekijää. [16, s. 23; 17, s. 25.]

### 4.2 Mittausepävarmuus

Mittausepävarmuus on mittaustulokseen liittyvä parametri, joka kuvaa mittaussuureen arvojen oletettua vaihtelua. Parametrina voi olla esimerkiksi keskihajonta. Mittausepävarmuus muodostuu yleensä useista osista. Mittausepävarmuuksia tarvitaan, kun halutaan esimerkiksi vertailla eri yksiköiden mittaustuloksia keskenään. Lisäksi mittausepävarmuuden avulla voidaan päätellä, onko mittaustuloksen tarkkuus riittävä esimerkiksi jonkun päätöksenteon kannalta. Mittausepävarmuus kuvaa määrällistä arviota niistä rajoista, joiden sisäpuolella mittaustulosten oletetaan olevan tietyllä todennäköisyydellä. [17, s. 18–19.]

Standardiepävarmuudet  $S$  eli otoskeskihajonnat on laskettu kaavalla

$$S(x_i) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n-1}}, \quad (15)$$

missä  $x_i$  on mitattu arvo  
 $\bar{x}$  on mitattujen arvojen keskiarvo  
 $n$  on mittausten lukumäärä.

Suhteelliset standardiepävarmuudet saadaan kaavalla

$$RSD = \frac{S(x_i)}{\bar{x}}. \quad (16)$$

#### 4.3 Toistettavuus

Mittaustulosten toistettavuudella kuvataan saman mitattavan suureen peräkkäisten mittaustulosten paikkansapitävyyttä. Mittaukset on luonnollisesti suoritettava samoissa mittaolosuhteissa. Toistuvuusolosuhteet ovat sellaiset, joissa lyhyellä aikavälillä saadaan samoista testauskohteista toisistaan riippumattomia testaustuloksia saman tekijän toimesta käyttäen samaa laitteistoa samassa laboratoriossa. Toistettavuus määritetään tekemällä useita rinnakkaismittauksia erityyppisistä näytteistä eri pitoisuuksilla. Toistettavuutta kuvaava parametri on suhteellinen standardiepävarmuus ilmoitettuna prosentteina. [16, s. 27–28; 17, s. 37.]

$$RSD\% = \frac{S(x_i)}{\bar{x}} \cdot 100\%. \quad (17)$$

#### 4.4 Uusittavuus

Menetelmän uusittavuudella tarkoitetaan sitä täsmällisyyttä, joka saavutetaan, kun mittaukset tehdään samasta näytteestä, samalla menetelmällä, eri laitteistolla, eri laboratoriossa ja eri henkilön toimesta. Laboratorion käyttämän menetelmän sisäistä uusittavuutta voidaan tutkia tekemällä samasta näytteestä useita määryksiä pitkän ajan kuluessa. [17, s. 37]

#### 4.5 Luottamusväli

Virheetömiä mittaustuloksia ei ole olemassa ja mittaustulosten keskiarvo on aina tarkempi kuin yksittäinen mittaustulos. Yhtenä lukuna annettu mittaustulos on puutteellinen, sillä oikeiden johtopäätösten tekeminen edellyttää useimmiten tietoa myös mittaustarkkuudesta. Tästä johtuen tulos voidaan ilmoittaa niin sanottuina luottamusväleinä eli tulokseksi annetaan väli, jolla oikea arvo on tietyllä todennäköisyydellä. Useimmiten

tulokset ilmoitetaan joko 95 tai 99 prosentin luottamusvälillä. Seuraavaksi esitetyt laskukaavat (kaavat 18–19) pätevät, kun mittaustulosten oletetaan olevan likimain riippumattomia ja normaalisti jakautuneita. [18.]

Kun keskihajonnan arvo perustuu pienehköön mittaussarjaan, sitä pidetään tuntemattomana ja sille saadaan estimaatti normaalilla otoskeskihajonnan laskukaavalla (kaava 15). Luottamusväliä arvioitaessa voidaan käyttää Studentin t-jakaumaa, joka muistuttaa muodoltaan normaalijakaumaa, mutta jonka hännät ovat leveämmät. Toisin sanoen todennäköisyys saada odotusarvosta enemmän poikkeavia tuloksia on suurempi kuin mittauksissa, joissa on käytetty suurta mittaussarjaa. Itse laskukaava perustuu siihen, että riippumattomista normaalisti jakautuneista mittauksista  $x_1, x_2, \dots, x_n$  laskettu suure

$$t = \frac{\bar{x} - \mu}{S/\sqrt{n}}, \quad (18)$$

missä  $\bar{x}$  on mittausten keskiarvo,  
 $\mu$  on mittausten odotusarvo,  
 $S$  on estimoitu keskihajonta ja  
 $n$  on mittausten lukumäärä,

noudattaa t-jakaumaa vapausastein  $n - 1$ . T-jakauma lähestyy normaalijakaumaa, kun otoskoko  $n$  kasvaa. T-jakauman arvoja löytyy taulukoista.

Luottamusvälin  $(1-\alpha) \cdot 100$  % ala- ja yläraja saadaan kaavasta

$$\bar{x} \pm t_{1-\alpha, n-1} \frac{S}{\sqrt{n}}. \quad (19)$$

[19; 18.]

#### 4.6 Kokonaisepävarmuus

Mittausten kokonaisepävarmuutta arvioidaan pienimmän neliösumman menetelmällä. Ensiksi arvioidaan, mitkä osatekijät ( $x_i$ ) vaikuttavat epävarmuuteen. Tämän jälkeen lasketaan osatekijöiden epävarmuuksien suuruudet. Kokonaisepävarmuus lasketaan kaavalla

$$x_{err} = \sqrt{\sum_{i=1}^n x_i^2}, \quad (20)$$

missä  $x_{err}$  on kokonaisepävarmuus ja

$x_i$  on osatekijän suhteellinen epävarmuus. [1.]

Lisäksi voidaan arvioida niin sanottujen systemaattisten virheiden osuutta. Systemaattinen virhe voi syntyä esimerkiksi käytetystä mittalaitteesta tai mittausmenetelmästä. Jos systemaattinen virhe havaitaan, voidaan se mahdollisesti korjata esimerkiksi kalibroimalla mittalaite uudestaan. Mikäli systemaattisen virheen korjaaminen ei ole mahdollista tai järkevää, on virhe otettava huomioon kokonaisepävarmuuslaskuissa. [1.]

#### 4.7 Havaitsemisraja

Mittalaitteen herkkyydestä puhuttaessa voidaan tarkoittaa esimerkiksi laitteen kykyä erottaa säteilyn tasoa tai radioaktiivisen aineen määrää, joka voidaan mitata tai havaita jollakin tietyllä todennäköisyydellä. Tärkeimmät parametrit, jotka vaikuttavat säteilyn havaitsemiseen, ovat mitattavan nuklidin taustasäteilyn määrä, mittalaitteen havaitsemistehokkuus ja mittausaika. [20.]

Kaksi tärkeää parametria mittaustilanteessa, jossa ilmaisimen havaitsema taustasäteily on suurempi kuin nolla, ovat kriittinen taso ( $L_C$ ) ja havaitsemisraja ( $L_D$ ). Kriittinen taso on ilmaisimen havaitsema säteilyn määrä, joka voidaan olettaa olevan taustasäteilyä suurempi (yksikkönä säteilypulssien kappalemäärä). Havaitsemisraja on ilmaisimen havaitsema säteilyn määrä, joka voidaan havaita ilmaisimella tietyllä todennäköisyydellä (yksikkönä myös säteilypulssien kappalemäärä). [20.]

Olettaen, että taustan säteily on otettu huomioon ja satunnaiset sekä systemaattiset epävarmuudet on otettu huomioon erikseen, edellä mainitut parametrit voidaan laskea käyttämällä Poisson-jakaumaa. 95 prosentin luottamusvälillä parametrit  $L_C$  ja  $L_D$  voidaan määrittää yhtälöistä

$$L_C = 2,33 \cdot B \quad (21)$$

$$L_D = (3 + B) \cdot 4,65, \quad (22)$$

missä  $B$  on taustan säteily eli analyysiohjelman arvioima gammapiikin pinta-alan epävarmuus. [20.]

Nämä yhtälöt pätevät vain tämän työn mittauksissa. Pienin havaittava konsentraatio (MDC) saadaan edellisestä yhtälöstä kertomalla  $L_D$  kertoimella  $C$ , jolla tuloksen yksikkö saadaan muutettua kappalemäärästä konsentraatioon esim. Bq/kg. Yhtälö on muotoa

$$MDC = C \cdot L_D, \quad (23)$$

Todellinen laitteiston havaitsemistehokkuuden selvittäminen ei ole välttämättä niin suoraviivainen kuin yhtälö 23 antaa ymmärtää. Todennäköisesti ainakin yksi kertoimeen  $C$  vaikuttavista tekijöistä on jossain määrin muuttuva. Tässä työssä kaavoissa 21 ja 22 esiintyvä taustasäteily  $B$  on todellisuudessa yksikössä Bq/kg, joten muuntokerrointa  $C$  ei tarvita ja siksi  $MDC = L_D$ . [20.]

On parempi yliarvioida havaitsemisraja mittauslaitteistolle, kuin että se jäisi liian pieneksi. Ideaalitulanteessa havaitsemisrajojen arvot tulisi laskea jokaiseen tilanteeseen erikseen, mutta esimerkiksi taloudellisista syistä johtuen voi olla parempi tyytyä taustan korkeimpaan arvoon ja käyttää tätä kaikissa mittauksissa. [20.]



## 5 Mittaukset

### 5.1 Gammaspекtrometrin kalibrointi

Natriumjodidikide on erittäin herkkä lämpötilan vaihtelulle. Siksi spektrometrilaitteisto on kalibroitava aina ennen mittausten aloittamista. Mittauksissa käytetty gammaspекtrometrilaitteisto kalibroitiin cesium-näytteellä.  $^{137}\text{Cs}$ -nuklidilla on fotopiikki 661,7 keV kohdalla. Lämpötilan vaihtelusta johtuvan virheen takia laitteisto ei havaitse fotopiikkiä kyseisen energian kohdalla, vaan piikki havaitaan hieman pienemmällä tai suuremmalla energialla. Kalibrointi säätää havaitun fotopiikin oikealle kohdalle. Tuikeilmaisimen energianerotuskyky on huomattavasti heikompi kuin esimerkiksi puolijohdeilmaisimen. Havaitut fotopiikit ovat siis leveitä. Cesium-137-nuklidin gammasiirtymän energian pulssin leveys on noin 7 prosenttia (46 keV) itse pulssin energiasta (661,7 keV). Puolijohdeilmaisimilla energianerotuskyky on alle prosentin [1.]

### 5.2 Energiakalibroinnin tekeminen

Energiakalibrointi suoritettiin näytteellä, jonka lähettämät gammakvanttien energiat tunnettiin. Taulukossa 2 on esitetty energiakalibroinnissa käytetyn näytteen tiedot.

Taulukko 2. Energiakalibroinnissa käytetyn näytteen referenssipäivä, massa ja neljän nuklidin aktiivisuudet painoyksikköä kohden.

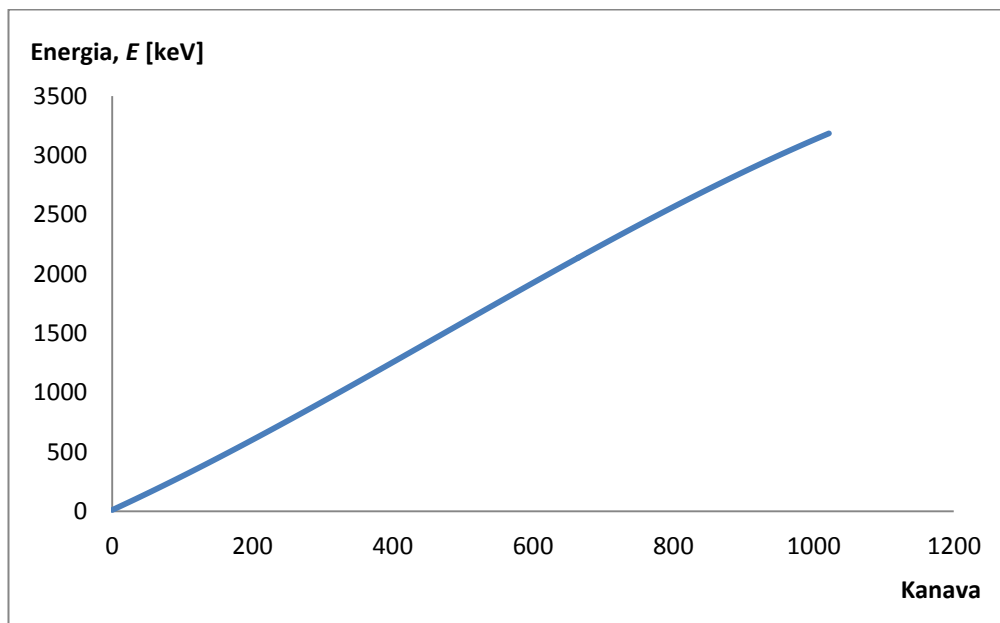
nimi	Control Sample nro 28
referenssipäivä	1.3.2003
massa [kg]	0,456
nuklidi	massa-aktiivisuus, $\alpha$ [Bq/kg]
Cs-137	870 $\pm$ 90
Ra-226	750 $\pm$ 75
Th-232	920 $\pm$ 920
K-40	2770 $\pm$ 280

Energiakalibrointi aloitettiin asettamalla muovinen, tiivis näyteastia (kuva 5) lyijysuojan sisälle natriumjodidi-ilmaisimen päälle ja lyijysuojan kansi suljettiin. Suoritettiin tarvittavat toimenpiteet tietokonepohjaisella mittausohjelmalla ja mitattiin näytettä 20 minuutin ajan. Saadusta spektristä tunnistettiin näytteelle ominaiset gammapiikit, joille

haettiin spektristä vastaavat kanavapaikat. Pisteparien perusteella ohjelma määrittä energiakalibroinniksi kolmannen asteen polynomin, joka on muotoa  $E = a_0 + a_1x + a_2x^2 + a_3x^3$ . Lopullinen yhtälö kertoimineen oli

$$E = 11,841 + 2,725x + 0,001346x^2 - 9,53 \cdot 10^{-7} x^3, \quad (24)$$

missä  $E$  on kanavapaikkaa vastaava energia [keV] ja  $x$  on kanavapaikan numero.



Kuva 8. Energiakalibroinnilla saatu energian ja kanavapaikan välinen riippuvuus.

### 5.3 Tehokkuuskalibroinnin tekeminen

Tehokkuuskalibrointiin käytettiin standardikalibrointilähdettä, johon on pinottu radioaktiivisia aineita sisältäviä kerroksia. Standardi sisälsi kaikkiaan kolmeatoista eri nuklidia, joista tehokkuuskalibrointimittauksissa keskityttiin viiteen. Näytteen massa oli 52,84 grammaa. Kalibroinnissa huomioidut nuklidit olivat  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  ja  $^{60}\text{Co}$ . Koboltti-60:llä on gammasiirtymän energiapiikit 1 173 ja 1 332 keV kohdalla, mutta kalibroinnissa keskityttiin suurempienergiseseen piikkiin. Taulukossa 3 on esitetty tehokkuuskalibroinnissa käytetyn standardinäytteen nuklidien tarvittavat tiedot.

Taulukko 3. Tehokkuuskalibroinnin standardinäytteen nuklidien gammasiirtymien energiat, aktiivisuudet referenssipäivänä, puoliintumisaajat sekä hajoamistodennäköisyydet.

Nuklidi	$E_{\text{gamma}}$ [keV]	Aktiivisuus [Bq] 1.6.2010	Puoliintumisaika [d]	hajoamistoden- näköisyys, $\gamma$
<sup>210</sup> Pb	46,5	1 128 ± 28	8 120 ± 100	0,0425
<sup>241</sup> Am	59,5	201,5 ± 2,2	158 000 ± 440	0,359
<sup>109</sup> Cd	88,0	993 ± 20	461,1 ± 2,4	0,037
<sup>137</sup> Cs	661,7	182,1 ± 3,0	10 976 ± 60	0,851
<sup>60</sup> Co	1332,5	204,6 ± 2,2	1 925,2 ± 0,6	1

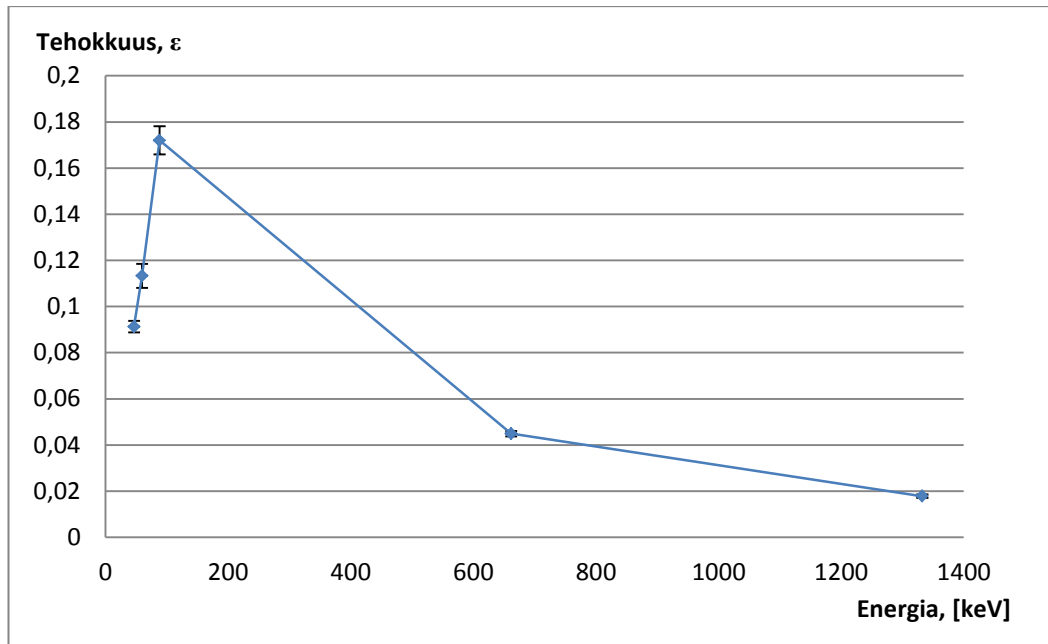
Tehokkuuskalibrointilaskuissa otettiin huomioon kadmiumin ja koboltin aktiivisuuden muutos suhteellisen lyhyen puoliintumisaajan takia. Mittaushetkellä <sup>109</sup>Cd-aktiivisuus oli 405 Bq ja <sup>60</sup>Co-aktiivisuus 165 Bq. Aktiivisuuskorjaukset laskettiin kaavalla 5.

Liitteenä 1 on esimerkki standardinäytteen yhdestä tehokkuuskalibroinnin antamasta mittausdatasta, josta poimittiin nuklidien energiapiikkien pinta-alat. Standardinäytteelle tehtiin viisi mittausa, joiden mittaustuloksista lasketut tehokkuudet näkyvät taulukossa 4. Tehokkuudet laskettiin kaavalla 13. Tuloksista laskettiin keskiarvot sekä otoskeskihajonnat ja -prosentit.

Taulukko 4. Standardinäytteen nuklidien tehokkuuksien mittaustulokset.

nuklidi	Pb-210	Am-241	Cd-109	Cs-137	Co-60
<b>energia [keV]</b>	46,54	59,54	88,03	661,66	1332,49
	<b>tehokkuus [1/(Bq·s)]</b>				
mittaus 1	0,0914	0,1134	0,1796	0,0449	0,0178
mittaus 2	0,0876	0,1166	0,1702	0,0450	0,0180
mittaus 3	0,0903	0,1136	0,1745	0,0446	0,0191
mittaus 4	0,0938	0,1047	0,1728	0,0467	0,0171
mittaus 5	0,0933	0,1181	0,1631	0,0433	0,0171
<b>keskiarvo</b>	0,0913	0,1133	0,1720	0,0449	0,0178
<b>S</b>	0,0025	0,0052	0,0061	0,0012	0,0008
<b>S-%</b>	2,70	4,57	3,53	2,75	4,50

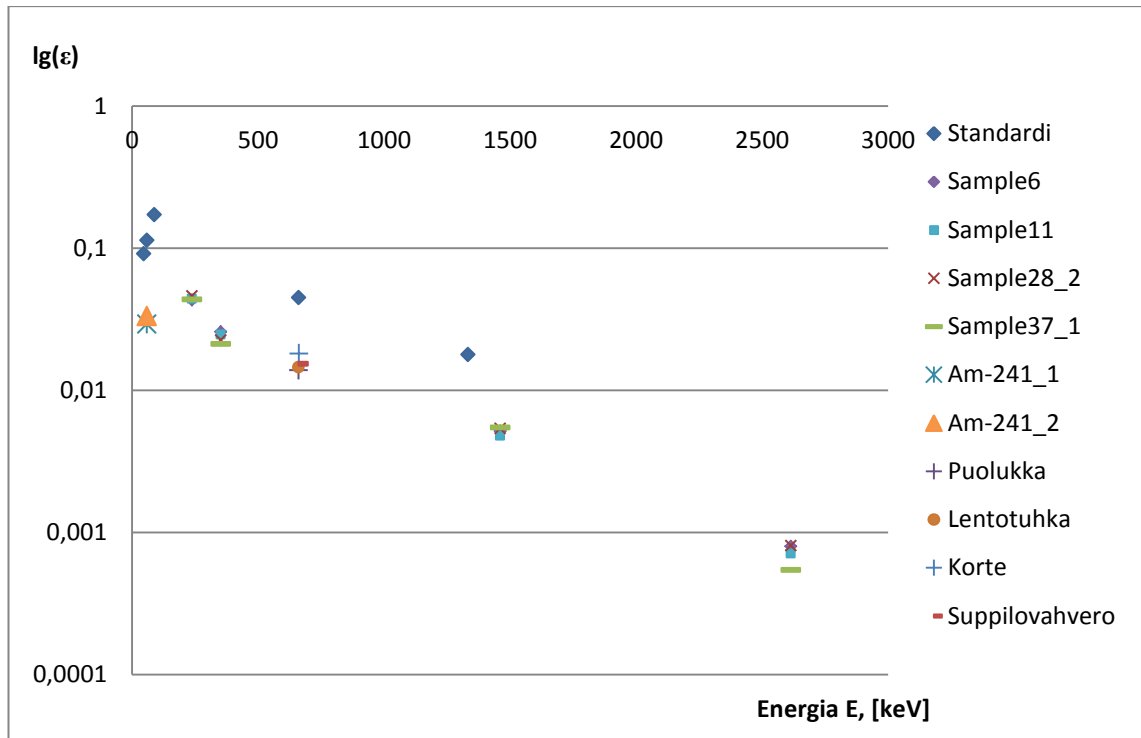
Kuvassa 9 on standardinäytteen tehokkuuskalibrointikuvaaja ja siinä näkyvät mittaus-  
ten otoskeskihajonnat. Pisteiden välille on lisätty murtoviiva havainnollistamaan tehok-  
kuuskäyrän muotoa.



Kuva 9. Standardinäytteen tehokkuudet energian funktiona. Pisteiden välille on lisätty murto-  
viiva havainnollistamaan tehokkuuskäyrän muotoa.

Standardinäytteen ja varsinaisten näytteiden mittausgeometrisista eroista johtuen tehokkuusmittausten tuloksissa on systemaattinen ero. Standardinäytteen tehokkuuden arvot ovat suurempia kuin muiden näytteiden, jotka ovat 320 millilitran muovisissa näyteturkeissa (kuva 5). Seuraavilla mittauksilla, joissa käytetään useita erilaisia näytteitä, saadaan sovitettua tehokkuuskalibrintikäyrä y-akselin suhteen kohdalleen. Tehokkuuskalibrintimittauksia tehtiin kaikkiaan kymmenen kappaletta yhdeksällä eri näytteellä.

Kuvassa 10 on esitetty standardinäytteen ja muiden mitattujen näytteiden gammapiikkien tehokkuudet. Tehokkuus on kuvaajassa logaritmisella asteikolla. Kuvasta nähdään standardinäytteen ja vastaavasti muiden näytteiden mittausgeometriasta johtuva tehokkuuden arvojen ero. Standardinäytteen tehokkuuden arvot ovat suurempia kuin vastaavat muiden näytteiden tehokkuuksien arvot. Liitteenä 2 on taulukko tehokkuusmittauksissa käytetyistä näytteistä. Taulukossa näkyy, mitä nuklideita tietystä näytteestä on tutkittu, nuklidien gammaenergiat ja vastaavat tehokkuudet.



Kuva 10. Standardinäytteen ja muiden mitattujen näytteiden gammapiikkien tehokkuudet. Tehokkuus on kuvaajassa logaritmisella asteikolla.

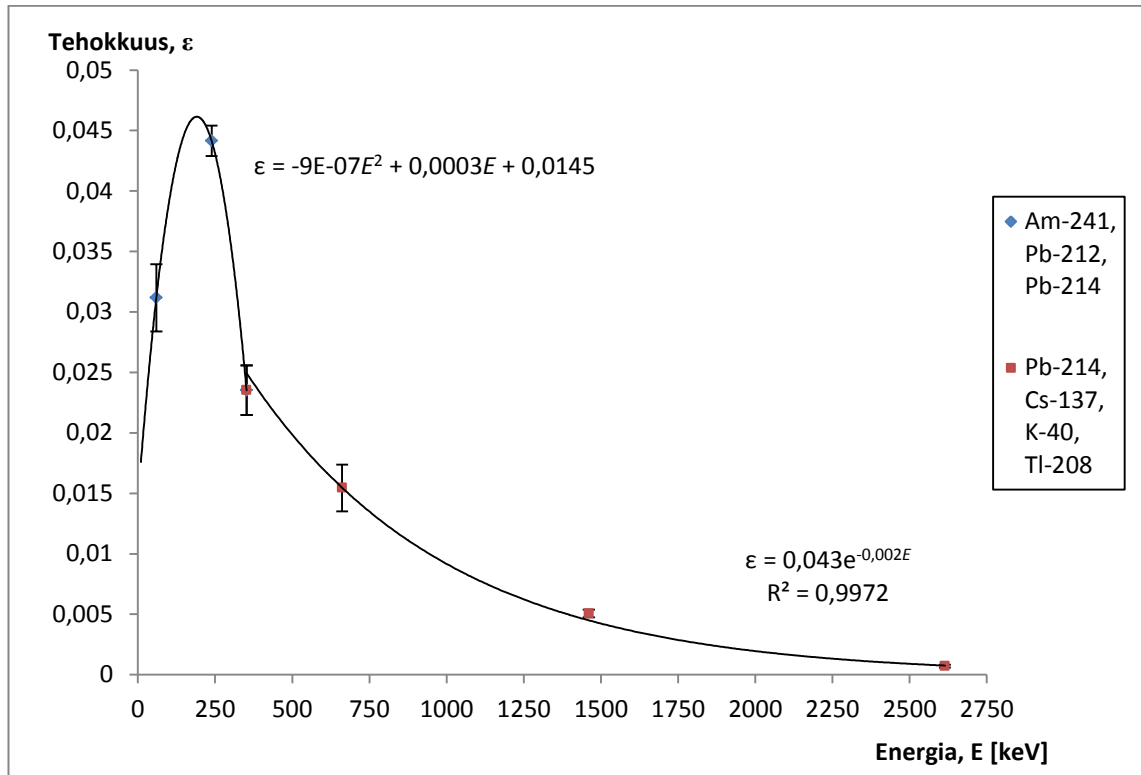
Nuklidien tehokkuuksien keskiarvoihin sovitettiin tehokkuuskalibrointikäyrä (kuva 11), jonka muoto muistuttaa hyvin kuvan 7 tehokkuuskäyriä. Kuvan 11 tehokkuuden arvot eivät ole logaritmisella asteikolla. Matalaenergiisiin gammapiikkeihin (nuklidien  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{212}\text{Pb}$  ja  $^{214}\text{Pb}$ ) sovitettiin toisen asteen polynomi ja suurempienergiisiin piikkeihin eksponentiaalinen yhtälö. Kahden yhtälön yhtymäkohtaan  $^{214}\text{Pb}$  gammaenergian kohdalle (352 keV) tulee pieni epäjatkuvuuskohta. Tätä pyrittiin pienentämään siirtämällä eksponentiaalisen yhtälön alkamisenergiaa 352 keV 300 kiloelektronivolttiin. Natriumjodidi-ilmaisimen havaitsemistehokkuutta, kun gammasäteilyn energia  $E \leq 300$  keV, kuvataan yhtälöllä

$$\varepsilon = -8,70 \cdot 10^{-7} \cdot E^2 + 3,32 \cdot 10^{-4} \cdot E + 1,45 \cdot 10^{-2}. \quad (25)$$

Kun gammasäteilyn energia  $E > 300$  keV, käytetään puolestaan yhtälöä

$$\varepsilon = 0,0430 \cdot e^{-0,00154E}. \quad (26)$$

Saadut energian ja tehokkuuden väliset yhtälöt syötettiin mittausohjelmistoon (Majava). Ohjelmisto laskee nyt mitatuille nuklideille aktiivisuudet yksikössä Bq/kg syötettyjen tehokkuussovitusten (yhtälöt 25 ja 26) avulla. Analyysiohjelmisto laskee gammapiikin pinta-alan  $A_{ctr}$  kun näytteen massa sekä mittausaika tunnetaan.



Kuva 11. Tehokkuuskalibrointikäyrän sovittaminen mittaustulosten keskiarvoihin. Kuvassa näkyy myös mittaustulosten keskihajonnat.

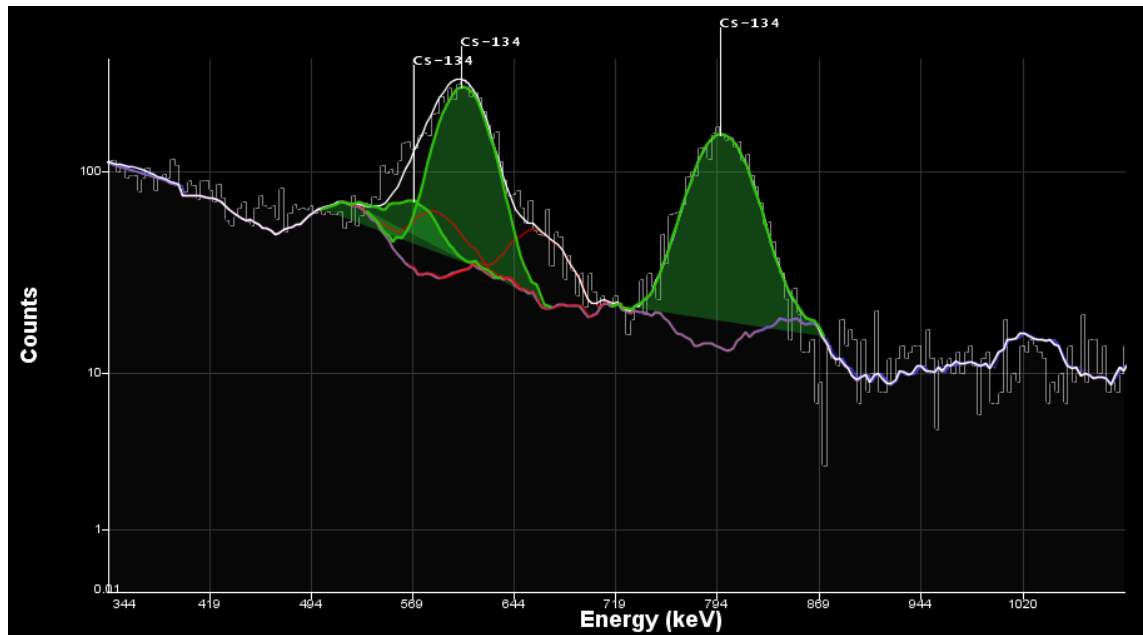
Mittausvirhettä syntyy eniten matalaenergisille gammasiirtymille mittausgeometriasta johtuen. Tästä seuraa, että  $^{241}\text{Am}$ :n,  $^{212}\text{Pb}$ :n ja  $^{214}\text{Pb}$ :n tehokkuuksien mittaustuloksien pohjalta sovitettu toisen asteen yhtälö ei välttämättä kuvaa tehokkuuden suhdetta energiaan yhtä hyvin kuin suurempienerginen eksponentiaalinen sovitus.

## 5.4 Menetelmän validointi

### 5.4.1 Toistettavuus

Mittausten validointi aloitettiin tutkimalla aktiivisuuden mittaustarkkuuden toistettavuutta neljällä eri näytteellä. Näytteet olivat maitojauheita, joihin oli lisätty eri määrät  $^{134}\text{Cs}$ -nuklidia. Näytteissä oli alun perin jo paljon muita nuklideja, mutta erityisesti tarkkailussa oli  $^{137}\text{Cs}$ -nuklidien ja lisätyn  $^{134}\text{Cs}$ -nuklidien lähekkäisten gammasiirtymien tutkiminen. Näytteissä oli likimain saman verran cesium-137:ää, mutta cesium-134:n aktiivisuudet olivat erisuuruisia (taulukko 5).  $^{134}\text{Cs}$ :llä on gammasiirtymät 569,3 ja 604,7 keV kohdalla. Nämä siirtymät osuvat samaan gammapiikkiin  $^{137}\text{Cs}$  661,7 keV ja  $^{208}\text{Tl}$  583,2 keV siirtymien kanssa. Analyysiohjelmiston tulisi osata laskea, kuinka suuri  $^{134}\text{Cs}$  569,3 ja 604,7 keV siirtymien pinta-alojen osuus on edellä mainitusta summapiikistä sillä perusteella, kuinka suureksi ohjelmisto laskee  $^{134}\text{Cs}$  795,9 keV piikin pinta-alan.

Kuvassa 12 on gammaspektri yhdestä maitojauhemitauksesta, jossa näkyy  $^{134}\text{Cs}$ :n piikit. Summapiikissä (vasemman puoleinen piikki) näkyy, kuinka analyysiohjelma on arvioinut  $^{134}\text{Cs}$  piikkien pinta-alojen osuuden summapiikistä, jossa siis esiintyy myös muun muassa  $^{137}\text{Cs}$  ja  $^{208}\text{Tl}$ . Kuvassa näkyy kanavapaikkoihin rekisteröityjen gamma-kvanttien synnyttämä histogrammi.



Kuva 12. Maitojauhenäytteen gammaspektri välillä, jossa näkyy  $^{134}\text{Cs}$  nuklidin gammasiirtymät. Huomioi summapiikin sovitus välillä 500–700 keV.

Mittauksia suoritettiin kaikkiaan 40 kappaletta siten, että jokaisesta neljästä maitojauhenäytteestä tehtiin 10 noin viidentoista minuutin säteilymittausta. Jokaisen mittauksen jälkeen ohjelman mittaus-välilehti suljettiin ennen uuden mittauksen aloittamista. Ohjelmaan syötettiin näytteen nimi ja massa sekä mittausasetuksiin näytteen ja ilmaisimen etäisyydeksi 10 millimetriä ja näytteen geometriaksi 320 millilitran purkki. Majavaohjelmistoa ei suljettu mittausten välissä. Piikkien pinta-alan, mittausajan, näytteen massan ja analyysiohjelmistoon syötetyn tehokkuuskalibrointisovituksen avulla ohjelmisto antaa näytteessä havaituille nuklidien gammasiirtymille aktiivisuudet yksikössä Bq/kg. Jokaisen maitojauhepurkin 10 mittaustuloksesta laskettiin keskiarvot sekä otoskeskihajonnat ja -prosentit. Tulokset näkyvät taulukossa 5. Lisäksi taulukossa 5 näkyy maitojauheiden  $^{134}\text{Cs}$ - ja  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuuksien referenssiarvot yksikössä Bq/kg sekä referenssiarvon ja keskiarvojen välinen suhde.



Taulukko 5. Maitojauhenäytteiden aktiivisuuksien keskiarvot, otoskeskihajonnat ja vertailuna aktiivisuuksien referenssiarvot.

	maitojauhe 1		maitojauhe 2		maitojauhe 3		maitojauhe 4	
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
keskiarvo [Bq/kg]	1018	174	2059	173	900	167	213	190
S [Bq/kg]	41	18	62	22	15	13	21	14
S-%	4	10	3	13	2	8	10	8
referenssiarvo [Bq/kg]	1160	201	2350	243	1020	207	260	207
S [Bq/kg]	70	10	141	12	61	10	16	10
S-%	6	5	6	5	6	5	6	5
ref. arvo/keskiarvo [%]	112	113	111	134	112	120	120	108

Taulukon 5 tuloksista (alin rivi) nähdään, että analyysiohjelma aliarvioi maitojauheiden  $^{134}\text{Cs}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuudet melko systemaattisesti. Tämä ei ole ongelma, sillä poikkeama voidaan korjata tehokkuutta säätämällä (laskemalla tehokkuuden kalibrointikäyrää y-akselin suhteen). Tärkeämpää on se, että laite ja ohjelmisto toistavat tulokset.  $^{134}\text{Cs}$ -aktiivisuuksien toistettavuus on erittäin hyvä ja  $^{137}\text{Cs}$  toistettavuus on kohtalainen.

Maitojauhenäytteessä 2 on suhteessa eniten cesium-134 verrattuna cesium-137:ään. Analyysiohjelma arvioi tässä tilanteessa cesium-137:n pinta-alan selvemmin liian pieneksi (taulukko 5). Analyysiohjelma ei siis kykene erottamaan eri nuklidien piikkejä 500 – 700 keV summapiikissä yhtä hyvin, jos  $^{134}\text{Cs}$ -aktiivisuus on suhteessa paljon suurempi kuin  $^{137}\text{Cs}$ -aktiivisuus.

Maitojauhenäytteissä oli siis nuklideja  $^{134}\text{Cs}$  ja  $^{137}\text{Cs}$  eri suhteissa. Taulukosta 5 nähdään, että kun  $^{134}\text{Cs}$ :ää on näytteessä suhteessa enemmän kuin  $^{137}\text{Cs}$ :ää (maitojauhe 1-3) ovat eri näytteiden otoskeskihajontaprosentit keskenään samaa luokkaa. Maitojauhenäytteessä 4 sen sijaan molempia cesium-nuklideja on samassa suhteessa, jolloin toistomittausten otoskeskihajontaprosentit eroavat muiden näytteiden vastaavista arvoista.

#### 5.4.2 Uusittavuus

Maitojauhemitaukset suoritettiin 1., 8., 9. ja 10. helmikuuta 2012. Liitteenä 4 on kaikkien maitojauhemitaukusten tulokset. Kun verrataan ensimmäisen mittauspäivän

(1.2.2012) ja kolmen seuraavan mittauspäivän tuloksia keskenään, voidaan aktiivisuuden tuloksissa huomata pieni, mutta selkeä ero. Helmikuun ensimmäisen päivän tulokset poikkeavat muista tuloksista siten, että aktiivisuudet ovat hieman suurempia. Tämä nostaa mittausten kokonaiskeskihajontaa hieman.

Uusittavuuden muuttujana oli mittauspäivä, jolloin mittauksen suoritti myös eri henkilö. Mittaushenkilöllä ei katsota olevan vaikutusta tulokseen. Tulosten eroavuus johtuu todennäköisesti analyysiohjelmistoon tehdyistä pienistä muutoksista. Lisäksi mittauksia ennen tehtävässä energiakalibroinnissa on voinut tapahtua pientä virhettä, mikä saattaa johtua esimerkiksi laitteiston jännitteen vaihtelusta. Kalibroitilähteenä käytettävän <sup>137</sup>Cs-lähteen 661,7 keV gammapiikki on periaatteessa kohdallaan, mutta jännitelähteen pieni vaihtelu voi siirtää piikkiä muutaman kanavapaikan verran, ja se riittää jo muuttamaan tulosta. Laitteisto kuitenkin toistaa itseään erittäin hyvin.

#### 5.4.3 Mittausajan vaikutus aktiivisuustuloksiin

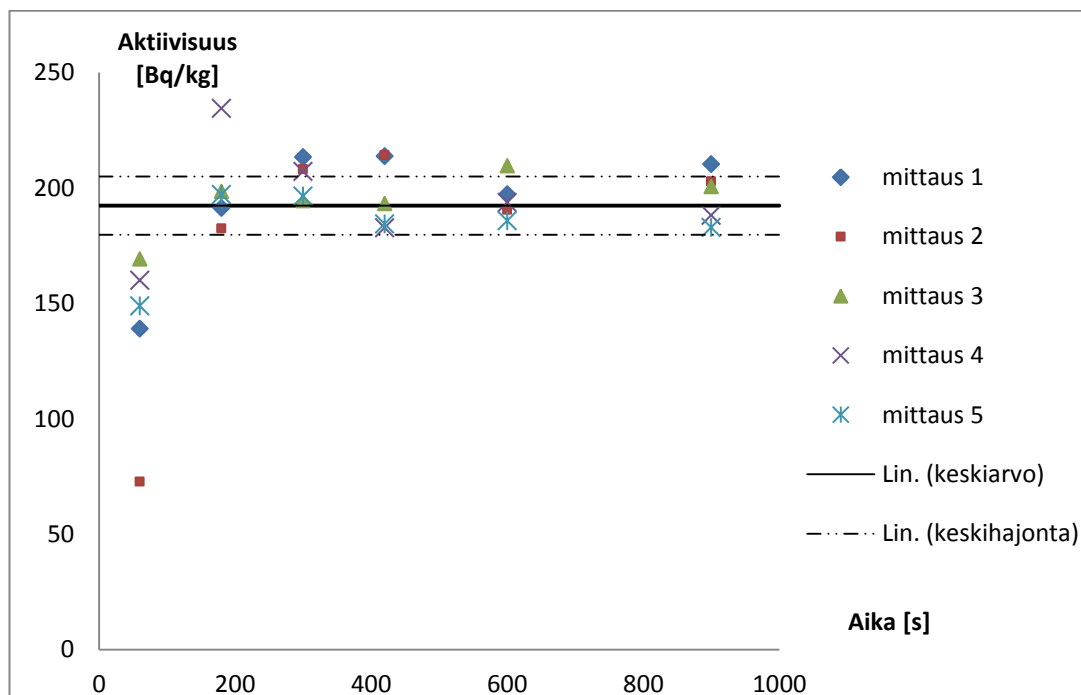
Seuraavissa mittauksissa arvioitiin, kuinka kauan näytettä pitää mitata, että aktiivisuuden mittaustulos olisi riittävän luotettava. Toisin sanoen tehdään mittaussarja, jossa tutkitaan mittausion vaikutusta aktiivisuuden mittauserävarmuuteen. Tässä mittauksessa on hyvä käyttää näytettä, jossa tarkasteltavien nuklidien aktiivisuudet eivät ole liian suuria. Jos aktiivisuus on voimakasta, luotettava mittaustulos saadaan käytännössä ensimmäisen minuutin sisällä, eikä tilastollista vaihtelua tule riittävästi mittausten välillä.

Tehtiin viisi mittausta, joissa otettiin mittaustulokset talteen 1, 3, 5, 7, 10 ja 15 minuutin kohdalla. Mittausta ei tarvinnut keskeyttää vaan tulokset saatiin tallennettua tietokantaan mainittujen ajankohtien kohdilla. Tarvittavat tulokset saatiin tietokannasta mittauksen jälkeen. Mittaustulosten gammaspektriä tutkittaessa huomattiin, että laitteiston energiakalibrointi oli muutaman kanavapaikan väärässä kohdassa. Energiakalibrointikorjauksen jälkeen nähtiin kuitenkin, että korjauksella ei juuri ollut vaikutusta mittaustuloksiin.

Analyysiohjelmisto laski nuklidien aktiivisuudet väärin, mutta tarvittavat tiedot aktiivisuuksien käsin laskemiseksi saatiin mittaustuloksista. Lisäksi ensimmäisen aikamittauk-

sen tulokset jouduttiin hylkäämään, koska ohjelma oli ikään kuin laskenut kahden peräkkäisen mittausajon tulokset yhteen. Tämä huomattiin liian suurina aktiivisuuksina, mikä johtui gammapiikin liian suuresta pinta-alasta.

Liitteenä 3 on aikamittausten tulokset. Kuvassa 13 on viiden mittauksen aktiivisuudet ajan funktiona. Lisäksi kuvassa näkyy mittauksissa käytetyn maitojauheen yhdeksästä 15 minuutin aktiivisuusmittauksesta saatujen tulosten keskiarvo yhtenäisenä viivana sekä katkoviivalla otoskeskihajonnat. Kuvasta nähdään, että 10 ja 15 minuutin aktiivisuustuloksissa on neljä viidestä aktiivisuuden arvosta otoskeskihajonnan sisällä. 7 minuutin mittauksissa kolme ja 5 minuutin mittauksissa vain kaksi mittausta on otoskeskihajonnan sisäpuolella. Tästä voidaan päätellä, että aktiivisuuden määrittämiseksi kohtalaisella tarkkuudella tarvitaan vähintään 10 minuutin, mutta mielellään 15 minuutin mittausaika. Kuvasta voi myös päätellä, että mittausten ensimmäisten minuuttien aikana ohjelma aliarvioi aktiivisuuden ja tällöin myös tilastollinen vaihtelu on suurimmillaan. Tilastollisen vaihtelun selittää radioaktiivisen hajoamisen satunnainen luonne. Mittaustulosten vaihtelu pienenee nopeasti ja on jo lähes vakio viiden minuutin mittauksesta eteenpäin. Maitojauheen sisältämän  $^{137}\text{Cs}$ :n aktiivisuus on noin 200 Bq/kg. Jos mittaus olisi suoritettu tätä aktiivisemmalla nuklidilla, ei tulosten tarkastelu olisi ollut näin selvää, sillä mittausten epävarmuus olisi tasaantunut lyhyemmässä ajassa.



Kuva 13. Mittausajan vaikutus aktiivisuuden mittaustulokseen.

#### 5.4.4 Luottamusväli

Laitteiston mittausepävarmuudelle voidaan arvioida rajoja keskiarvon luottamusvälillä. Maitojauhemittoauksien perusteella todellisen aktiivisuuden arvon voidaan tässä tapauksessa 95 %:n todennäköisyydellä katsoa olevan seuraavanlainen. Taulukossa 6 on maitojauhemittoauksien aktiivisuuden mittoauksitulokset 95 %:n luottamusvälillä arvioituna t-jakauman mukaan.

Taulukko 6. Aktiivisuuksien mittoauksitulokset 95 %:n luottamusvälillä.

	Aktiivisuus [Bq/kg]	
	maitojauhe 1	Cs-134
	Cs-137	174 ± 13
maitojauhe 2	Cs-134	2059 ± 45
	Cs-137	173 ± 16
maitojauhe 3	Cs-134	900 ± 10
	Cs-137	167 ± 9
maitojauhe 4	Cs-134	213 ± 15
	Cs-137	190 ± 10

T-jakauman tulokset on laskettu kaavalla 19, jossa t saa arvon 2,262 vapausastein 9.

#### 5.4.5 Kokonaisepävarmuus

Kokonaisepävarmuuden parametreja arvioitiin ja päädyttiin siihen, että kyseisellä laitteistolla kokonaisepävarmuus aiheutuu suurimmalta osin gammapiikin sovituksen epävarmuudesta pinta-alalle ja referenssimittoauksien tulosten epävarmuudesta. Analyysiohjelma antaa piikin pinta-alalle epävarmuuden, jossa on huomioitu taustan säteily.

Tämän lisäksi epävarmuutta aiheuttaa näytteen punnitus. Näytteen massat on ilmoitettu gramman tarkkuudella ja puntarin virheen voidaan olettaa olevan suhteessa pieni. Näytteen edustavuudella on suuri merkitys aktiivisuuden määrittämisessä. Tässä työssä ei kuitenkaan voida ottaa kantaa, kuinka edustavia näytteet ovat. Tästä syntyvää epävarmuutta ei siis oteta huomioon. Näytepurkin asettelu ilmaisimen päälle ei myöskään aiheuta virhettä, koska purkin voi asettaa ilmaisimen päälle vain yhdellä tavalla.

Kohdassa 5.4.2 todettiin, että laitteisto antaa eriäviä tuloksia aktiivisuudelle, kun mittoauksia maitojauhenäytteille tehtiin eri päivinä. Joudutaan siis arvioimaan mittoauksipäivästä

johtuva systemaattinen epävarmuus. Kyseistä epävarmuutta ei tämän työn aikana lähdetä selvittämään tarkemmin vaan arvioidaan virheelle suuruus.  $^{134}\text{Cs}$ :lle arvioidaan keskimääräiseksi mittauspäivästä johtuvaksi aktiivisuuden epävarmuudeksi 2 prosenttia ja  $^{137}\text{Cs}$ :lle epävarmuudeksi 5 prosenttia. Tulokset on arvioitu aktiivisuuden keskiarvoitulosten vaihtelusta eri mittauspäivien kesken ja tulokset otetaan huomioon arvioitaessa kokonaisepävarmuutta.

Liitteessä 5 on maitojauhenäytteiden cesium-nuklidien toistomittausten gammapiikkien pinta-alat ja alojen epävarmuudet. Lisäksi liitteen toisella sivulla on referenssimittausten aktiivisuuksien epävarmuudet. Kolmantena parametrina kokonaisepävarmuuden määrittämisessä käytetään edellä mainittuja mittauspäivästä johtuvia epävarmuuksia.

Taulukossa 7 on esitetty kokonaisepävarmuuden laskemisessa käytettyjen parametrien epävarmuudet. Kokonaisepävarmuudet on laskettu kaavalla 20.

Taulukko 7. Parametrien epävarmuudet ja kokonaisepävarmuudet.

	maitojauhe							
	1		2		3		4	
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
pinta-ala	0,024	0,108	0,022	0,171	0,024	0,105	0,037	0,056
ref. mittaus	0,06	0,05	0,06	0,05	0,06	0,05	0,06	0,05
mittauspäivä	0,02	0,05	0,02	0,05	0,02	0,05	0,02	0,05
<b>kokonaisepävarmuus</b>	<b>7 %</b>	<b>13 %</b>	<b>7 %</b>	<b>18 %</b>	<b>7 %</b>	<b>13 %</b>	<b>7 %</b>	<b>9 %</b>

Taulukosta nähdään, että cesium-134:n kokonaisepävarmuus on prosentin tarkkuudella sama kaikissa neljässä maitojauhenäytteessä. Tämä johtuu siitä, että analyysiohjelma antaa cesium-134 795,9 keV piikin pinta-alalle lähes saman epävarmuuden kaikissa neljässä näytteessä. Cesium-137:n pinta-alan epävarmuus puolestaan vaihtelee selvästi eri näytteillä ja siksi kokonaisepävarmuuskin vaihtelee 9 ja 18 prosentin välillä.

#### 5.4.6 Havaitsemisraja

Havaitsemisrajan määrittämistä varten tarvitaan analyysiohjelman arvioima piikin pinta-alan epävarmuus. Epävarmuuksille lasketaan aktiivisuudet  $B$  kaavan 14 avulla. Epävarmuuksien aktiivisuudet on laskettu liitteen 5 tuloksista. Mittalaitteiston kriittiset tasot ja havaitsemisrajat eri maitojauhenäytteille laskettiin kaavoilla 21 ja 22. Taulukossa 8 näkyvät keskimääräiset tulokset 15 minuutin toistomittauksille. Yksikkönä on Bq/kg.

Taulukko 8. Maitojauhenäytteiden 1–4 cesiumnuklidien -134 ja -137 havaitsemisrajat eli pienimmät aktiivisuuden arvot, jotka voidaan luotettavasti todeta (MDC) laskettuna toistomittausten aktiivisuuksien keskiarvoista.

	maitojauhe							
	1		2		3		4	
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
<b>B</b>	24	19	45	29	21	17	8	10
<b>L<sub>c</sub></b>	57	43	106	69	50	40	18	24
<b>L<sub>D</sub> (MDC)</b>	<b>127</b>	<b>100</b>	<b>225</b>	<b>151</b>	<b>113</b>	<b>94</b>	<b>50</b>	<b>63</b>

Taulukon 8 tuloksista nähdään, että näytteiden havaitsemisrajoissa on vaihtelua, joka johtuu näytteiden aktiivisuuksien eroista. Maitojauheen numero 2 *MDC*-arvot ovat muita näytteitä korkeammat, mikä johtuu siitä, että kyseisessä näytteessä cesium-134-aktiivisuus oli selvästi muita näytteitä suurempi. Pienin luotettava havaitsemisraja saavutettiin maitojauhenäytteelle 4, jossa molempien cesium-nuklidien aktiivisuus oli noin 200 Bq/kg. Muissa näytteissä cesium-134-aktiivisuus oli huomattavasti suurempi, mikä johdosta myös pinta-alan epävarmuus on suurempi. Tämä puolestaan kasvattaa havaitsemisrajaa.

## 6 Yhteenveto

Insinööriyön tavoitteena oli uuden mittausohjelmisto Majavan ja siihen liitettävän analyysiosan käytettävyyden, soveltuvuuden ja tuloksien arviointi. Mittausohjelmiston tässä työssä saadut tulokset ovat lupaavia, mutta ohjelmiston kehitystyötä on jatkettava.

Suunnitellut kalibroinnit ja mittaukset onnistuivat hyvin. Mittauksilla määritetty tehokkuuskäyrä osoittautui toimivaksi ja sen pohjalta saadut tulokset lupaaviksi. Monte Carlo-simuloinnilla tehtyä tehokkuuskäyrää ei työn aikana päästy vertaamaan mittauksilla aikaan saatuun käyrään, mutta todennäköisesti tehokkuuskäyrien muoto on hyvin samanlainen.

Erilaisilla maitojauhenäytteillä tehdyillä toistomittauksilla osoitettiin, että laite toistaa mittaustuloksia hyvin. Tuloksista tehtiin päätelmä, että mittausohjelmisto aliarvioi näytteen aktiivisuuden systemaattisesti, mutta tämä saadaan korjattua tehokkuutta muuttamalla.

Analyysiohjelma toimii hyvinkin erilailla, jos syöttötiedoston parametreja ja asetuksia muutetaan. Tästä johtuen parametreja sekä asetuksia ei tässä työssä muutettu. Tarkoituksena oli tutkia ohjelmiston toimintaan vaikuttavia muita asioita ja varmistaa, että ohjelmisto toimii oikein. Analyysiohjelman toimivuutta on tarkasteltava tulevaisuudessa siten, että parametreja ja asetuksia muutetaan.

Mittaustuloksista tehtävän analyysin onnistuminen riippuu voimakkaasti energiakalibroinnin onnistumisesta. Kalibroinnissa cesium-137 piikki säädetään 661,7 keV kohdalle, mutta välillä se asettuu muutaman kanavapaikan tästä ohi. Tämä vaikuttaa heti analyysitulokseen, joten on tärkeää tarkistaa kalibroinnin onnistuminen ennen mittauksia.

ROI-alueiden suhteen tehtiin johtopäätös, että tutkittavan energian mittausalueella ROI-alueet eivät saa olla liian suuria. Esimerkiksi cesium-134:n gammapiikit 500 ja 800 keV välillä tulisi jakaa kahteen eri ROI-alueeseen. Mikäli kyseiset gammapiikit ovat samassa ROI-alueessa, aiheuttaa tämä virhettä muun muassa kalium-40:n piikin sovitukseen 1 460 keV kohdalla.

Tällä hetkellä analyysiohjelmiston syöttötiedoissa olevat parametrit ja asetukset toimivat hyvin elintarvikenäytteille, kuten maitojauheelle. Kun näillä asetuksilla ajettiin maanäytettä, analyysiohjelmisto ei onnistunut tunnistamaan gammaspektristä nuklidien pinta-aloja oikein. Maanäytteessä aktiivisuuden arvoiksi saadaan liian pieniä lukemia. Jatkossa tulee selvittää, saataisiinko parempia analyysituloksia, jos elintarvike- ja maanäytteille olisi omat analyysiohjelmiston syöttötiedot (parametrit ja asetukset).



## Lähteet

- 1 Vesterbacka, Kaj. 2012. Laboratorionjohtaja, Ympäristövalvonta ja valmius, Säteilyturvakeskus, Helsinki. Keskustelut 12.1. - 1.3.2012.
- 2 STUK palveluksessasi. 9.3.2011. Verkkodokumentti. Säteilyturvakeskus. <[http://www.stuk.fi/stuk/fi\\_FI/palveluksessasi/](http://www.stuk.fi/stuk/fi_FI/palveluksessasi/)>. Luettu 13.12.2011.
- 3 Tutkimus ja ympäristönvalvonta -osasto. 28.7.2011. Verkkodokumentti. Säteilyturvakeskus. <[http://www.stuk.fi/tutkimus/fi\\_FI/osasto/](http://www.stuk.fi/tutkimus/fi_FI/osasto/)>. Luettu 13.12.2011.
- 4 Paikallislaboratoriot. 18.1.2012. Verkkodokumentti. Säteilyturvakeskus. <[http://www.stuk.fi/sateilytietoa/sateily\\_ymparistossa/elintarvikkeet/fi\\_FI/paikalilaboratoriot/](http://www.stuk.fi/sateilytietoa/sateily_ymparistossa/elintarvikkeet/fi_FI/paikalilaboratoriot/)> Luettu 23.1.2012.
- 5 Ympäristövalvonta ja valmius. 12.6.2009. Verkkodokumentti. Säteilyturvakeskus. <[http://www.stuk.fi/tutkimus/yksikot/fi\\_FI/ymparistovalvonta\\_ja\\_valmius/](http://www.stuk.fi/tutkimus/yksikot/fi_FI/ymparistovalvonta_ja_valmius/)>. Luettu 12.12.2011.
- 6 Harjula, Risto. 2003. Nuklidit, isotoopit, isobaarit – nuklidikartta. Verkkodokumentti. <<http://www.mv.helsinki.fi/home/harjula/Aineistot/PK%201/Luentomoniste/V.pdf>>. Luettu 17.1.2012
- 7 Ikäheimonen, Tarja K. 2002. Säteily ja sen havaitseminen. Helsinki: Säteilyturvakeskus.
- 8 Kantala, Tuija. 2005. Elintarviketeollisuuslaitosten ja niiden ympäristön puhdistustoimenpiteet säteilytilanteessa. Helsinki: Säteilyturvakeskus.
- 9 Turunen, Jari. 2007.  $^{133m}\text{Xe}$  konversioelektronimittaus ja kansainvälinen kattava ydinkoekielto. Verkkodokumentti. <[https://jyx.jyu.fi/dspace/bitstream/handle/123456789/18296/URN\\_NBN\\_fi\\_jyu-2008141017.pdf?sequence=1](https://jyx.jyu.fi/dspace/bitstream/handle/123456789/18296/URN_NBN_fi_jyu-2008141017.pdf?sequence=1)>. Luettu 17.1.2012.
- 10 Olkkonen, Hannu. 2009. Mittaustekniikka. Verkkodokumentti. <<http://venda.uku.fi/studies/courses/MIT/moniste/mite08-.pdf>>. Luettu 3.1.2012.
- 11 Turunen, Hannu. 2008. Fysiikan laboratoriotyöt. Luentomateriaali. Metropolia Ammattikorkeakoulu.

- 12 Paakkola, Olli. 1994. Radioaktiivinen laskeuma ja elintarvikkeet. Helsinki: Huoltovarmuuskeskus.
- 13 Peltonen, Hannu. 2004. Insinöörin (AMK) fysiikka osa II. Lahti: Lahden Teho-Opetus Oy.
- 14 Ronkanen, Päivi. 29.1.2004. Karakteristiset röntgenspektrit ja gamma-siirtymät. Verkkodokumentti. <[http://venda.uku.fi/studies/kurssit/FLT3/tyoohjeet/gamma\\_siirtymat.pdf](http://venda.uku.fi/studies/kurssit/FLT3/tyoohjeet/gamma_siirtymat.pdf)>. Luettu 16.1.2012.
- 15 Marttila, Olli J. 1998. Säteilysuojelun perusteet. Helsinki: Helsingin yliopisto, Fysiikan laitos.
- 16 Blomberg, Salla. 2010.  $^{210}\text{Pb}$ :n erotus matriisista ioniselektiivisellä hartsilla ja määrittäminen neste-tuikespektrometrillä – menetelmän kehitys ja validointi. Metropolia Ammattikorkeakoulu.
- 17 Kemian metrologian opas. 2005. Toim. Ehder, Tapio. Helsinki: MIKES.
- 18 Taavitsainen, Veli-Matti. 2010. Tilastomatematiikka. Luentomateriaali. Metropolia Ammattikorkeakoulu.
- 19 Mauranen, Kari. 2011. Todennäköisyyslaskentaa. Itä-Suomen Yliopisto. Verkkodokumentti. <[http://www.uku.fi/~mauranen/bis/bis5\\_doc.htm](http://www.uku.fi/~mauranen/bis/bis5_doc.htm)>. Luettu 12.2.2012.
- 20 EURSSEM Manual. Criteria for the selection of direct measurement, scanning and sample collection methods. Verkkodokumentti <<http://www.eurssem.eu/pages/3-3-7-criteria-for-the-selection-of-direct-measurement-scanning-and-sample-collection-methods>>. Luettu 27.2.2012

## Esimerkki tehokkuuskalibroinnin mittausdatasta

#nuclide	energy	centroidC	area	fwhm	efficiency	significan	chiSq	idPeak	baselineS	baselineE	baselineI
Ac-228	911,204	298,0261	0	52,03664	0,011115	0	0	16	285	404	7
Ac-228	968,971	316,2219	0	53,75306	0,010444	0	0	17	285	404	7
Ac-228	964,766	314,8987	0	53,6296	0,010493	0	0	18	285	404	7
Am-241	59,5409	23,3767	1927,935	12,97719	0,016736	4,938286	0	1	13	69	1
Bi-214	609,312	202,1851	39,294	42,16832	0,014539	1,131382	0	10	176	240	5
Bi-214	1120,287	363,7012	232,2799	58,05727	0,008687	5,207824	0	19	285	404	7
Bi-214	1764,494	563,7384	1,652176	74,23335	0,003745	1,797591	0	25	531	593	9
Cd-109	88,0336	32,81282	633,3619	15,78595	0,033119	2,342478	0	2	13	69	1
Co-57	122,0607	44,05439	226,5437	18,60256	0,040276	1,072097	0	3	13	69	1
Co-60	1173,228	380,2561	755,475	59,50584	0,008072	14,20458	0	20	285	404	7
Co-60	1332,492	429,9059	690,8943	63,71236	0,006223	16,65095	0	23	404	531	8
Cs-134	604,721	200,7167	0	42,00333	0,014586	0	0	11	176	240	5
Cs-134	795,864	261,5661	0	48,46454	0,012454	0	0	15	240	284	6
Cs-137	661,657	218,9022	1636,238	44,01179	0,014012	24,11623	0	12	176	240	5
I-131	364,489	123,3476	0	32,37353	0,017	0	0	6	95	134	3
I-131	636,989	211,0298	0	43,15145	0,014261	0	0	13	176	240	5
K-40	1460,822	469,7697	0	66,95871	0,004733	0	0	24	404	531	8
Pb-210	46,539	19,06372	1029,394	11,47333	0,00926	3,407717	0	4	13	69	1
Pb-212	238,632	82,35032	12,82319	26,09596	0,038289	0,054582	0	5	69	95	2
Pb-214	295,224	100,8277	0	29,07484	0,027724	0	0	7	95	134	3
Pb-214	351,932	119,2725	0	31,79893	0,017138	0	0	8	95	134	3
Tl-208	510,77	170,5871	23,20886	38,49324	0,01553	0,250129	0	9	134	176	4
Tl-208	583,187	193,8245	27,69314	41,22185	0,014802	59,60621	0	14	176	240	5
Tl-208	2614,511	826,2989	2,15795	92,51971	9,83E-04	0,119733	0	26	593	977	10
Y-88	898,042	293,8744	108,3668	51,63919	0,011268	2,643009	0	21	285	404	7
Zn-65	1115,539	362,2152	0	57,926	0,008742	0	0	22	285	404	7

## Tehokkuuskalibroinnin tulokset

nuklidi	energia [keV]	tehokkuus $\epsilon$ [1/(Bq*s)]	keskiarvo $\epsilon$ [1/(Bq*s)]	keskihajonta	lähde
Am-241	59,54	0,029199 0,033139	0,031169	0,002786	Am-241 Am-241_2
Pb-212	238,63	0,043149 0,043854 0,045992 0,043601	0,044149	0,001263	Sample6 Sample11 Sample28_2 Sample37_1
Pb-214	351,93	0,025819 0,024537 0,022566 0,021189	0,023528	0,002055	Sample6 Sample11 Sample28_2 Sample37_1
Cs-137	661,66	0,013789 0,018187 0,015352 0,014469	0,015449	0,001934	Puolukka Korte Suppilovahvero Lentotuhka
K-40	1460,82	0,005173 0,004783 0,004808 0,005452	0,005054	0,000320	Sample6 Sample11 Sample28_2 Sample37_1
Tl-208	2614,51	0,000799 0,000709 0,000808 0,000544	0,000715	0,000122	Sample6 Sample11 Sample28_2 Sample37_1

**<sup>134</sup>Cs:n ja <sup>137</sup>Cs:n aikamittausten aktiivisuustulokset**

mittaus	1	2	3	4	5
aika (s)	aktiivisuus [Bq/kg]				
60	139,07	72,73	169,29	160,00	148,93
180	191,26	182,41	198,57	234,48	197,16
300	213,30	208,08	194,56	207,11	196,50
420	213,80	214,22	193,19	182,73	184,38
600	197,27	190,52	209,64	193,70	185,72
900	210,27	202,84	200,60	188,13	182,85

**Vertailuaktiivisuutena**

**on saman maitojauhenäyte 4:n**

**yhdeksästä 15 min mittauksesta**





**saatujen Cs-137 aktiivisuuksien keskiarvo.**

Aktiivisuus Bq/kg	
Cs-137	
176,5491	
177,4562	
205,2808	
187,3684	
210,3373	
202,8442	
200,5981	
188,1312	
182,8458	
192,379	keskiarvo
12,61615	keskihajonta
6,557968	keskihajonta %

## Maitojauhemittousten aktiivisuustulokset

Eri päivien mittaukset on merkitty eri väreillä. Yksikkönä Bq/kg, selitykset sivun alalaidassa.

mittaus	Aktiivisuus Bq/kg							
	maitojauhe 1		maitojauhe 2		maitojauhe 3		maitojauhe 4	
	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137	Cs-134	Cs-137
1	1056	193	2138	195	905	171	198	177
2	1059	168	2109	193	914	169	199	177
3	1041	179	2065	175	896	184	219	205
4	997	165	2111	165	911	168	215	187
5	1017	184	2132	181	917	172	204	210
6	965	181	2049	161	909	181	221	203
7	952	200	2043	199	906	155	251	201
8	1078	138	1986	181	874	171	216	188
9	1011	158	1987	153	884	149	232	183
10	1005	177	1973	128	887	146	175	167
keskiarvo	1034	178	2111	182	909	173	217	192
keskihajonta	27	11	29	13	8	7	17	13
keskihajonta%	3	6	1	7	1	4	8	7
keskiarvo	1031	158	2008	165	892	160		
keskihajonta	49	24	36	27	15	15		
keskihajonta%	5	15	2	16	2	9		
	Kaikkien mittausten kokonaistulokset							
keskiarvo	1018	174	2059	173	900	167	213	190
keskihajonta	41	18	62	22	15	13	21	14
keskihajonta%	4	10	3	13	2	8	10	8
	Näytteiden todelliset tulokset							
odotusarvo	1160	201	2350	243	1020	207	260	207
keskihajonta	70	10	141	12	61	10	16	10
keskihajonta%	6	5	6	5	6	5	6	5
odotusarvo/keskiarvo	112	113	111	134	112	120	120	108

1.2.12	
8.2.12	
9.2.12	
10.2.12	

**Maitojauheiden 1 ja 2 toistomittausten  $^{134}\text{Cs}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n gammapiik-  
kien pinta-alat ja pinta-alojen epävarmuudet.**

mittaus	IdMeas	Cs-134 (795,9 keV)			Cs-137 (661,7 keV)		
		Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala	Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala
1_1	136	2329	45	0,019	478	37	0,077
1_2	137	2357	44	0,018	420	34	0,080
1_3	138	2257	44	0,020	436	36	0,084
1_4	139	2218	57	0,026	413	51	0,123
1_5	140	2325	55	0,024	473	49	0,104
1_6	197	2294	69	0,030	483	56	0,116
1_7	198	2147	58	0,027	507	47	0,093
1_8	214	2434	61	0,025	351	55	0,156
1_9	215	2280	57	0,025	400	52	0,129
1_10	216	2354	60	0,025	464	56	0,121
	<b>keskiarvo</b>	2299	55	<b>0,024</b>	442	47	<b>0,108</b>

mittaus	IdMeas	Cs-134 (795,9 keV)			Cs-137 (661,7 keV)		
		Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala	Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala
2_1	141	4705	86	0,018	482	55	0,115
2_2	142	4557	107	0,023	469	77	0,165
2_3	143	4499	82	0,018	427	52	0,122
2_4	144	4471	104	0,023	393	74	0,189
2_5	145	4734	109	0,023	451	78	0,173
2_6	217	5420	120	0,022	478	90	0,188
2_7	218	4694	103	0,022	514	79	0,154
2_8	219	4867	110	0,023	499	85	0,170
2_9	220	7110	155	0,022	616	116	0,189
2_10	222	4513	106	0,023	330	80	0,242
	<b>keskiarvo</b>	4957	108	<b>0,022</b>	466	79	<b>0,171</b>

**Maitojauheiden 3 ja 4 toistomittausten  $^{134}\text{Cs}$ :n ja  $^{137}\text{Cs}$ :n gammapiik-  
kien pinta-alat ja pinta-alojen epävarmuudet.**

mittaus	IdMeas	Cs-134 (795,9 keV)			Cs-137 (661,7 keV)		
		Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala	Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala
3_1	146	2103	54	0,026	446	49	0,111
3_2	147	2092	40	0,019	435	33	0,076
3_3	148	2025	41	0,020	468	35	0,076
3_4	149	2025	50	0,024	419	45	0,107
3_5	150	2122	64	0,030	448	63	0,140
3_6	223	2010	50	0,025	450	46	0,103
3_7	224	2034	53	0,026	390	50	0,128
3_8	225	1942	49	0,025	428	47	0,111
3_9	226	1965	49	0,025	371	45	0,120
3_10	227	1970	37	0,019	364	30	0,082
	<b>keskiarvo</b>	2029	49	<b>0,024</b>	422	44	<b>0,105</b>

mittaus	IdMeas	Cs-134 (795,9 keV)			Cs-137 (661,7 keV)		
		Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala	Pinta-ala	Alan virhe	virhe/ala
4_2	162	446	26	0,058	447	36	0,081
4_3	163	450	22	0,050	449	31	0,069
4_4	164	494	32	0,064	520	41	0,080
4_5	165	485	26	0,054	474	36	0,075
4_1_15_15	172	460	16	0,034	532	24	0,045
4_2_15_15	178	500	6	0,011	514	6	0,012
4_3_15_15	184	566	6	0,010	508	5	0,011
4_4_15_15	190	487	7	0,014	476	6	0,013
4_5_15_15	196	524	25	0,048	463	35	0,075
4_10	228	393	10	0,025	422	45	0,106
	<b>keskiarvo</b>	480	18	<b>0,037</b>	481	26	<b>0,056</b>

Referenssimittausten tulokset maitojauheille (epävarmuudet  $1\sigma$ ). Yksikkönä Bq/kg.

	Cs-134	Cs-137
Ref.1	1160 ± 6 %	201 ± 5 %
Ref.2	2350 ± 6 %	243 ± 5 %
Ref.3	1020 ± 6 %	207 ± 5 %
Ref.4	260 ± 6 %	207 ± 5 %