

ЗБОРНИК РАДОВА



XXXI Симпозијум Друштва за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе



**06-08. октобар 2021.
Београд, Србија**

**ДРУШТВО ЗА ЗАШТИТУ ОД ЗРАЧЕЊА
СРБИЈЕ И ЦРНЕ ГОРЕ**



ЗБОРНИК РАДОВА

**XXXI СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
Београд
06-08. октобар 2021.**

**Београд
2021.**

**RADIATION PROTECTION SOCIETY OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

**XXXI SYMPOSIUM RPSSM
Belgrade
6th - 8th October 2021**

**Belgrade
2021**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXXI СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ

06-08.10.2021.

Издавачи:

Институт за нуклеарне науке „Винча“
Друштво за заштиту од зрачења Србије и Црне Горе

За извршног издавача:

Проф. Др Снежана Пајовић

Уредници:

Др Ивана Вуканац
Др Милица Рајачић

e-ISBN 78-86-7306-161-0

©Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Милица Рајачић, Милош Ђалетић, Наташа Сарап

Електронско издање:

Институт за нуклеарне науке „Винча“, Мике Петровића Аласа 12-14, 11351
Винча, Београд, Србија

Година издања:

Октобар 2021.



Овај Зборник као и сви радови у њему подлежу лиценци:
Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International
License, <https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>

Ова лиценца дозвољава само преузимање и дистрибуцију дела, ако/док се правилно назначавача име аутора, без икаквих промена дела и без права комерцијалног коришћења дела.

ISPITIVANJE AKTIVNOSTI RADIONUKLIDA U OTPADNOM MATERIJALU – BUDŽET MERNE NESIGURNOSTI

**Ivana VUKANAC, Milica RAJAČIĆ, Velibor ANDRIĆ,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Dragana TODORVIĆ,
Gordana PANTELIC i Marija JANKOVIĆ**

*Institut za nuklearne nauke „Vinča“, Institut od nacionalnog značaja za Republiku
Srbiju, Univerzitet u Beogradu, Beograd, Srbija, vukanac@vinca.rs,
milica100@vinca.rs, velan@vinca.rs, jnikolic@vinca.rs, beba@vinca.rs,
pantelic@vinca.rs, marijam@vinca.rs*

SADRŽAJ

Prema važećoj zakonskoj regulativi u Republici Srbiji kontrola radiološke ispravnosti otpadnih materijala vrši se na graničnim prelazima, kao i kada postoji namera odlaganja u životnu sredinu. Sadržaj radionuklida u otpadnim materijalima u najvećem broju slučajeva određuje se gamaspektrometrijskim ispitivanjem. Ova merenja podrazumevaju adekvatnu pripremu uzorka u cilju postizanja željene geometrije merenja za koju je izvršena kalibracija efikasnosti gama spektrometra.

U postupku pripreme uzorka otpadnog materijala često nije moguće postići zadovoljavajuću homogenost. Takođe, matriks merenog materijala u većini slučajeva ne odgovara matriksu standarda pomoću kojeg je izvršena kalibracija spektrometra. Iz ovih razloga je potrebno izvršiti određene korekcije rezultata merenja (transfer efikasnosti, na pr.), kao i proširenje budžeta merne nesigurnosti.

U radu je detaljno prikazan postupak procene doprinosa nehomogenosti uzorka mernoj nesigurnosti, kao i doprinosa koji u budžet merne nesigurnosti unosi transfer efikasnosti i primena korekcionih faktora za koincidentno sumiranje.

1. Uvod

Radioaktivnost otpadnih materijala važna je sa stanovišta zaštite životne sredine i očuvanja zdravlja ljudi i životinja. Otpadni materijali se mogu reciklirati u smislu korišćenja sekundarnih sirovina u proizvodnji različitih vrsta materijala u industrijama kao što su na primer građevinska industrija, metalurgija i sl. Posebnu pažnju zavređuju otpadni materijali čija je radioaktivnost povišena u tehnološkom procesu kao što je pepeo nastao sagorevanjem uglja u termoelektranama, crveni mulj nastao u postupku proizvodnje aluminijuma iz rude boksita i dr. Ovakvi materijali pri odlaganju, ili ako se upotrebe kao sekundarna sirovina, mogu uvećati „radiološko opterećenje“ životne sredine i uticati na ukupnu izloženost stanovništva jonizujućem zračenju.

Radiološka karakterizacija otpadnih materijala je važna sa stanovišta obezbeđivanja zaštite pojedinaca, stanovništva i životne sredine od štetnog uticaja jonizujućeg zračenja i regulisana je Zakonom o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti [1] i pratećom legislativom [2, 3]. Pravilnikom o granicama radioaktivne kontaminacije, radne i životne sredine i načinu sprovođenja dekontaminacije [2] definisani su uslovi pod kojima se materijal može odlagati u životnu sredinu, odnosno definisane su granice radioaktivne kontaminacije za prirodne radionuklide (10 Bq/g za ⁴⁰K i 1 Bq/g ostali prirodni radionuklidi) i uslovi koji moraju biti zadovoljeni u slučaju da ispitivani materijal sadrži i proizvedene radionuklide. Pravilnikom o kontroli radioaktivnosti robe prilikom uvoza, izvoza i tranzita [3] definisana je obaveza i način kontrole robe u prekograničnom prometu. U Prilozima ovog pravilnika propisane su vrste robe za koje

je kontrola radioaktivnosti obavezna. Za otpadne materijale navedene u Prilogu 3 ovog pravilnika obavezna je dozimetrijska kontrola, a za robu za koju se utvrdi povećana radioaktivnost usled prisustva radioaktivnog izvora ili kontaminacije postupa se prema nalogu Inspekcije za radijacionu i nuklearnu sigurnost i bezbednost Republike Srbije.

Pri odredjivanju sadržaja radionuklida u otpadnom materijalu, u laboratorijama za ispitivanje radioaktivnosti koriste se standardni postupci merenja. Medjutim, zbog specifičnih fizičkih karakteristika otpadnih materijala u nekim slučajevima je primena definisanih postupaka otežana – ne može se postići zadovoljavajuća homogenost pripremljenog uzorka, odgovarajuća geometrija merenja, primena adekvatne kalibracione krive za detektor i sl.

Cilj ovog istraživanja je bio da se na osnovu analize dobijenih rezultata, u tu svrhu osmišljenog seta merenja, proceni uticaj nehomogenosti i vremena merenja ovakve vrste uzoraka na rezultate merenja i da se detaljno analizira doprinos nehomogenosti i izvršenih korekcija rezultata mernoj nesigurnosti rezultata ispitivanja.

2. Materijal i metode

Uzorak otpadnog lima dostavljen je u prethodnom periodu u laboratoriju na ispitivanje jer je dozimetrijskom kontrolom ustanovljena povišena doza. Kako, u skladu sa pravilnikom [3], nije potvrđeno odsustvo radioaktivnog izvora ili kontaminacije izvršeno je ispitivanje sadržaja radionuklida. Gamaspektrometrijsko ispitivanje uradjeno je prema međunarodnim preporukama [4]. Uzorak je pripremljen mehaničkim usitnjavanjem – sečenjem na sitne komadiće, upakovan u odgovarajuću geometriju merenja i meren na HPGe gama spektrometru. Prilikom prvog rutinskog merenja korišćena je kriva efikasnosti dobijena pomoću matriksa najslabije gustine gustini pakovanja merenog otpadnog materijala. Ispitivanje je pokazalo prisustvo proizvedenog radionuklida ^{60}Co .

Za potrebe ovog istraživanja, otpadni lim upakovan je u tri različite geometrije – cilindrične PVC kutije od 120 ml i 250 ml i Marineli posudu od 450 ml, kao što je prikazano na Slici 1. Sva tri pripremljena uzorka merena su na tri poluprovodnička HPGe spektrometra (Canberra) – D1, D2 i D3, relativnih efikasnosti 20 %, 18 % i 50 %, respektivno, i rezolucije 1.8 keV na energiji ^{60}Co 1332 keV.



Slika 1. Geometrije merenja otpadnog lima.

Svi uzorci mereni su dva puta sa različitim vremenima merenja - 9000 s i 60000 s. Dodatno, izvršena su i po dva merenja na svakom detektoru uzoraka u PVC cilindričnim kutijama sa poklopcem ka detektoru. Spektri su snimani i analizirani u softveru GENIE-2K, Canberra. Snimljeni spektri su korigovani na fon.

Za proračun specifične aktivnosti za geometrije cilindričnih kutija korišćena je kriva efikasnosti dobijena pomoću referentnog materijala u matriksu mermera, pripremljenog u Laboratoriji korišćenjem sertifikovanog radioaktivnog rastvora mešavine radionuklida Češkog Metrološkog Instituta [5]. Za merenja u Marineli geometriji korišćena je kriva efikasnosti eksperimentalno dobijena pomoću sertifikovanog radioaktivnog standarda u matriksu smole Češkog Metrološkog Instituta [6]. Kalibracione krive odabrane su kao najbližnje merenom uzorku po gustini pakovanja.

Kako je mereni uzorak različit od standarda kojim je izvršena kalibracija efikasnosti, pomoću programa EFFTRAN [7] i MEFFTRAN [8] urađen je transfer efikasnosti sa materijala standarda (mermer za cilindrične PVC kutije, odnosno smola za Marineli geometriju) na materijal merenog uzorka – Al lim. Takođe, pomoću ovih programa izračunati su korekcionni faktori za koicidentno sumiranje za detektovani radionuklid – ^{60}Co . Izračunate vrednosti specifičnih aktivnosti ^{60}Co su zatim korigovane dobijenim korekcionnim faktorima.

Merna nesigurnost svakog pojedinačnog merenja obuhvatala je statističku mernu nesigurnost, nesigurnost odredjivanja krive efikasnosti, nesigurnost transfera efikasnosti i nesigurnost odredjivanja korekcionnih faktora za koicidentno sumiranje. Nesigurnost merenja mase je zanemarena. Kombinovana merna nesigurnost računata je u skladu sa opštim pravilom propagacije nesigurnosti.

Rezultat merenja na jednom detektoru izračunat je kao srednja vrednost svakog pojedinačnog merenja. Standardna devijacija srednje vrednosti pojedinačnih rezultata na jednom detektoru može se shvatiti kao mera rasturanja rezultata usled nehomogenosti i različitih uslova merenja. U skladu sa tim, budžet merne nesigurnosti treba proširiti ovim doprinosom.

3. Rezultati i diskusija

Merenja čiji su rezultati prikazani u ovom radu vršena su u maju i junu 2021. godine. Rezultati pojedinačnih merenja za detektore D1, D2 i D3 dati su u Tabelama 1-3. Prvi deo oznake spektra predstavlja laboratorijska oznaka uzorka, a druge tri cifre označavaju: 1(2) – poklopac gore (poklopac uz detektor); 6(9) – vreme merenja 60000 s (9000 s); 1(2,3) – broj detektora.

Iz tabela se može videti da izračunata aktivnost ^{60}Co ne odstupa značajno za sva merenja u geometrijama PVC cilindrične kutije od 250 ml i Marineli geometrije, za svaki od detektora. Vrednosti dobijene za geometriju merenja cilindrične PVC kutije od 120 ml su, za sva tri detektora, niže i to značajnije za slučaj merenja kutije dnom uz detektor. Činjenica da je isti trend variranja rezultata merenja zabeležen na sva tri detektora govori u prilog nehomogenosti početne količine uzorka („*balka*“) upakovane u tri različite geometrije merenja, kao i nehomogenosti unutar samog uzorka u geometriji PVC cilindrične kutije od 120 g. Takođe, može se zaključiti da je stepen nehomogenosti obrnuto proporcionalan količini uzorka u geometriji, što je očekivano. Za različita vremena merenja, nisu primećene statistički značajne razlike između rezultata ispitivanja.

Merna nesigurnost aktivnosti ^{60}Co (u Tabelama 1-3 označena sa MN ^{60}Co) data je za faktor $k=1$ i obuhvatala je: statističku mernu nesigurnost, koja se kretala u opsegu od

1 % do 4 % za sva merenja, nesigurnost odredjivanja efikasnosti i transfera efikasnosti koja je bila 3 % i 3.1 %, respektivno, dok je procenjena nesigurnost odredjivanja korekcionih faktora za koincidentno sumiranje, bila 3 %.

Tabela 1. Rezultati merenja otpadnog Al lima na HPGe spektrometru relativne efikasnosti 20 % (D1).

Oznaka spektra	masa [kg]	t [s]	Geometrija	A ⁶⁰ Co [Bq/kg]	MN ⁶⁰ Co [%]	MN ⁶⁰ Co [Bq/kg]
679 161	0,280	60000	250 ml	81,7	6,8	5,6
679 191		9000		86,3	7,8	6,7
679 261		60000		79,9	6,8	5,5
679 291		9000		79,3	7,9	6,3
680 161	0,149	60000	120 ml	70,2	6,4	4,5
680 191		9000		76,5	8,0	6,1
680 261		60000		78,8	6,3	5,0
680 291		9000		77,2	8,0	6,2
681 161	0,466	60000	Mar	79,9	6,2	5,0
681 191		9000		78,7	6,7	5,3
Srednja vrednost				78,8	7,1	5,6

Tabela 2. Rezultati merenja otpadnog Al lima na HPGe spektrometru relativne efikasnosti 18 % (D2).

Oznaka spektra	masa [kg]	t [s]	Geometrija	A ⁶⁰ Co [Bq/kg]	MN ⁶⁰ Co [%]	MN ⁶⁰ Co [Bq/kg]
679 162	0,280	60000	250 ml	88,7	6,9	6,1
679 192		9000		89,3	8,4	7,5
679 262		60000		89,6	6,9	6,2
679 292		9000		86,2	8,5	7,3
680 162	0,149	60000	120 ml	69,5	7,2	5,0
680 192		9000		76,7	9,0	6,9
680 262		60000		83,5	7,1	5,9
680 292		9000		82,4	9,2	7,6
681 162	0,466	60000	Mar	86,1	6,9	5,9
681 192		9000		89,5	7,5	6,7
Srednja vrednost				84,1	7,8	6,5

Za svaki od detektora izračunata je srednja vrednost svih rezultata i standardna devijacija koja je, kao doprinos rasturanja rezultata usled nehomogenosti i različitih uslova merenja, uvrštena u ukupan budžet merne nesigurnosti. Dobijene vrednosti su

date u Tabeli 4, zajedno sa ukupnom mernom nesigurnošću (MN_{tot}) za sva tri detektora. Iz Tabele 4. može se videti da su doprinosi mernoj nesigurnosti od samog postupka merenja poredivi sa doprinosom koji mernoj nesigurnosti daje standardna devijacija seta rezultata merenja. Najveći doprinos standardnoj devijaciji se može pripisati nehomogenosti uzorka, s obzirom na to da razlike u rezultatima za istu geometriju ali različito vreme merenja, nisu značajne.

Tabela 3. Rezultati merenja otpadnog Al lima na HPGe spektrometru relativne efikasnosti 50 % (D3).

Oznaka spektra	masa [kg]	t [s]	Geometrija	A ⁶⁰ Co [Bq/kg]	MN ⁶⁰ Co [%]	MN ⁶⁰ Co [Bq/kg]
679 163	0,280	60000	250 ml	84,5	7,4	6,2
679 193		9000		84,1	7,8	6,6
679 263		60000		84,0	7,4	6,2
679 293		9000		82,9	7,8	6,5
680 163	0,149	60000	120 ml	73,9	7,4	5,5
680 193		9000		73,1	8,2	6,0
680 263		60000		80,7	7,4	6,0
680 293		9000		79,8	8,1	6,5
Srednja vrednost				80,4	7,7	6,2

Tabela 4. Rezultati merenja otpadnog Al lima na tri HPGe spektrometra.

Detektor	Asr ⁶⁰ Co [Bq/kg]	MN ⁶⁰ Co [%]	St. dev. [%]	MN _{tot} [%]
D1	78,8	7,1	5,1	8,8
D2	84,1	7,8	7,8	11,0
D3	80,4	7,7	5,7	9,6

4. Zaključak

Radiološka karakterizacija otpadnog materijala važna je sa stanovišta zaštite životne sredine. Zbog specifičnih fizičkih karakteristika otpadnih materijala pri njihovom ispitivanju treba posebno voditi računa o homogenosti pripremljenog uzorka, adekvatnoj kalibraciji detektorskog sistema i uslovima merenja.

U sprovedenom istraživanju, prikazanom u ovom radu, procenjen je uticaj nehomogenosti i vremena merenja uzoraka otpadnog materijala na rezultate merenja. Na osnovu dobijenih rezultata aktivnosti u pojedinačnim merenjima može se zaključiti da budžet merne nesigurnosti treba proširiti za doprinose nehomogenosti i izvršenih korekcija rezultata.

5. Zahvalnica

Rad je finansijski podržan od strane Ministarstva prosvete, nauke i tehnološkog razvoja Republike Srbije (Aneks ugovora, evidencioni broj: 451-03-9/2021-14/ 200017).

6. Literatura

- [1] Zakon o radijacionoj i nuklearnoj sigurnosti i bezbednosti. Sl. glasnik RS br. 95/2018 i 10/2019, 2019.
- [2] Pravilnik o granicama radioaktivne kontaminacije, radne i životne sredine i načinu sprovođenja dekontaminacije. Sl. glasnik br. 38/2011, 2011.
- [3] Pravilnik o kontroli radioaktivnosti robe prilikom uvoza, izvoza i tranzita. Sl. glasnik RS br. 86/19, 2019.
- [4] IAEA, 1989. Measurement of Radionuclides in Food and Environment, A Guidebook. Technical Reports Series No. 295, Vienna.
- [5] CMI, 2017. Radioactive Standard Solutions, ER X, Cert. no. 1035-SE-40844-17 Czech Metrology Institute Prague.
- [6] CMI, 2017a. Radioactive Standard, CBSS 2, Cert. no. 1035-SE-40845-17. Czech Metrology Institute, Prague.
- [7] T. Vidmar. EFFTRAN—a Monte Carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry, *Nucl. Instrument. Method. Phys. Res. A* 50 (3), 2005, 603–608.
- [8] MEFFTRAN, <http://www.ffmpeg.com/MEFFTRAN.zip>.

**TESTING OF RADIONUCLIDE ACTIVITY IN WASTE
MATERIAL - MEASUREMENT UNCERTAINTY BUDGET**

**Ivana VUKANAC, Milica RAJAČIĆ, Velibor ANDRIĆ,
Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Dragana TODORVIĆ,
Gordana PANTELIĆ and Marija JANKOVIĆ**

*Institute of Nuclear Sciences „Vinča“, Institute of national importance for the Republic
of Serbia, University of Belgrade, Belgrade, Serbia, vukanac@vinca.rs,
milica100@vinca.rs, velan@vinca.rs, jnikolic@vinca.rs, beba@vinca.rs,
pantelic@vinca.rs, marijam@vinca.rs*

ABSTRACT

According to the current legislation in the Republic of Serbia, the radiological control of waste materials is performed at border crossings, as well as when there is an intention to dispose these materials in the environment. The gamma ray spectrometry is commonly used for determination of radionuclide content in waste materials. These measurements imply adequate sample preparation in order to achieve the desired measurement geometry for which the efficiency of the gamma spectrometer has been calibrated.

Satisfactory homogeneity is often not possible to achieve in the sample preparation process. Also, the matrix of the measured material in most cases does not correspond to the matrix of the standard used for efficiency calibration of the spectrometer. For these reasons, it is necessary to make certain corrections to the measurement results (efficiency transfer, for example), as well as to expand the measurement uncertainty budget.

The paper presents in detail the procedure for assessing the contribution of inhomogeneity of the sample to the measurement uncertainty, as well as the contribution that the efficiency transfer and coincidence summing corrections introduce to the measurement uncertainty budget.