CH – 13.1

Rádiometria a rádioekológia

Stanovenie mernej aktivity rádionuklidov v homogenizovateľných materiáloch metódou polovodičovej gamaspektrometrie v rozsahu energií 60 keV – 200 keV pre štandartné geometrie

1. Úvod

Tento postup popisuje stanovenie mernej aktivity rádionuklidov vo vzorkách pripravených z kvapalných, sypkých a tuhých homogenizovateľných materiálov v rozsahu energií 60 keV až 2000 keV metódou polovodičovej gamaspektrometrie.

2. Princíp metódy

Metóda je založená na detekcii kvánt gama emitovaných z rádionuklidov nachádzajúcich sa vo vzorke polovodičovým detektorom s vysokým rozlíšením a nasledujúcou kvalitatívnou a kvantitatívnou analýzou získaného spektra.

3. Pomôcky

Spektrometer gama.

4. Vzorky

Vzorky pre gamaspektrometriu sa pripravujú podľa špecifickej normy pre skúšaný výrobok. Ak takáto špecifická norma neexistuje, odporúča sa, aby sa zúčastnené strany na postupe dohodli.

5. Pracovný postup

Pripravená vzorka sa prinesie do meracej miestnosti gamaspektrometra. Do Meracieho zošita gamaspektrometra sa podľa predtlače zapíše

- jednopísmenové označenie detektora (veľké písmeno latinskej abecedy **A, B, C, D** alebo **E**),

- dátum a poradové číslo merania v danom dni (merania sa číslujú priebežne nezávisle od detektora) oddelené znakom / (lomítko),
- 3-písmenový kód vzorky (pre bežné vzorky je kód **VVZ**) a laboratórne číslo vzorky (zo stĺpca Pridelené čísla analýz),
- názov vzorky,

  Ak pri príprave vzorky došlo k zmene koncentrácie, pred názov vzorky sa uvádza spôsob prípravy

  L- lyofilizácia

  R- riedenie

  D- sušenie

  A- spaľovanie

  P- iné, vyššie neuvedené spracovanie,

  a do stĺpca Poznámky <u>Meracieho zošita gamaspektrometra</u> sa zapíše hmotnosť, resp objem vzorky pred a po spracovaní.
- množstvo vzorky a jednotku množstva (**kg, L, ks**),
- kód pre geometriu merania, v LRR sa používajú štandardné geometrie:
  - **3MB** (objem vzorky 0,30 L v Marinelliho nádobe, typ 1020, výrobca: UVVVR Praha, ČR),
  - **5MB** (objem vzorky 0,45 L v Marinelliho nádobe, typ 1020, výrobca: UVVVR Praha, ČR),
  - **1MN** (objem vzorky 1,00 L v Marinelliho nádobe, typ 1040, výrobca: UVVVR Praha, ČR)
- čas akvizície spektra v sekundách.

Pracovník vykonávajúci meranie tento záznam podpíše a vzorku umiestni na detektor.

5.1. Meranie na analyzátore Nuclear Data MCA-66

MCA-66 sa ovláda príkazmi z alfanumerickej klávesnice alebo z malej ovládacej klávesnice (podrobný popis viď manuál ND MCA-66).

Pracovník vykonávajúci meranie

- Na analyzátore zvolí zodpovedajúcu ADC/GROUP klávesou **ADC**
- Príkazom **ERASE INIT** zmaže predchádzajúce spektrum
- Zapíše identifikáciu vzorky príkazom

  ID ppp#nnnnnn name x.xxxxQU GEOM

  kde **ppp** je kód vzorky (pre bežné vzorky je kód VVZ), **nnnnnn** laboratórne číslo

vzorky, **name** je názov vzorky, **x.xxxx** je číselný údaj o množstve vzorky, **QU** je jednotka množstva a **GEOM** je kód použitej geometrie merania. Identifikácia vzorky musí zodpovedať záznamu v Meracom zošite gamaspektrometra.

- Zadá čas akvizície spektra (preset live time) príkazom **LI ssssss** kde **ssssss** je čas v sekundách.
- Spustí meranie spektra kombináciou kláves **ACQ INIT** resp príkazom **ON a,g** kde **a,g** je použitá ADC/GROUP
- Po ukončení akvizície spektrum uloží na disketu príkazom

  TRA:a/g Dnnnnnn

  kde **a** je ADC, **g** GROUP, **D** je písmeno označujúce detektor a **nnnnnn** je laboratórne číslo vzorky
- Príkazom **ERASE INIT** vymaže spektrum z pamäti MCA.

5.2. Meranie na systéme EG&G ORTEC GammaVision

GammaVision sa ovláda pomocou menu, alebo klávesovými skratkami, bližšie viď manuál GammaVision.

Pracovník vykonávajúci meranie

- spustí aplikáciu GammaVision resp. aktivuje ju, ak je minimalizovaná
- zvolí detektor voľbou z menu Display/Detector
- zo zoznamu detektorov v okne Pick Detector vyberie detektor
- vymaže existujúce spektrum voľbou z menu Acquire/Clear (Alt +3)
- Aktivuje okno pre nastavenie parametrov merania Acquisition Settings voľbou Acquire/Settings/Acquisition a do poľa Sample Description zapíše identifikáciu vzorky vo forme

  ppp#nnnnnn name x.xxxxQU GEOM

  kde **ppp** je kód vzorky, **nnnnnn** laboratórne číslo vzorky, **name** je názov vzorky, **x.xxxx** je číselný údaj o množstve vzorky, **QU** je jednotka množstva a **GEOM** je kód použitej geometrie merania. Identifikácia vzorky musí zodpovedať záznamu v Laboratórnom zošite gamaspektrometra.

  Identifikáciu potvrdí tlačítkom OK.
- Aktivuje okno pre nastavenie parametrov merania voľbou Acquire/Settings/Preset Limits a do poľa Live Time zapíše čas akvizície v sekundách. Potvrdí tlačítkom OK.
- Spustí akvizíciu spektra voľbou Acquire/Start (Alt +1)

- Systém mu predloží na prekontrolovanie identifikáciu vzorky a po potvrdení tlačítkom OK zaháji meranie.
- Po ukončení akvizície obsluha uloží spektrum na disk príkazom File/Save As , pričom ako názov súboru zapíše **Dnnnnnn** kde **D** je písmeno označujúce detektor a **nnnnnn** je laboratórne číslo vzorky. Súbor ukladá do adresára \User\Spect. Po uložení spektrum exportuje do formátu vhodného na vyhodnotenie príkazom File/Export
- Napokon voľbou z menu Acquire/Clear (Alt +3) vymaže spektrum z pamäti MCA.

- **Vyhodnotenie**

Výpočet mernej aktivity rádionuklidov vo vzorke pozostáva z nasledovných úkonov

- Priradenie enegetickej, FWHM a účinnostnej kalibrácie k spektru podľa detektora a geometrie merania
- Vyhľadanie píkov v spektre, určenie energie centroidu, plochy píku a pozadia pod píkom
- Vynásobenie plochy píkov účinnosťou detektora pre použitú geometriu merania
- Identifikácia rádionuklidov porovnaním energií píkov s knižnicou nuklidov
- Odčítanie príspevku nuklidov v okolí detektora od plochy píkov
- Korekcia na samoabsorpciu vo vzorke a korekcia na pravé sumácie u kaskádnych žiaričov
- Výpočet aktivty a chyby merania identifikovaných nuklidov
- Korekcia na vzájomné interferencie nuklidov
- Tlač a archivácia výsledkov

Analýza spektier gama sa vykonáva s pomocou analytického spektroskopického software (ďalej ASS). V LRR sa používa produkt firmy Nuclear Data **ND ASAP**. Popis ASS sa nachádza v užívateľskej príručke "NUCLEAR DATA ASAP Radionuclide Analysis User's Documentation" ver. 07-0411 (ďalej manuál ASAP).

Okrem analýzy spektier programy spektroskopického software umožňujú:

- vytváranie a aktualizáciu dátových súborov
- kalibráciu spektrometra

ASS pozostáva zo skupiny programov a dátových súborov a beží v režime príkazového riadku pod operačným systémom MS Windows na počítačoch kompatibilných s IBM PC. Základná inštalácia sa nachádza na serveri LRR v adresári **C:\ND** ktorý je namapovaný na pracovné stanice ako disk **N:.** Pracovné stanice majú lokálnu kópiu programov a dátových súborov v **C:\ND**.

Tento dokument popisuje len pracovný postup pri vyhodnocovaní spektra. Podrobný popis programov a dátových súborov spektroskopického systému viď manuál ASAP. Tento pracovný postup predpokladá platné kalibrácie, konfiguračné a dátové súbory spektroskopického systému.

- **Postupnosť krokov pri analýze spektier gama pre vopred určené rádionuklidy**

Pracovník vykonávajúci analýzu spektra

- Skopíruje spektrá z diskety do adresára **N:\SPECT** ak bolo spektrum merané na MCA ND66, ak bolo spektrum merané na systéme EG&G ORTEC, už sa v adresári **N:\SPECT** nachádza
- Zvolí na prac.stanici režim príkazového riadku s pracovným adresárom **C:\ND** (kliknutím na ikonu ND na ploche MS Windows)
- Aktualizuje súbor obsahujúci údaje o čase príjmu vzorky do LRR príkazom
- C:\ND> **SDL ppp**
- kde ppp je max 3-písmenový kód vzorky (pre bežné vzorky je kód VVZ). V aplikácii SDL skontroluje existujúce údaje, resp. chýbajúce doplní podľa Knihy evidencie vzoriek. K tomuto dátumu sa stanovuje merná aktivita.
- Zvolí knižnicu nuklidov DEBO5.LIB príkazom
- C:\ND> **DEF/NLIB=DEBO5.LIB**
- Pre každé spektrum spustí dávkový súbor **S.BAT** s parametrami **dssss** a **CDDMMYY.n** príkazom
- C:\ND> **S dssss CDDMMYY.n**

kde **dssss** je názov spektrálneho súboru z N:\SPECT (zdrojové spektrum) a **CDDMMYY.n** je názov cieľového spektra, ktoré bude predmetom ďalšej analýzy. Parametre sa zadávajú podľa záznamu o meraní v Meracom zošite gamaspektrometra. Ak počas vykonávania S.BAT nenastala chyba, cieľové spektrum obsahuje všetky údaje o vzorke a meraní nutné na výpočet aktivity ako aj platnú energetickú, FWHM a účinnostnú kalibráciu pre daný detektor, typ vzorky a použitú geometriu merania. Cieľové spektrum sa automaticky archivuje do **N:\ARCHIVE** a zdrojové spektrum je zmazané.

Možné chyby hlásené systémom v tejto fáze vyhodnotenia:

- chyby pri čítaní/zápise na disk. Pracovník vykonávajúci analýzu spektra overí, že
  - pracovný adresár užívateľa je C:\ND
  - má prístupové práva k zdieľaným súborom
  - príslušné súbory nachádzajú v určených adresároch
- Nesprávna syntax identifikačného riadku: chybové hlásenie

  Syntax error in id. line – "identifikačný riadok spektra"

  Please enter correct sample identification line.

  Pracovník zadá správny identifikačný riadok spektra.
- Chýbajúci záznam o dátume a čase príjmu vzorky - chybové hlásenie:

  Sample 'číslo vzorky' not found in file SDL.'ppp'

  Príkazom C:\ND> **SDL ppp s**a doplnia sa chýbajúce údaje
- Neznámy názov vzorky: chybové hlásenie

  Sample 'číslo vzorky': Sample name 'názov' not found in list

  Textovým editorom sa v súbore **SPU.EFX** do príslušnej skupiny doplní názov (alebo jednoznačne odlíšitelná skratka) doteraz neznámej vzorky

Ak sa nevyskytli chyby systém po zadaní príkazu S zobrazí základné informácie o vzorke

Laboratórne číslo vzorky	Dátum príjmu
Identifikačný riadok spektra	Priradená účinnostná kalibrácia
Informácia o uložení spektra do archívu	

a čaká na potvrdenie. Analýza pokračuje po prekontrolovaní údajov na obrazovke stlačením ľubovoľnej klávesy automatickým vyhľadaním píkov v spektre.
Zoznam nájdených píkov sa zobrazí na obrazovke a zároveň sa zapíše do dočasného súboru peak.txt vo formáte:

PK IT ENERGY AREA BKGND FWHM CHANNEL LEFT PW CTS/SEC %ERR FIT

Systém opäť čaká na stlačenie ľubovoľnej klávesy ako potvrdenie ďalšieho postupu.

Stlačením klávesy sa spustí grafický editor píkov. Editor sa obsluhuje jednopísmenovými príkazmi z klávesnice. Pracovník vykonávajúci analýzu spektra má možnosť prehliadať spektrum s vyznačenými nájdenými píkmi

- podľa zoznamu nájdených píkov - príkaz **P**
- podľa knižnice nuklidov - príkaz **N**
- klávesy **PageUP, PageDown** pre voľbu nuklidu, ↑,↓ pre výber sp. čiary
- zadaním energie - príkaz **Y**

Vybraný pík je vyznačený **centroidom** a dvojicou **markerov** ktoré určujú jeho hranice. Markery sa aktivujú klávesou **M**, centroid klávesou **C**. Aktívnym markerom/centroidom je možné pohybovať pomocou kláves **←,→**. Parametre píku zodpovedajúce okamžitej polohe markerov sú zobrazené modrým písmom pod riadkom s aktuálnymi (červenými) parametrami. Počet kanálov uvažovaných pre výpočet pozadia sa zadáva príkazom **B**. Zobrazenú oblasť spektra je možné zväčšovať/zmenšovať v horizontálnom smere príkazmi **X**, **U** vo vertikálnom príkazmi +,-. Príkazom **G** sa prepína lineárne/logaritmické zobrazenie v zvislej osi.

Editačné funkcie:

Píky v spektre je možné

- mazať - príkaz **D** (delete)
- vkladať - príkaz **I** (insert)
- modifikovať - príkaz **R** (replace)

Píky (max 8) nachádzajúce sa v oblasti medzi markermi je možné fitovať príkazom **F**. Použité je nelineárne fitovanie, pričom fitovacia funkcia je súčtom Gaussovej funkcie pre pík, lineárnej alebo kvadratickej funkcie pre pozadie a funkcie arkustangens modelujúcej pokles pozadia pod píkom. Ako počiatočné parametre pre fit sú použité aktuálne parametre píku. Jednému stlačeniu klávesy **F** zodpovedá jedna iterácia.

Počas fitovania je možné

- fixovať šírku píku na hodnotu danú FWHM kalibráciou – príkaz **W**
- zrušiť schodovú funkciu pre pozadie – príkaz **T**
- zadať požiadavku na kvadratický priebeh pozadia – príkaz **Q**
- podľa grafického zobrazenia rezíduí fitu vložiť nový pík (max. 8) – príkaz **A**
- akceptovať parametre píku určené fitom – príkaz **R**

Fitovanie sa ukončí príkazom **S**.

Editorom píkov je nutné prezrieť všetky spektrálne čiary ktoré budú ďalej použité pre výpočet mernej aktivity.

Grafický editor píkov sa ukočí príkazom **E** – všetky zmeny vyvolané príkazmi **R**,**I** a **D** sa akceptujú, alebo príkazom **Q** bez akceptovania zmien.

Analýza spektra pokračuje príkazom **R** ktorý spustí dávkový súbor **R.BAT**. R.BAT postupne spúšťa programy

- PRDEFF4 /SB

  na nájdené píky sa aplikuje účinnostná kalibrácia, odpočíta sa pozadie od nuklidov v okolí detektora a plocha píkov sa koriguje na samoabsorpciou žiarenia vo vzorke. V prípade že jednotka množstva vzorky je iná než kg, program si vyžiada hustotu vzorky hlásením

  Sample Quantity Unit other than kg

  Please Enter Sample Density in [g/cm3]:

  Obsluha zadá hustotu. Ak je zadaná hustota rovná jednej , nebude sa počítať korekcia na samoabsorpciu.

  Ak sa geometria merania nenachádza v zozname geometrií súboru PRDEFF3.DAT program vypíše

  Warning!

  Unknown Geometry: Continue without Correction for Selfabsorp? (Y/N)

  Zadaním **Y** výpočet mernej aktivity pokračuje bez korekcie na samoabsorpciu, zadaním **N** sa výpočet ukončí. Pre každý pík program vypíše na obrazovku záznam vo formáte

  Pk Energy Eff. C.Factor PeakArea BkgSubtracted

  a čaká na potvrdenie slačením ľubovoľnej klávesy.

- NID

  Vykoná identifikáciu nuklidov porovnaním energií nájdených píkov a spektrálnych čiar v knižnici rádionuklidov použitej pre analýzu.

- CSUM

  Korekcia na pravé sumácie pre kaskádne žiariče. Vykonáva sa pre geometrie a nuklidy uvedené v súbore **CSUM.DAT**

- MDA

  Výpočet minimálnej detekovateľnej aktivity.

- WMEAN

  Výpočet váženého priemeru aktivít pre nuklidy s viacerými spektrálnymi čiarami.

- RA226

  Vypočíta sa merná aktivita izotopu ^{226}Ra s použitím čiary 186.21keV po odrátaní príspevku od ^{235}U

- REPORTnp N:\reports

  Vytvorí sa textový súbor **sssss.RPT** obsahujúci údaje o analýze a jej výsledky. Súbor sa zapíše do adresára **N:\reports**
- SRx

  Merná aktivita nuklidov uvedených v sekcii ***SR NUCLIDES** súboru **GAMA.INI** sa zapíše spolu s informáciami o vzorke a meraní do databázového súboru s názvom v sekcii ***SR DBF_FILE** súboru **GAMA.INI**.

Týmto je vyhodnotenie mernej aktivity ukončené.

6. Protokol o skúške

Protokol musí obsahovať:
- druh a pôvod vzorky
- dátum odobratia vzorky
- dátum príjmu a skúšania vzorky
- použitá metóda
- výsledok skúšania

Použitá literatúra

BEVINGTON, P. R. (1969): Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences, McGraw-Hill Inc, New York, 1969. 336 s.

DEBERTIN, K. – HELMER, R. G. (1988): Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, 1988, 399 s., ISBN: 0-444-87107-1

EG&G ORTEC (1998): GammaVision-32, Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulation for MS Windows 95 and MS Windows NT, A66-B32, Software User's Manual, Oak Ridge, 1998. 364 s.

ERDTMANN, G. – SOYKA, W. (1979): The Gamma Rays of the Radionuclides, Verlag Chemie, Weinheim, 1979. 654 s.

LEDERER, C. M. – SHIRLEY, V. S. – BROWNE, E. (1978): Table of Isotopes. 7th Edition, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978. 1629 s., ISBN: 0-471-04180-7

NUCLEAR DATA (1988): Nuclear Data ASAP Radionuclide Analysis User‘s Documentation 07-0411, Version 01, NUCLEAR DATA Inc., Schaumburg, 1988. 584 s.

NUCLEAR DATA (1985): ND66/76 Multichannel Analyzer / Remote Terminal Operator‘s Manual 07-0182, NUCLEAR DATA Inc., Schaumburg, 1985. 713 s.