

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.

**DUGOVREMENSKA STABILNOST KALIBRACIONIH STANDARDA
RAZLIČITIH MATRIKSA U GAMASPEKTROMETRIJI**

**Mirjana ĐURAŠEVIĆ, Aleksandar KANDIĆ, Ivana VUKANAC,
Igor ČELIKOVIĆ, Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ,
Tamara MILANOVIĆ i Zorica OBRADOVIĆ**

*Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke “Vinča”, Institut od nacionalnog
značaja, Beograd, Srbija, mirad@vin.bg.ac.rs, akandic@vin.bg.ac.rs,
vukanac@vin.bg.ac.rs, icelikovic@vin.bg.ac.rs, natasa.nikolic@vin.bg.ac.rs,
tmilanovic@vin.bg.ac.rs, zoobradovic71@vin.bg.ac.rs*

SADRŽAJ

Da bi se postigla tačnost i preciznost dobijenih rezultata pri gamaspektrometrijskom merenju uzoraka iz životne sredine neophodno je obezbediti odgovarajuće kalibracione standarde. Imajući u vidu da i sami standardi vremenom gube na kvalitetu zbog degradacije matriksa, od izuzetne je važnosti praćenje stabilnosti standarda koji se koriste. U ovom radu prikazani su rezultati ispitivanja karakteristika krivih efikasnosti u odnosu na starenje matriksa. Napravljeni su radni kalibracioni standardi sa tri različita matriksa (aktivni ugalj, zemlja i pesak), upakovani u cilindričnu geometriju kutijice od 120 ml i 250 ml i mereni na poluprovodničkom HPGe detektoru. Isti standardi ponovo su mereni nakon četiri godine u kontakt geometriji u odnosu na detektor i izvrnuto sa poklopcem kutijice ka detektoru. Analiza dobijenih rezultata pokazala je odstupanja u vrednostima efikasnosti, što ukazuje na degradaciju svih standarda u smislu narušavanja njihove homogenosti. Takvi standardi se ne mogu smatrati pouzdanim za korišćenje.

1. Uvod

U okviru sistema zaštite životne sredine veliki značaj zauzimaju programi monitoringa i gamaspektrometrijska metoda merenja kao jedna od najzastupljenijih metoda merenja. Određivanje sadržaja radionuklida u uzorcima iz životne sredine gamaspektrometrijskom metodom je zahtevan zadatak, imajući u vidu da se uglavnom radi o niskim koncentracijama. U takvim uslovima još više dolazi do izražaja dobro i precizno određena kriva efisnosti, koja je složena funkcija energije, karakteristika spektrometra, geometrije merenja, zapremine i gustine uzorka. Najbolji slučaj je da matriks merenog uzorka odgovara matriksu standarda. Laboratorije koje se bave ovakvim merenjima trebalo bi da imaju na raspolaganju kalibracione standarde sa matriksima odgovarajućih hemijskih sastava i gustina, pri čemu je obezbeđena sledivost do međunarodnih standarda. Jedna od opcija je kupovina gotovih standarda od laboratorija sertifikovanih za njihovu pripremu. Laboratorije koje se bave gamaspektrometrijom u okviru Instituta za nuklearne nauke “Vinča” opredelile su se za pripremu radnih kalibracionih standarda za one geometrije i matrikse koji se najviše koriste u merenjima.

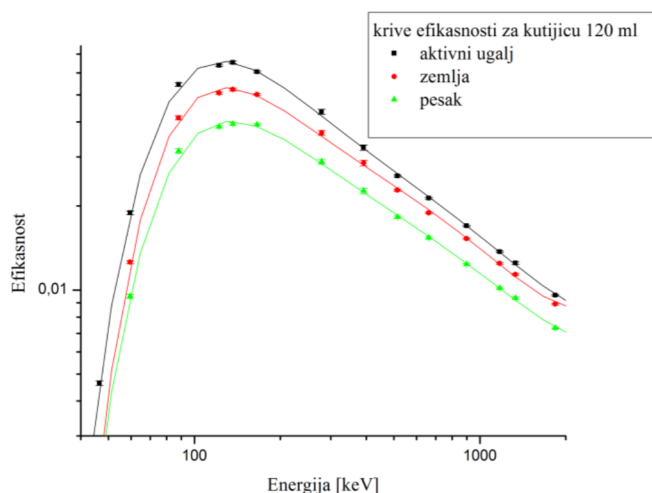
Prvi radni kalibracioni standardi pripremljeni su 2005. godine za matrikse mineralizovane trave, mleka u prahu, zemlje i peska, a stabilnost ovih standard analizirana je posle pet godina. Tada se pokazalo da neki matriksi, kao što je mleko u prahu, pokazuju značajnu degradaciju posle određenog vremenskog perioda [2].

Novi kalibracioni standardi pripremljeni su 2012. godine u skladu sa preporukama Međunarodne agencije za atomsku energiju (International Atomic Energy Agency –

IAEA), a iskustvo prethodnih analiza uticalo je na izbor matriksa [1, 2]. Dobijene krive efikasnosti korišćene su u rutinskim merenjima, kao i u međunarodnim interkompartivnim merenjima organizovanim od strane Instituta za referentne materijale i merenja (Institute for Reference Materials and Measurements – IRMM) i IAEA. Dobri rezultati postignuti pri ovim interkomparacijama pokazuju da su primenjene metode pripreme radnih kalibracionih standarda i određene krive efikasnosti validne i pouzdane. Nakon četiri godine isti standardi su ponovo mereni, i uočena su određena odstupanja u efikasnosti onih radionuklida koji su mogli da se detektuju. Zbog toga je sprovedena analiza stabilnosti korišćenih standarda, a rezultati te analize su prikazani u ovom radu.

2. Priprema kalibracionih standard i merenje standard 2012. godine

Da bi se obuhvatio širok spektar gustina i hemijskih sastava pripremljeni su kalibracioni standardi sa tri vrste matriksa (aktivni ugalj - 0.45 g/cm^3 , zemlja - 0.75 g/cm^3 i pesak - 1.07 g/cm^3) u dve geometrije (PVC kutijice od 120 ml i 250 ml). Svi standardi pripremljeni su dodavanjem gravimetrijski određene zapremine razblaženog standardnog sertifikovanog rastvora u određenu količinu aktivnog uglja (metoda po Taskaevoj) [3]. Sertifikovani rastvor sa smešom radionuklida (^{241}Am , ^{109}Cd , ^{139}Ce , ^{57}Co , ^{60}Co , ^{137}Cs , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr i ^{88}I) nabavljen je od Češkog metrološkog instituta (Czech metrology institute - CMI) [4]. Male količine aktivnog uglja sa odgovarajućom količinom sertifikovanog rastvora dodate su u pripremljeni matriks i homogenizovane [5].



Slika 1. Krive efikasnosti za različite matrikse (aktivni ugalj, zemlja i pesak) za cilindrične uzorke kutijice 120 ml izmerene 2012. godine.

Svi pripremljeni standardi izmereni su u kontakt geometriji na poluprovodničkom HPGe spektrometru ORTEC GEM-30 (rezolucije: 1.8 keV; relativne efikasnosti: 30 % na 1332.5 keV). Odbroji ispod posmatranih pikova korigovani su na fon (odbroj u blenku), mrtvo vreme i efekat koincidentnog sumiranja. Korekcija na koincidentno sumiranje je izvršena primenom metode Debertin i Schötzig [6]. Nakon analize snimljenih spektara i određivanja efikasnosti na datim energijama, uz korišćenje tabelarnih podataka, dobijene su kalibracione krive ($\varepsilon = e^{-P(\ln E)}$), gde je ε efikasnost detekcije, E energija, a

$P(\ln E)$ polinom petog stepena) [7, 5]. Zavisnost efikasnosti od gustine matriksa (aktivni ugalj, zemlja i pesak) za geometriju cilindrične kutijice od 120 ml prikazana je na slici 1. Krive efikasnosti su pokazale da efikasnost detekcije snažno zavisi od gustine matriksa standarda.

3. Merenja standarda u 2016. godini i analiza dobijenih rezultata

Tokom 2016. godine neki od zapreminskih standarda koji su pripremljeni 2012. godine ponovo su mereni na istom detektoru. Merenja su izvršena pod istim mernim uslovima (geometrija merenja, pojačanje i visoki napon) kao i 2012 godine. Sa dobijenih spektara analizirani su sledeći radionuklidi i njihove energije (^{241}Am – 59.54 keV; ^{57}Co – 122.06 keV; ^{137}Cs – 661.66 keV; ^{60}Co – 1173.237 keV i 1332.501 keV), dok su drugi kratkoživuži radionuklidi davali manje definisane pikove (sa značajnom statističkom greškom) u spektrima, tako da nisu uzeti u razmatranje. Rezultati su, ipak, ukazali na izvesnu degradaciju standarda, jer su uočene neke neočekivane promene u dobijenim vrednostima efikasnosti. Da bi se ispitale karakteristike standarda (dugovremenska stabilnost), svi posmatrani standardi su izmereni i izvrnuti naopačke (poklopac kutijice do detektora). U Tabeli 1. su prikazane vrednosti efikasnosti za posmatrane energije i standarde iz 2012. godine i 2016. godine u svim geometrijama merenja.

Analiza dobijenih rezultata obuhvata poređenje dobijenih efikasnosti za standarde merene 2016. godine sa efikasnostima istih standarda merenih 2012. godine, i poređenje efikasnosti istih standard merenih normalno i naopačke (Tabela 1). Uočeno je da su vrednosti efikasnosti dobijene u 2016. godini bile uglavnom niže u poređenju sa onima dobijenim u 2012. godini, osim kod standarda peska gde su sve vrednosti više. Više vrednosti efikasnosti ukazuju na to da je došlo do taloženja radioaktivnosti na dno kutijice, dok je kod drugih standarda došlo do grupisanja čestica negde oko sredine kutijice. Najmanje odstupanje je uočeno kod standarda zemlje 120 ml (1.3 %), dok je najveće odstupanje kod standarda pesak 250 ml (12.8 %). Higroskopnost materijala koji se koristi kao matriks standarda je takođe bitna karakteristika koja utiče na dugovremensku stabilnost standard. Svi materijali su manje ili više higroskopni, što dovodi do zgrudvavanja matriksa ili bubrenja čestica, što je slučaj kod peska. Poređenje efikasnosti istih standarda merenih normalno i naopačke ukazuje na narušenu homogenost standarda. Dobijeni rezultati pokazuju da su najmanja odstupanja kod standarda zemlje 120 ml (ne prelaze 5 %).

Ako posmatramo zavisnost efikasnosti od gustine matriksa, teško je utvrditi da li se i koliko ta zavisnost promenila, iz razloga što su 2016. godine analizirane efikasnosti sprovedene za mali broj energija gama zračenja.

4. Zaključak

Radni kalibracioni standardi različitih matriksa (aktivni ugalj, zemlja i pesak) i geometrije cilindrične kutijice od 120 ml i 250 ml pripremljeni su i korišćeni 2012. godine, a ponovo izmereni 2016. godine. Analizom dobijenih rezultata zaključeno je da dobijene vrednosti efikasnosti pokazuju određena odstupanja u odnosu na vrednosti kada su radni standardi napravljeni, što dovodi do degradacije krive efikasnosti dobijene korišćenjem takvih standard. Takvi standardi se, nakon određenog vremenskog perioda, ne mogu smatrati pouzdanim, posebno kada se zahtevaju precizna i tačna merenja.

Tabela 1. Efikasnosti standarda merenih 2012 i 2016 u normalnoj i izvrnutoj poziciji kao i odstupanja u procentima.

<i>E</i> [keV]	ϵ_{norm} (2012)	ϵ_{norm} (2016)	ϵ_{izv} (2016)	Δ_1 [%]*	Δ_2 [%]**
Standard aktivni ugalj kutijica 120 ml					
59,54	0,018901	0,019474	0,020020	3,0	2,8
122,06	0,063840	0,061240	0,061872	4,1	1,0
661,66	0,021332	0,022158	0,020589	3,9	7,1
1173,23	0,013725	0,012852	0,012149	6,4	5,5
1332,49	0,012489	0,011586	0,010993	7,2	5,1
Standard aktivni ugalj kutijica 250 ml					
59,54	0,012230	0,012409	0,012814	1,5	3,3
122,06	0,042530	0,041726	0,044660	1,9	7,0
661,66	0,015003	0,015388	0,016067	2,8	4,4
1173,23	0,009506	0,009203	0,009622	3,2	4,6
1332,49	0,008606	0,008337	0,008688	3,1	4,2
Standard zemlja kutijica 120 ml					
59,54	0,012592	0,012762	0,012601	1,3	1,3
122,06	0,050778	0,049789	0,050635	1,9	1,7
661,66	0,018877	0,019386	0,018541	2,7	4,4
1173,23	0,012458	0,011567	0,011133	7,1	3,8
1332,49	0,011373	0,010530	0,010094	7,4	4,1
Standard zemlja kutijica 250 ml					
59,54	0,008400	0,008076	0,007635	3,9	5,5
122,06	0,038064	0,035394	0,032516	7,0	8,1
661,66	0,015289	0,014354	0,013635	6,1	5,0
1173,23	0,009765	0,008800	0,008323	9,9	5,4
1332,49	0,008892	0,008000	0,007593	10,0	5,1
Standard pesak kutijica 120 ml					
59,54	0,009512	0,010431	0,009583	9,7	8,1
122,06	0,038422	0,041868	0,040340	9,0	3,6
661,66	0,015394	0,016437	0,016001	6,8	2,7
1173,23	0,010158	0,009845	0,009810	3,1	0,3
1332,49	0,009351	0,008978	0,008925	4,0	0,6
Standard pesak kutijica 250 ml					
59,54	0,006272	0,006744	0,007281	7,5	8,0
122,06	0,027187	0,030679	0,028553	12,8	7,0
661,66	0,011541	0,012351	0,012193	7,0	1,3
1173,23	0,007471	0,007776	0,007600	4,1	2,3
1332,49	0,006824	0,007065	0,006924	3,6	2,0

$$* \Delta_1 = \left| \frac{\epsilon_{norm}(2012) - \epsilon_{norm}(2016)}{\epsilon_{norm}(2012)} \right| \times 100$$

$$** \Delta_2 = \left| \frac{\epsilon_{norm}(2016) - \epsilon_{izv}(2016)}{\epsilon_{norm}(2016)} \right| \times 100$$

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] *Measurement of Radionuclides in Food and Environment*, A Guidebook. Technical Reports Series No. 295, IAEA, Vienna, 1989.
- [2] A. Kandić, I. Vukanac, M. Đurašević, D. Novković, B. Šešlak, Z. Milošević, On the long-term stability of calibration standards in different matrices, *Applied Radiation and Isotopes* 70, 2012, 1860–1862.
- [3] M. Taskaeva, E. Taskaev, I. Penev, On the preparation of efficiency standards for gamma -ray spectrometers, *Applied Radiation and Isotopes* 47, 1996, 981–990.
- [4] *Radioactive Standard Solutions, ER X, Cert. No. 9031-OL- 426/12*, CMI (Czech Metrological Institute), Prague, 2012.
- [5] I. Vukanac, M. Đurašević, A. Kandić, D. Novković, L. Nađđerđ, Z. Milošević, Experimental determination of the HPGe spectrometer efficiency curve. *Applied Radiation and Isotopes* 66, 2008, 792–795.
- [6] K. Debertin, U. Schötzig, *Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren*, PTB-Bericht PTBRa-24, Braunschweig, 1990.
- [7] Decay Data Evaluation Project. http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm, 2017.

**ON THE LONG-TERM STABILITY OF THE CALIBRATION STANDARDS IN
DIFFERENT MATRICES FOR GAMMA-RAY SPECTROMETRY**

**Mirjana ĐURAŠEVIĆ, Aleksandar KANDIĆ, Ivana VUKANAC,
Igor ČELIKOVIĆ, Nataša MLADENOVIĆ NIKOLIĆ,
Tamara MILANOVIĆ and Zorica OBRADOVIĆ**

*University of Belgrade, "Vinca" Institute of Nuclear Sciences, National Institute of the
Republic of Serbia, Belgrade, Serbia, mirad@vin.bg.ac.rs, akandic@vin.bg.ac.rs,
vukanac@vin.bg.ac.rs, icelikovic@vin.bg.ac.rs, natasa.nikolic@vin.bg.ac.rs,
tmilanovic@vin.bg.ac.rs, zoobradovic71@vin.bg.ac.rs*

ABSTRACT

The gammaspectrometric measurement of the environmental samples requires the use of appropriate calibration standards in order to achieve the accuracy and precision of the obtained results. Taking into account that the standards lose their quality over time due to the degradation of the matrix, it is extremely important to keep tracking their stability. Comprehensive reconsideration on efficiency curves with respect to the ageing of calibration standards is presented in this paper. Spiked laboratory standards of different matrices (active coal, soil and sand) were prepared in two measurement geometries, PVC cylindrical 120 ml and 250 ml boxes. The same standards were measured after four years in contact geometry on the detector and upside down (box cover towards the detector). The analysis of the obtained results showed discrepancies in efficiency values and it indicates that the homogeneity of standards is disturbed. Such standards are not reliable for use.