

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



**ЗБОРНИК
РАДОВА**

**XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
Сребрно језеро
27- 29. септембар 2017. године**

**Београд
2017. године**

**SOCIETY FOR RADIATION PROTECTION OF
SERBIA AND MONTENEGRO**



PROCEEDINGS

**XXIX SYMPOSIUM DZZSCG
Srebrno jezero
27- 29. September 2017**

**Belgrade
2017**

ЗБОРНИК РАДОВА

XXIX СИМПОЗИЈУМ ДЗЗСЦГ
27-29.09.2017.

Издавачи:

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

За извршног издавача:

Др Борислав Грубор

Уредници:

Др Јелена Станковић Петровић
Др Гордана Пантелић

ISBN 978-86-7306-144-3

©Institut za nuklearne nauke „Vinča“

Техничка обрада:

Јелена Станковић Петровић, Гордана Пантелић

Штампа:

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

Тираж:

150 примерака

Година издања:

Септембар 2017.

UTICAJ KALIBRACIJE EFIKASNOSTI NA ODREĐIVANJE KONCENTRACIJE ${}^7\text{Be}$ I ${}^{210}\text{Pb}$ U VAZDUHU

Milica RAJAČIĆ, Dragana TODORVIĆ, Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Ivana VUKANAC, Gordana PANTELIĆ, Nataša SARAP, Marija JANKOVIĆ

Univerzitet u Beogradu, Institut za nuklearne nauke "Vinča", Laboratorija za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine, Beograd, Srbija, milica100@vinca.rs, beba@vinca.rs, jnikolic@vinca.rs, Vukanac@vinca.rs, pantelic@vinca.rs, natasas@vinca.rs, marijam@vinca.rs

SADRŽAJ

U ovom radu je prikazan pregled metoda kalibracije efikasnosti detektora za gamaspektromertijsko određivanje koncentracije ${}^7\text{Be}$ (477,6 keV) i ${}^{210}\text{Pb}$ (46 keV) u uzorcima vazduha u Laboratoriji za zaštitu od zračenja, Instituta "Vinča" u periodu od 1994. godine do danas. Za prvu procenu efikasnosti korišćeni su set tačkastih referentnih materijala (Coffret d'etalon ECGS-2, Sacle, Franse) i planšeta punjena aerosolnim prahom dobijenog za interkomparaciju u okviru projekta SEV, a od 2008. godine u upotrebi su laboratorijski referentni materijali u matriksu aerosolnog praha u geometriji fiole, pripremljeni sertifikovanim rastvorom radionuklida. Pređenjem vrednosti koncentracija ${}^7\text{Be}$ i ${}^{210}\text{Pb}$ dobijenih korišćenjem pojedinačnih metoda kalibracije, pokazan je njihov uticaj na rezultat merenja.

1. UVOD

U Laboratoriji za zaštitu od zračenja i zaštitu životne sredine ("Zaštita"), Instituta "Vinča", gamaspektromertijska metoda je u upotrebi od 1994. godine i od tada do danas, u skladu sa geometrijom merenja i dostupnošću referentnih materijala, usklađivali su se i načini određivanja efikasnosti detektora.

O značaju kalibracije efikasnosti detektora na konačan rezultat merenja svedoče brojni radovi na tu temu [1, 2, 3]. U ovom radu biće prikazan pregled metoda kalibracije efikasnosti detektora za određivanje koncentracije radionuklida u uzorcima vazduha korišćenih u laboratoriji "Zaštita" od uvođenja gamaspektrometrijske metode. Sam postupak uzorkovanja i pripreme suštinski nije menjan i zasniva se na prikupljanju aerosolnih čestica iz vazduha na filter papirima pomoću pumpi za vazduh i njihovoj daljoj mineralizaciji na 380°C. Međutim, geometrija merenja uzorka i dostupnost referentnih materijala se vremenom menjala [4].

U početku su uzorci pakovani u planšete prečnika 23mm, dubine 3mm i fiksirani alkoholom. U skladu sa tim, prva procena efikasnosti (tabele 1 i 2, način broj 1, aktivnost 1) urađena je pomoću seta tačkastih referentnih radioaktivnih materijala ${}^{133}\text{Ba}$, ${}^{57,60}\text{Co}$ i ${}^{137}\text{Cs}$, aktivnosti reda veličine 10^3 - 10^4 Bq na dan 25.11.1977. god. (Coffret d'etalon ECGS -2, Sacle, Franse) i planšete punjene aerosolnim prahom dobijenog za interkomparaciju u okviru projekta SEV, koji je sadržao ${}^{137}\text{Cs}$, ${}^{54}\text{Mn}$, ${}^{65}\text{Zn}$, ${}^{57}\text{Co}$ i ${}^{40}\text{K}$ i čije su aktivnosti na dan 09.03.1988. god. bile u intervalu od (5-207) Bq [5].

Da bi se odredila efikasnost na energiji 477,6 keV (${}^7\text{Be}$), snimljena je kalibraciona kriva efikasnosti za geometriju tačkastog izvora, i određena razlika efikasnosti na energijama 477,6 keV i 661 keV. Poznavajući efikasnost na energiji od 661 keV u geometriji plašete sa aerosolnim prahom kao matriksom, i pretpostavljajući da je nagib kalibracione krive seta tačkastih referentnih radioaktivnih materijala u intervalu energija od

477,6 keV do 661 keV isti, kao nagib kalibracione krive u geometriji planšete sa aerosolnim prahom, računskim putem se odredila efikasnost na energiji 477,6 keV u geometriji planšete [5].

Npr. efikasnost na energiji 477,6 keV i 661 keV u geometriji tačkastog referentnog radioaktivnog materijala, iznosi 3,45% i 2,90% respektivno. Razlika efikasnosti je 0,55%, a efikasnost na energiji 661 keV u geometriji planšete sa aerosolnim prahom kao matriksom, iznosi 2,08%. Na osnovu ranije izložene pretpostavke, efikasnost na energiji 477,6 keV u geometriji planšete bila bi $2,08\% + 0,55\% = 2,63\%$. Merna nesigurnost, na osnovu ovako određene energetske efikasnosti, procenjena je na 20%. [5]

U oblasti niskih energija pojavljuje se problem kalibracije detektora, posebno do 200 keV, zbog velikog nagiba kalibracione krive u oblasti niskih energija. Kalibracija detektora na energiji od 46 keV (^{210}Pb) urađena je snimanjem kalibracione krive efikasnosti referentnog radioaktivnog materijala oblika filter papira IAEA-083, radijusa 5,5 cm, na kome su bili nakapani ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{133}Ba , ^{137}Cs i ^{210}Pb , ukupne aktivnosti od 4425 Bq na dan 01.01.1986. godine. Efikasnost detektora na energiji od 46 keV, određena na ovaj način, iznosila je 13,3% [5].

Od 2008. godine, mineralizovani filter papiri se pakuju u fiole prečnika 30 mm i visine 70 mm. Jedan od glavnih razloga zašto se sa planšete prešlo na pakovanje u fiole je taj što fiola, zbog svoje visine i mogućnosti zatvaranja, eliminiše gubitak dela uzorka i potrebu za njegovim fiksiranjem. Da bi kalibraciona kriva što više odgovarala realnim uzorcima, izrađuju se sekundarni referentni radioaktivni materijali matriksa aerosolnog praha u geometriji fiole, dobijeni od primarnih referentnih radioaktivnih materijala oznaka 9031-OL-116/08 (korišćen u periodu 2008-2012) i 9031-OL-427/12 (period upotrebe 2012-danas) proizvedenih od strane češkog Instituta za metrologiju (the Czech Metrological Institute, Inspectorate for Ionizing Radiation). Oba rastvora primarnih referentnih materijala sadržala su: ^{210}Pb , ^{241}Am , $^{57,60}\text{Co}$, ^{137}Cs , ^{113}Sn , ^{139}Ce , ^{85}Sr , ^{109}Cd , ^{88}Y i ^{203}Hg . Efikasnosti detektora na energijama 46 keV i 477,6 keV prikazane su u tabelama 1 i 2, respektivno, kao načini kalibrisanja broj 2 i 3, respektivno za periode 2008-2012. i 2012-danas.

Cilj rada je da se ispita da li je i u kolikoj meri postignuto poboljšanje u merenju radioaktivnosti vazduha modifikovanjem metoda kalibracije.

2. METODE

Na HPGe detektoru firme Canberra, efikasnosti 18%, u trajanju od 60.000 s, izmeren je uzorak aerosolnog praha, uzorkovanog pomoću sistema za uzorkovanje vazduha tokom aprila 2017. godine, na lokaciji Zlatibor. Sakupljeni filter papiri (Whatman 41, veličina pore 20-25 μm , relativne efikasnosti 82%), mineralizovani su na 380°C i spakovani u geometriju fiole. Obrada spektra izvršena je softverskim paketom GENIE 2000 i na osnovu izmerenih površina ispod spektralnih linija na odgovarajućim energijama detektovanih radionuklida i upotrebom različitih vrednosti efikasnosti detektora (dobijenih na tri različita načina kalibracije), izračunate su tri različite koncentracije aktivnosti svakog od detektovanih radionuklida (Formula 1). Uticaj različitih prečnika geometrija pakovanja smanjen je na dva različita načina: 1) prepakivanjem uzorka u nekada korišćenu planšetu i njegovim ponovnim merenjem i 2) uključivanjem u proračun efikasnosti i transfer faktore za različite geometrije merenja, dobijene upotrebom softvera za transfer efikasnosti - EFFTRAN [2].

$$A = \frac{N}{E_{ff} * P_{\gamma} * t * V * 0,82} \quad [1]$$

gde su:

A - aktivnost radionuklida po m^3 vazduha (Bq/m^3),

N - površina ispod spektralne linije (imp),

E_{ff} - efikasnost detektora na odgovarajućoj energiji (%),

P_{γ} - verovatnoća emisije fotona na odgovarajućoj energiji (%),

t - vreme merenja (s),

V - merena zapremina vazduha (m^3),

0,82 - efikasnost filter papira.

3. REZULTATI I DISKUSIJA

Merenjem uzorka aerosolnog praha (zapremine $29132,03 m^3$), spakovanog u geometriju fiole, detektovane su linije ne energijama 46 keV i 477,6 keV, koje odgovaraju emisio-nim energijama radionuklida ^{210}Pb i 7Be , respektivno. Na ovim energijama, površine ispod spektralnih linija su iznosile 3775 imp za ^{210}Pb i 19711 imp za 7Be . Rezultati određivanja koncentracije aktivnosti (Bq/m^3) svakog od detektovanih radionuklida, na osnovu Formule 1 i vrednosti efikasnosti, dobijenih pomoću standarda korišćenih od 2008. godine do danas, prikazani su u tabelama 1 i 2 (načini br. 2 i 3, aktivnost 1).

Kada je mineralizovani aerosolni prah iz fiole prebačen u planšetu (uz gubitak od 0,89 %) i ponovo izmeren, na istom detektoru u istom vremenskom trajanju, nove površine ispod spektralnih linija iznosile su 3723 na 46 keV i 18911 na 477,6 keV. Izračunate aktivnosti radionuklida koje bi bile dobijene u periodu od 1994. do 2008. godine prikazane su u tabelama 1 i 2 (način br. 1, aktivnost 1).

Takođe, transfer faktori prelaska sa geometrije fiole na geometriju planšete, dobijenih pomoću simulacionog softvera EFFTRAN, na osnovu njih su izračunate vrednosti površina ispod spektralnih linija koje bi bile dobijene da se uzorak koji je meren u fiole nalazio u planšeti prikazani su u tabelama 1 i 2 (način br. 1, transfer faktori određeni EFFTRAN-om). Procenjene aktivnosti detektovanih radionuklida, koje bi bile dobijene u periodu do 2008. godine, primenom ovih transfer faktora i Formula 1 i 2, prikazane su u tabelama 1 i 2 (način br. 1, aktivnost 2). Prednost ovog postupka procene aktivnosti je isključenje prebacivanja uzorka iz jedne u drugu geometriju merenja (izbegava se i gubitak dela uzorka), kao i ponovno merenje.

$$N_{planšeta} = N_{fiola} * \frac{\left(\frac{V_{planšeta}}{V_{fiola}}\right)}{T_f} \quad [2]$$

U svim slučajevima, aktivnost 7Be je, preko jednačine radioaktivnog raspada (Formula 3), izračunata na sredinu meseca uzorkovanja (15. april 2017. godine).

$$A_0 = A * \exp \left(\ln 2 * \frac{\Delta t}{53,29 \text{ dana}} \right) \quad [3]$$

Табела 1. Ефикасности детектора и одговарајуће активности на енергији од 46 keV

^{210}Pb (46 keV, $P_\gamma = 4,252\%$)			
Način kalibrisanja	1	2	3
Period	1994 - 2008	2008 - 2012	2012 - 2017
Originalna vrednost Eff (%)	13,3	13,62	13,12
Aktivnost 1 (mBq/m³)	0,475	0,466	0,484
Transfer faktor	1,023	1	1
Aktivnost 2* (mBq/m³)	0,467	0,466	0,484

* *odbroj ispod površine spektralne linije određen je pomoću EFFTRAN-a*

Табела 2. Ефикасности детектора и одговарајуће активности на енергији од 477,6 keV

^7Be (477,6 keV, $P_\gamma = 10,39\%$)			
Način kalibrisanja	1	2	3
Period	1994 - 2008	2008 - 2012	2012 - 2017
Originalna vrednost Eff (%)	2,6	3,003	3,090
Aktivnost 1 (mBq/m³)	7,97	6,77	6,58
Transfer faktor	0,9454	1	1
Aktivnost 2* (mBq/m³)	8,71	6,77	6,58

* *odbroj ispod površine spektralne linije određen je pomoću EFFTRAN-a*

Dobijeni rezultati pokazuju da se vrednosti određivanja aktivnosti ^{210}Pb na načine koji su se menjali od perioda uvođenja gamaspektrometrije u laboratoriju "Zaštita" do danas, ne razlikuju više od 2%. Takođe, i relativna greška aktivnosti procenjene simulacionim softverom u odnosu na vrednost dobijenu merenjem uzorka u planšeti, iznosi manje od 2%.

Kod određivanja aktivnosti ^7Be do 2008. godine, dobijeno je znatno veće relativno odstupanje od rezultata dobijenih u narednim periodima (~ 20%). Međutim, i sama procena merne nesigurnosti u tom periodu se procenjivala na 20% [5], dok su sadašnje procene manje od 10%. Interval izmerenih koncentracija aktivnosti ^7Be za period do 2008. godine iznosi (6,38 - 9,56), dok je sadašnja procena koncentracije aktivnosti ^7Be u istom uzorku (6,12 - 7,04). Uočava se da između ova dva intervala postoji presek, što nam govori da, sa nešto većom mernom nesigurnošću, i tadašnji rezultati odgovaraju vrednostima koje bi bile dobijene na osnovu trenutnih metoda procene efikasnosti detektora.

Takođe, i kada je u pitanju simulaciono određivanje nekadašnje efikasnosti na energiji 477,6 keV, rezultati se razlikuju više nego na energiji 46 keV. U ovom slučaju, relativna razlika između procenjene i izmerene vrednosti u planšeti, iznosila je 8,5%.

Najdrastičnija razlika dobijena je između relativnih grešaka simulaciono dobijenih vrednosti za geometriju planšete i vrednosti dobijenih merenjem u geometriji fiole. Na energiji od 46 keV, ova razlika je iznosila 3,6%, dok je na 477,6 keV prelazila 24%.

4. ZAKLJUČAK

Na osnovu ovog ispitivanja, može se reći da je poređenje rezultata merenja koncentracije aktivnosti ^{210}Pb iz perioda 1994-2008. godine sa rezultatima iz kasnijih perioda, relevantno, jer se rezultati dobijeni upotrebom efikasnost detektora na 46 keV određenih u tim periodima ne razlikuju više od 2%, a to je manje od procene današnje merne nesigurnosti, koja iznosi ~ 8%.

Razlike u određivanju efikasnosti na 477,6 keV unose odstupanje u rezultatu merenja koncentracije aktivnosti ^7Be od blizu 20%. Međutim, procenjena merna nesigurnost u periodu 1994-2008. godine iznosila je 20% i u okviru tog opsega, tadašnji rezultati ulaze u sadašnji interval merne nesigurnosti koji se procenjuje na 10%.

Takođe, ukoliko se uporede simulirane vrednosti, sa vrednostima dobijenim u periodu 1994-2008. godine, kao i sa vrednostima izmerenim na osnovu sadašnje procene efikasnosti detektora, uočavaju se manja relativna odstupanja na energiji od 46 keV (2% i 3,6%, respektivno) nego što je to slučaj na energiji od 477,6 keV (8,5% i 24%, respektivno). Može se reći da u okvirima sadašnje procene merne nesigurnosti na energiji koja odgovara emisiji ^7Be (~ 10%), transfer efikasnosti softverom EFFTRAN daje dobre rezultate, međutim, sama razlika u prelasku sa geometrije merenja fiole na planšetu unosi razliku koja prelazi 20% koliko iznosi odstupanje od stvarno izmerenih vrednosti u ovim geometrijama merenja.

5. ZAHVALNICA

Ovaj rad je finansijski podržan od strane Ministarstva za prosvetu, nauku i tehnološki razvoj Republike Srbije, u okviru projekta broj III43009.

6. LITERATURA

- [1] Jelena Krneta Nikolić, Milica Rajačić, Dragana Todorović, Marija Janković, Nataša Sarap, Gordana Pantelić, CALIBRATION OF HPGE DETECTORS FOR ENVIRONMENTAL SAMPLES USING GEANT4 SIMULATION, The Third International Conference on Radiation and Dosymetry in Various Fields of Research, Proceedings, Izdavač: University of Niš, Faculty of Electronic Engineering, Editor Prof. Dr Goran Ristić, Proceedings, ISBN 978-86-80300-01-6, link: www.rad2015.elfak.rs, 08-12 Jun, 2015, Budva, Montenegro, p.291-294.
- [2] J. D. Nikolic, T. Vidmar, D. Jokovic, M. Rajacic, D. Todorovic, Calculation of HPGe efficiency for environmental samples: comparison of EFFTRAN and GEANT4 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 763 (2014) 347–353
- [3] Ivan Petrović, Milica Rajačić, Nataša Sarap, Dragana Todorović, Marija Janković, Jelena Krneta Nikolić, Gordana Pantelić; Uticaj načina pripreme, dužine merenja i kalibracije detektora na određivanje specifične aktivnosti radionuklida u uzorcima

- mineralnih đubriva; XXVIII Simpozijum DŽŽ SCĐ, Zbornik radova, 30.09-02.10.2015, Vršac, Ed. G. Pantelić, ISBN 978-86-7306-135-1, pp. 470-474
- [4] Rajačić M.M.¹, Todorović D.J.¹, Krneta Nikolić J.D.¹, Janković M.M.¹, Djurdjević V.S.²; The Fourier analysis applied to the relationship between ⁷Be activity in the Serbian atmosphere and meteorological parameters; Environmental Pollution (2016), DOI:10.1016/j.envpol.2016.06.068
- [5] Dragana Todorović, Doktorska disertacija "Distribucija prirodnih (⁷Be, ²¹⁰Pb) i proizvedenih (¹³⁷Cs) radionuklida u prizemnom sloju atmosfere i slobodno nataloženoj prašini u području grada Beograda od 1985-1998. god.", Univerzitet u Beogradu, Fizički fakultet (2000)

INFLUENCE OF EFFICIENCY CALIBRATION ON DETERMINATION OF ⁷BE AND ²¹⁰PB CONCENTRATION IN AIR

Milica RAJAČIĆ, Dragana TODOROVIĆ, Jelena KRNETA NIKOLIĆ, Ivana VUKANAC, Gordana PANTELIĆ, Nataša SARAP, Marija JANKOVIĆ
University of Belgrade, Institute of Nuclear Sciences "Vinča", Radiation and Environmental Protection Department, 11000 Belgrade, Serbia, milica100@vinca.rs, beba@vinca.rs, jnikolic@vinca.rs, vukanac@vinca.rs, pantelic@vinca.rs, natasas@vinca.rs, marijam@vinca.rs

ABSTRACT

This paper presents a review of efficiency calibration methods for gamma spectrometry detectors used in determination of ⁷Be (477,6 keV) and ²¹⁰Pb (46 keV) concentration in air samples, conducted in Radiation and Environment Protection Laboratory, Institute "Vinča", in the period from year 1994. up to date. The first efficiency estimate was performed using a set of point sources (Coffret d'etalon ECGS-2, Saclé, France), then a planchette, filled with aerosol dust obtained for the Proficiency test conducted within the framework of SEV project, while since year 2008. the laboratory reference materials are in use - the aerosol dust matrix placed in the vial, prepared by spiking with the certified radioactive solution. By comparing the values for ⁷Be and ²¹⁰Pb concentrations obtained using each of the mentioned calibration methods, the influence of the calibration method on the measurement results was shown.