

Paks Körmérés 2013: Körkép a hazai gamma-spektroszkópiáról

Pintér Tamás, Simonits András* és Menyhárt Ádám

MVM Paksi Atomerőmű Zrt

**MTA-EK NAL*

XXXIX. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam
Hajdúszoboszló
2014. május 13-15.

Miért?

- NAT akkreditálás
- Önértékelés
- Hazai helyzet
- Felszereltség
- Megbízhatóság
- Kevertizotópos etalonforrás



Szervezés:

- Nincs ilyen jellegű körmérés (környezeti mintákra van)
- PA vállalta a sugárforrás elkészítését és szétküldését
- 1 liter törzsoldat készült OMH standardokból

Izotópforrás kódja	Anyagminta fajtája	Mennyiség, g	Radio-nuklid	Aktivitás, MBq	Vonatkoztatási időpont	Megjegyzés
BA-OMH-2	folyadék etalon, ampullában	5,0185	^{133}Ba	1,992	2000.07.1	
Co-OMH-4	radioaktív oldat üvegampullában	1,2930±0,0002	^{60}Co	5,212 ± 1,5%*	2008.06.01	*k=2 kiterjesztett bizonyt. tényező
CS-OMH-3	folyadék etalon	5	^{137}Cs	20	1990.07.01	
EU-OMH-1	folyadék etalon ampullában	5.0264	^{152}Eu	2,031	2000.07.14	

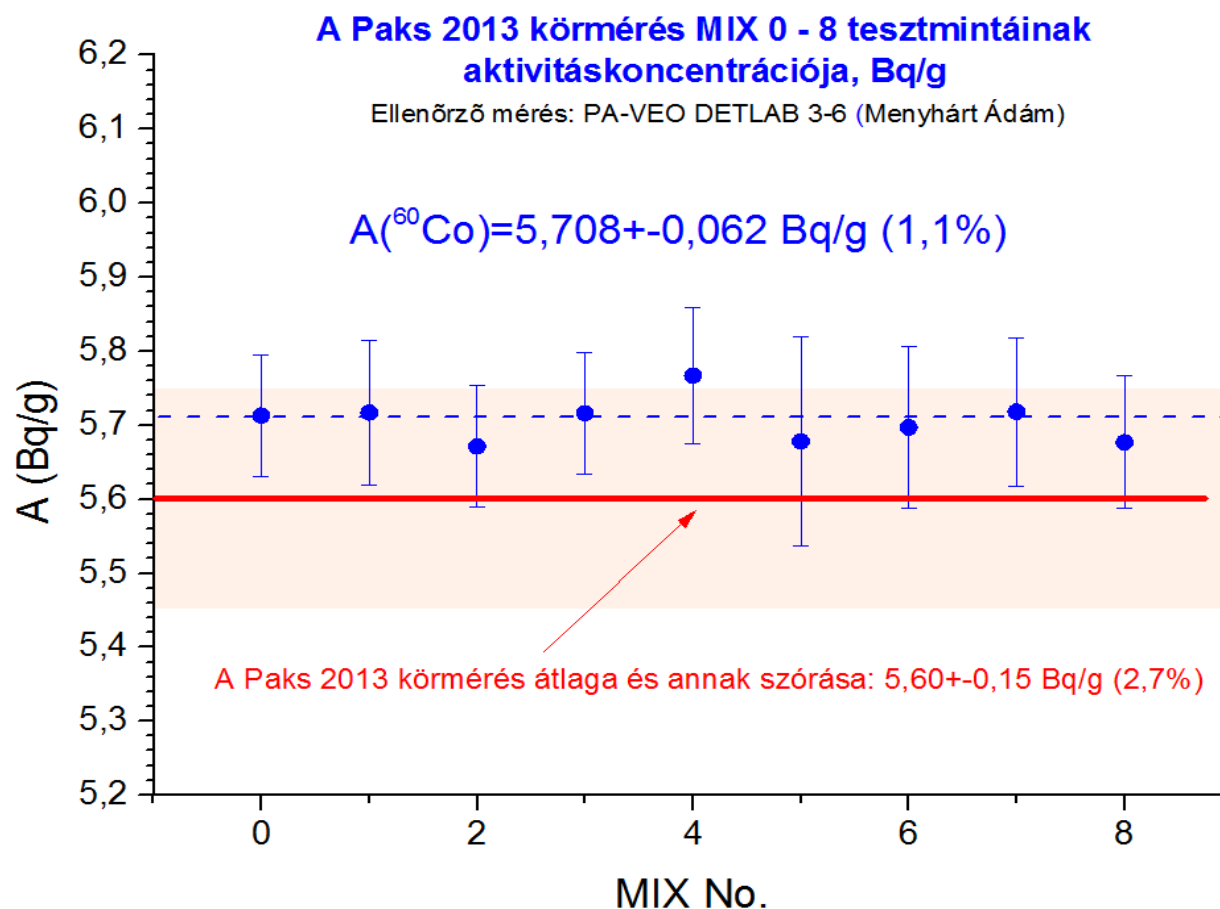
Az 1 liter törzsoldatból 8 db 100 ml polietilén folyadék edénybe történt a bemérés.

Előzetes megkeresés alapján

PAKS 2013 MIX 1	BME Budapest, Nukleáris Technikai Intézet, Atomenergetikai Tanszék dr. Szalóki Imre
PAKS 2013 MIX 2	RADANAL Kft. Budapest, Analitikai, Izotóptechnikai Kft. Radiokémiai Laboratórium dr. Vajda Nóra
PAKS 2013 MIX 3	MTA-ATOMKI-KFO-HEKAL, Debrecen dr. Palcsu László
PAKS 2013 MIX 4	Veszprémi Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézet, Veszprém dr. Kovács Tibor
PAKS 2013 MIX 5	MVM Atomerőmű Paks BIG-SKVFO-KVO-KIL Végh Gábor J.
PAKS 2013 MIX 6	Atomerőmű Paks BIG-SKVFO-KVO-KEL Lencsés András
PAKS 2013 MIX 7	Atomerőmű Paks ÜVIG_VEFO_VEO
PAKS 2013 eredeti	dr. Pintér Tamás/Menyhárt Ádám
PAKS 2013 MIX 8	MTA Energiatudományi Kutatóközpont Budapest MTA-EK-NAL (PGAA) dr. Kis Zoltán
	MTA Energiatudományi Kutatóközpont Budapest MTA-EK-KVSz Kocsonya András
	MTA Energiatudományi Kutatóközpont Budapest MTA-EK-NAL (NAA) Párkányi Dénes



A MIX0-MIX8 tesztminták ellenőrzésének eredményei a Körmérés 2013 eredményeivel összehasonlítva. Látható, hogy a kibocsátott tesztminták átlagosan 1%-os ($k=2$) homogenitásúak voltak!



Miért más, mint egyéb körmérések?

Az értékelésnél nem csak az eredmény került értékelésre, hanem az alkalmazott mérőeszköz és szoftver is.

Detektorok

Canberra HPGe BEGE planár

Canberra HPGe WELL-type

Intertechnique HPGe

Canberra HPGe vékonyablakos planár

Canberra HPGe

Eurisys HPGe "n"

Analizátorok

Canberra DSA 1000

Canberra S100, ADC8075

ORTEC 919A

Canberra DSA 2000

PCAME 8K

ORTEC DCPEC LF

Canberra Multiport II

Canberra AIM556A

KFKI 4K

8715 ADC, ND599 Dual LFC

Accuspec/B

Szoftverek

Canberra Genie2k (2.1 – 3.2.1)

SAMPO

PCAME

ORTEC Gammavision

Canberra Genie2k + APEX

Canberra Genie2k + FitzPeaks32

Hypermet-PC

Kalibrálás

Saját készítésű etalon (Co, Cs, Ba)

CMI 9031-OL-428/05 11 izotópos

OMH MIX 4 izotópos (^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs és ^{152}Eu)

G9031-OL-212/08 10 izotópos + IAEA ^{152}Eu és ^{134}Cs

OMH, PTB, AA-IA061 pontforrások

CMI 9031-OL-265/02 4 izotópos

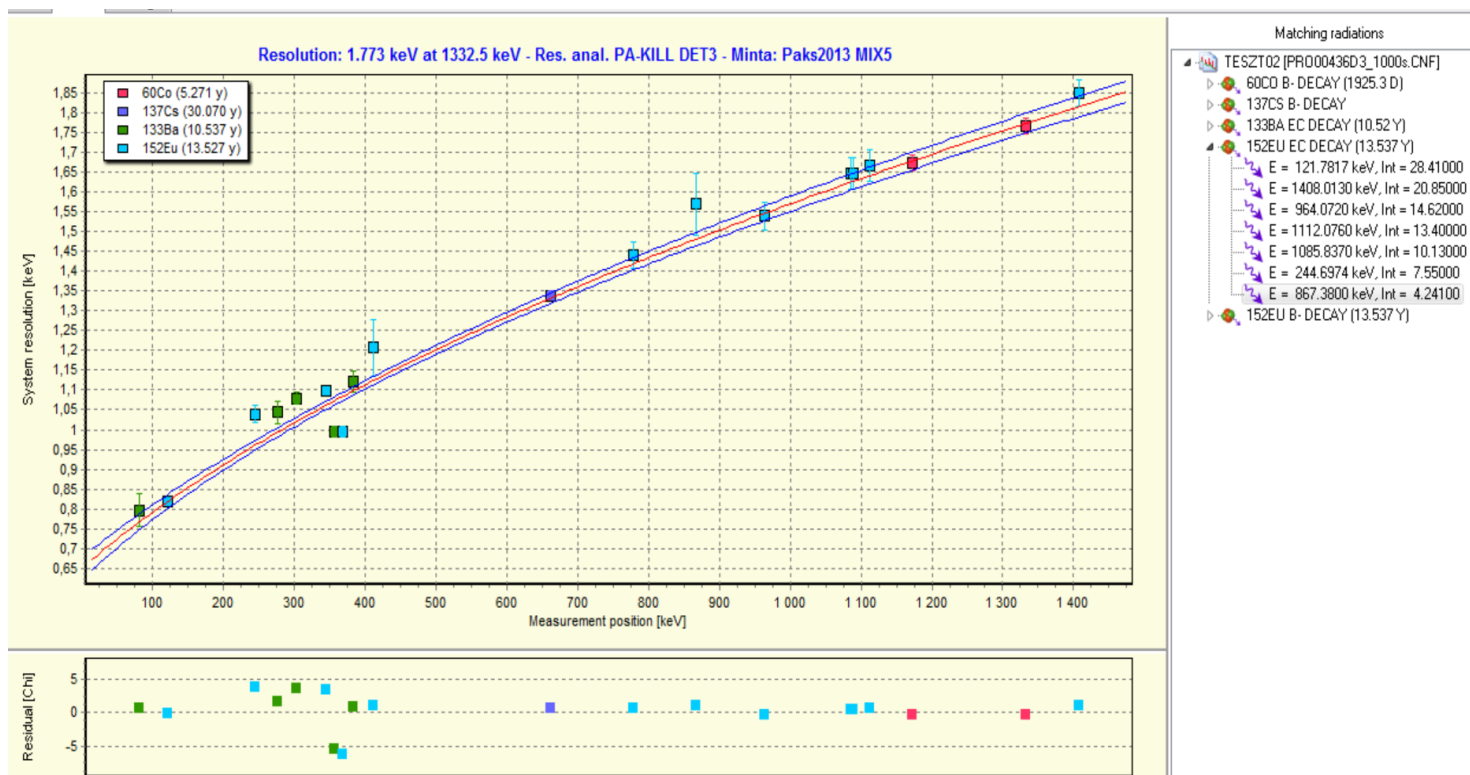
Árnyékolás: ólomtorony vagy régi vasból készült mérőkamra eltérő méretekkel

ÉRTÉKELÉS

A spektrométerek „minősítéséhez” a HyperLab 2009 spektrumkiértékelő programot használtuk.

Az eredmények közzlése mellett a résztvevőktől egy-egy kalibráló spektrumot is kértünk, hogy spektrométereik néhány jellemző paraméterét azonos módszerrel meghatározzuk és összehasonlítsuk. Kalibráló spektrumok hiányában néhány esetben a ténylegesen mért tesztminták spektrumát használtuk.

Energiafelbontás (FWHM). Ezt az értéket rendszerint a ^{60}Co 1332,5 keV-es vonalára adják meg. Többvonalas spektrumok esetén FWHM-et a mérési pontokra illesztett $(a+b \cdot \text{Ch})^{1/2}$ felbontásgörbéből határozzuk meg.

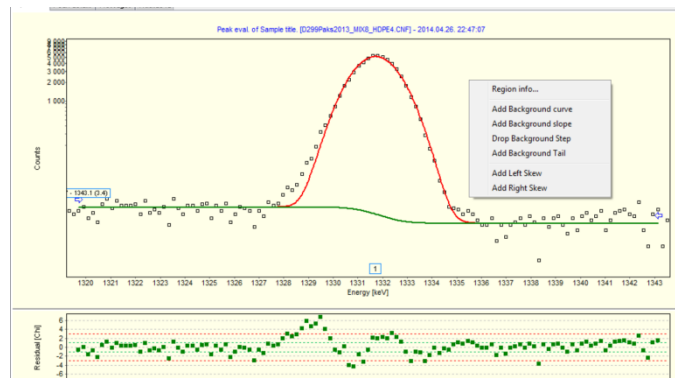


Csúcsalak. A jól beállított és zajmentes spektrométereknél a csúcsalak egy Gauss-görbével és egy lépcsőfüggvénnyel illeszthető. Kismértékű (<1%) bal oldali csúcstorzítás még elfogadható, mert a legtöbb spektrumkiértékelő program képes a csúcsra bal oldali tail-t is illeszteni.

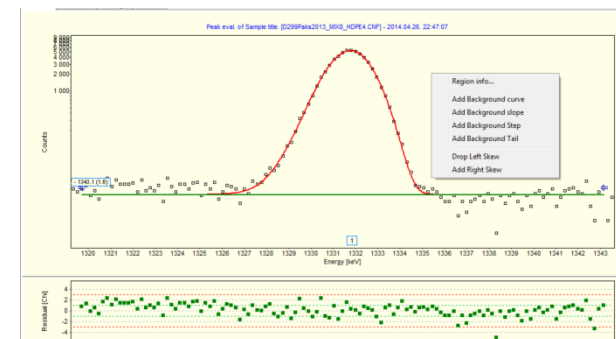


Ideális csúcsalak

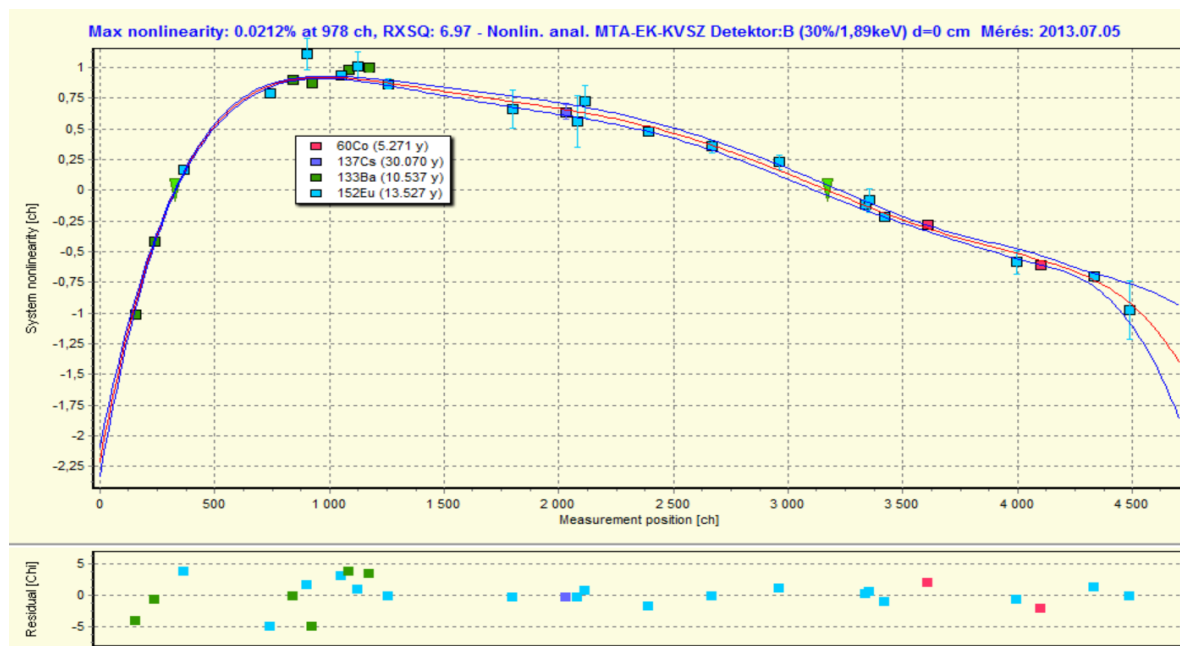
Csúcsillesztés
javítása bal oldali tail
hozzáadásával



Kismértékű
baloldali torzítás



Linearitás. A Ge-spektrométerek linearitásgörbéje hagyományos ábrázolásban oly kevés eltérést mutat, hogy összehasonlításra alkalmatlan. Ezért a HL-2009 programmal az egyes spektrométerek nonlinearitás-görbéjét vettük fel, amely az egyenestől való eltérést mutatja. A nonlinearitás mérőszámaként a maximális eltérést is megadtuk. Minél kisebb a nonlinearitás, annál pontosabban lehet egy gamma vonal energiáját meghatározni, és ezáltal az izotópazonosítás megbízhatósága is növekszik. Ez a megállapítás különösen fontos a kalibrációs tartományon kívül eső gamma-vonalak analízisének.



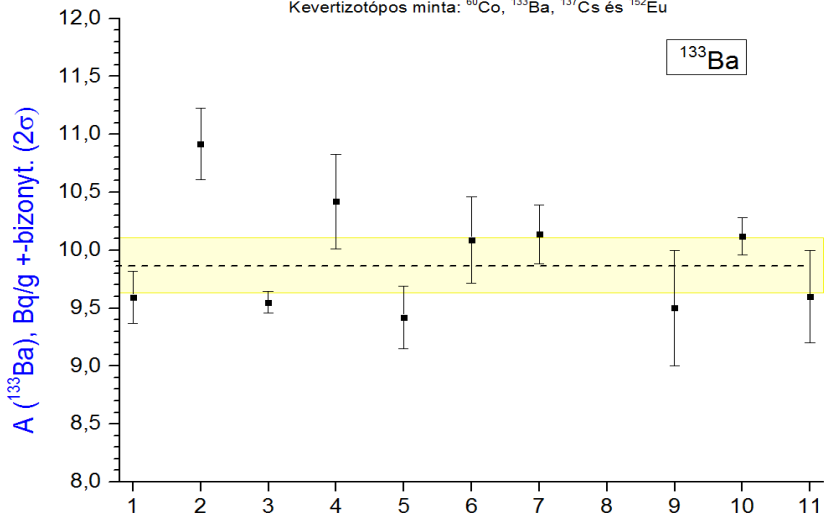
ÁLTALÁNOS MEGÁLLAPÍTÁSOK

Ideális csúcsalak	kiváló
<1% bal oldali csúcstorzítás	jó
<1% bal oldali csúcstorzítás	kiváló
<1% bal és jobb oldali csúcstorzítás	jó
<1.5% bal oldali csúcstorzítás	Jó
3.4% bal oldali csúcstorzítás	átlagos
3% bal oldali csúcstorzítás	átlagos

Laboratórium kód	Paksi tesztminták aktivitáskoncentrációi, Bq/g és azok abszolút ill. rel. mérési bizonytalansága (%). [k=2]				Megjegyzés
	¹³³ Ba	⁶⁰ Co	¹³⁷ Cs	¹⁵² Eu	
1	9,595± 0,266 (2,8%)	5,712± 0,082 (1,44%)	7,486± 0,044 (0,6%)	14,124± 0,152 (1,1%)	
2	10,918 ± 0,308 (2,8%)	6,471 ± 0,26 (4,0%)	8,555 ± 0,254 (3,0%)	16,169 ± 0,668 (4,1%)	
3	9,55±0,094 (1,0%)	5,688±0,104 (1,8)	7,55±0,13 (1,7%)	14,125±0,262 (1,9%)	
4	10,42±0,408 (2,8%)	5,768±0,242 (4,2%)	7,72±0,0312 (4,0%)	14,773±0,426 (2,9%)	
5	9,42 ± 0,27 (2,9%)	5,5 ± 0,1 (1,8%)	7,2 ± 0,2 (2,8%)	13,9 ± 0,8 (5,8%)	
6	10,09 ± 0,374 (3,7%)	5,45 ± 0,05 (0,9%)	7,314 ± 0,136 (1,9%)	13,94 ± 0,168 (1,2%)	
7	10,137±0,256 (2,5%)	5,219±0,086 (1,6%)	7,251±0,18 (2,5%)	13,596±0,41 (3,0%)	
8	7,72±0,17* (2,2%)	5,86±0,13 (2,2%)	7,68±0,17 (2,2%)	12,91±0,28 (2,2%)	*A Chauvenet kritérium alapján kizárva¹
9	9,5 ± 0,5 (5,3%)	5,8 ± 0,4 (6,9%)	7,7 ± 0,6 (7,8%)	13,9 ± 0,7 (5,0%)	A javított, 2013. dec. 6-i jelentésből
10	10,12±0,13 (1,3%)	5,924±0,098 (1,7%)	8,09±0,29 (3,6%)	14,46±0,32 (2,2%)	
11	9,6±0,4 (3,9%)	5,7±0,1 (2,5%)	7,2±0,2 (3,0%)	14,3±0,3 (2,3%)	

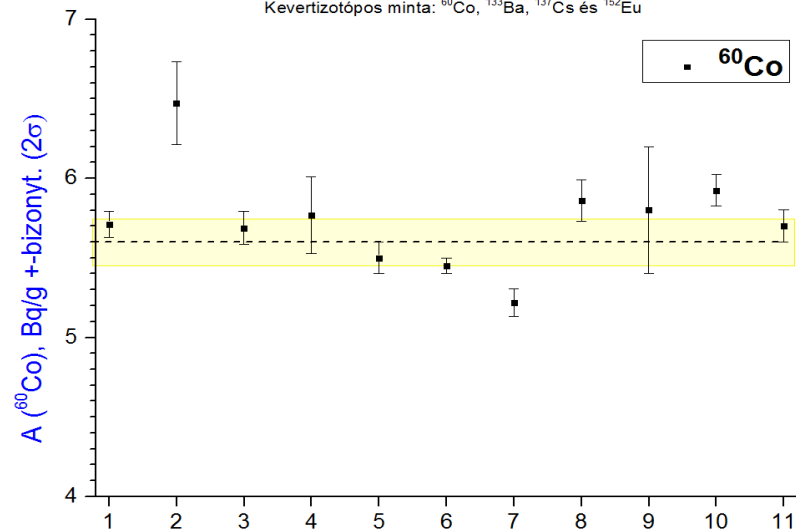
Paksi körmérés 2013

Kevertizotópos minta: ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs és ^{152}Eu



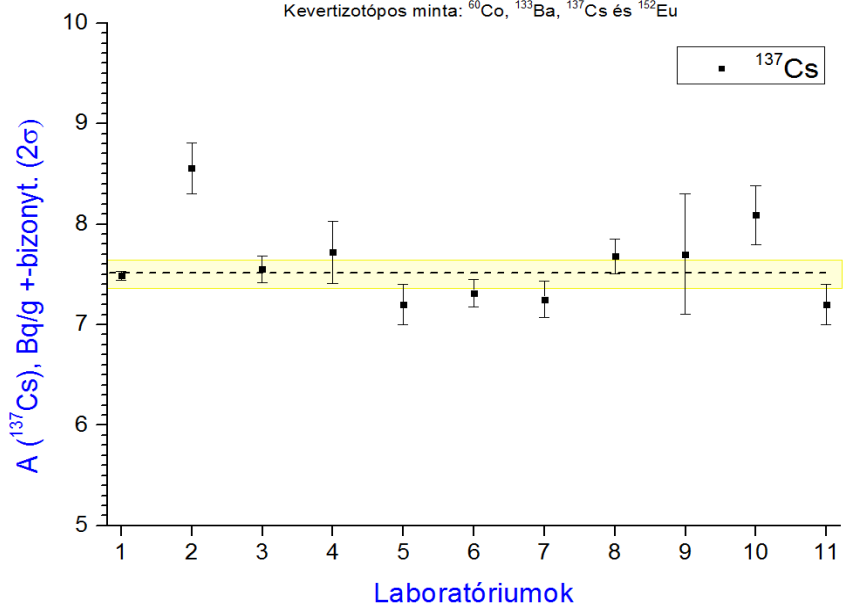
Paksi körmérés 2013

Kevertizotópos minta: ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs és ^{152}Eu



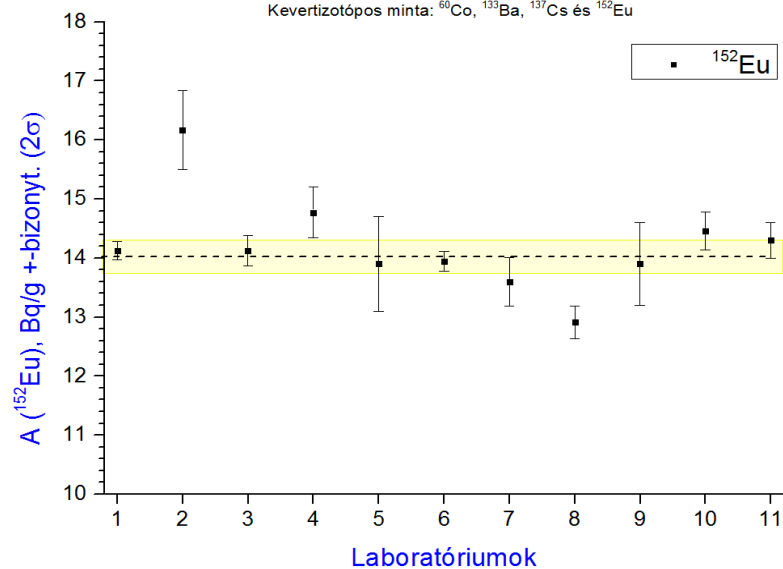
Paksi körmérés 2013

Kevertizotópos minta: ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs és ^{152}Eu



Paksi körmérés 2013

Kevertizotópos minta: ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{137}Cs és ^{152}Eu





Értékelés

Az eredmények értékelése a következő szempontok alapján történt:

A laboratóriumok többsége két vagy több analitikai módszert alkalmazott, (pl. gamma-spektrometriás összehasonlító mérés és számításon alapuló hatásfok-meghatározás), ezért ilyen esetben a laboratóriumi eredmény a részeredmények súlyozott átlaga.

Ugyancsak súlyozott átlagot adtunk meg olyan esetekben, amikor a mérések ugyanazon mérőrendszeren többféle mérési geometriában történtek (pl. $d=0$, 5, és 15 cm-es mintadetektor távolságnál). Ennek oka, hogy detektorhoz közeli geometriánál a pozicionálási hiba, míg távolinál a statisztikus hiba a meghatározó.

A laboratóriumok eredményeiből számolt átlagérték számításánál figyelembe vettük a Chauvenet kritériumot, amely alapján egy mérési eredményt kizártunk.

A mért aktivitások összbizonytalanságát az ún. kiterjesztett bizonytalansági tényezővel ($k=2$) szorzott standard bizonytalansággal számoltuk. *(95%-os megbízhatósági valószínűség)*

Azonos módszerrel történt mérési sorozat esetén (pl. ugyanazon tesztminta mérése több detektoron vagy különböző mérési geometriában) kiszámoltuk az ún. külső és belső bizonytalanságot és a nagyobbat fogadtuk el.



A grafikus ábrákból megállapítható, hogy a 11 laboratórium által megadott eredményekből számolt átlagértékek pontossága elérte a 2-2,5%-ot, amely a professzionális OMH/MKEH hasonló kivitelű és összetételű standardjaira jellemző.

Ez azt jelenti, hogy a körmérésben résztvett gamma-spektrometriás laboratóriumokban alapvetően jól határozzák meg az aktivitáskoncentrációkat. Az eredmény értékét növeli, hogy egy-egy laboratórium többféle kiértékelő eljárást alkalmazott (relatív mérés, geometriai tényezők meghatározása számítással stb.)

Figyelemre méltó, hogy a vizsgált 23 spektrométer több mint 2/3-a kiváló, ill. jó minősítést kapott. Külön megemlítendő, hogy egyes spektrométereknél 20%-os relatív hatásfokú detektorokkal 1,7 keV-nél is jobb energiafelbontást értek el üzemi körülmények között. Ez azt jelenti, hogy számos hazai laboratórium világszínvonalú berendezésekkel dolgozik.



A grafikus ábrákból megállapítható, hogy a 11 laboratórium által megadott eredményekből számolt átlagértékek pontossága elérte a 2-2,5%-ot, amely a professzionális OMH/MKEH hasonló kivitelű és összetételű standardjaira jellemző.

Ez azt jelenti, hogy a körmérésben résztvett gamma-spektrometriás laboratóriumaiban alapvetően jól határozzák meg az aktivitáskoncentrációkat. Az eredmény értékét növeli, hogy egy-egy laboratórium többféle kiértékelő eljárást alkalmazott (relatív mérés, geometriai tényezők meghatározása számítással stb.)

Figyelemre méltó, hogy a vizsgált 23 spektrométer több mint 2/3-a kiváló, ill. jó minősítést kapott. Külön megemlítendő, hogy egyes spektrométereknél 20%-os relatív hatásfokú detektorokkal 1,7 keV-nél is jobb energiafelbontást értek el üzemi körülmények között. Ez azt jelenti, hogy számos hazai laboratórium világszínvonalú berendezésekkel dolgozik.

A GAMMA-SPEKTROMETRIA RUTINMÉRÉS



A grafikus ábrákból megállapítható, hogy a 11 laboratórium által megadott eredményekből számolt átlagértékek pontossága elérte a 2-2,5%-ot, amely a professzionális OMH/MKEH hasonló kivitelű és összetételű standardjaira jellemző.

Ez azt jelenti, hogy a körmérésben résztvett gamma-spektrometriás laboratóriumaiban alapvetően jól határozzák meg az aktivitáskoncentrációkat. Az eredmény értékét növeli, hogy egy-egy laboratórium többféle kiértékelő eljárást alkalmazott (relatív mérés, geometriai tényezők meghatározása számítással stb.)

Figyelemre méltó, hogy a vizsgált 23 spektrométer több mint 2/3-a kiváló, ill. jó minősítést kapott. Külön megemlítendő, hogy egyes spektrométereknél 20%-os relatív hatásfokú detektorokkal 1,7 keV-nél is jobb energiafelbontást értek el üzemi körülmények között. Ez azt jelenti, hogy számos hazai laboratórium világszínvonalú berendezésekkel dolgozik.

A GAMMA-SPEKTROMETRIA RUTINMÉRÉS

VAGY MÉGSEM?

A részletek vizsgálata azt mutatja, hogy egyes laboratóriumoknál még van lehetőség a mérések pontosságának és megbízhatóságának javítására. Az észlelt hiányosságok közül megemlítjük, hogy egyes esetekben

- nem fordítottak kellő gondot a spektrométerek beállítására (jelfeldolgozó elektronika hibái), amelynek eredménye a túlzott csúcstorzítás, rate-függés,
- a mérésekhez régi (10-15 éves), többnyire saját készítésű kalibráló standardokat is használtak, amelyek esetenként szisztematikus eltéréseket okoztak (egy mérési eredmény annyira eltért az átlagtól, hogy ki kellett zárunk),
- előfordult, hogy a viszonylag kis aktivitású tesztmintákat egy nagy háttérű ólomtoronyban mérték, amely az aktivitáskoncentrációk meghatározásának statisztikus hibáját rontotta.

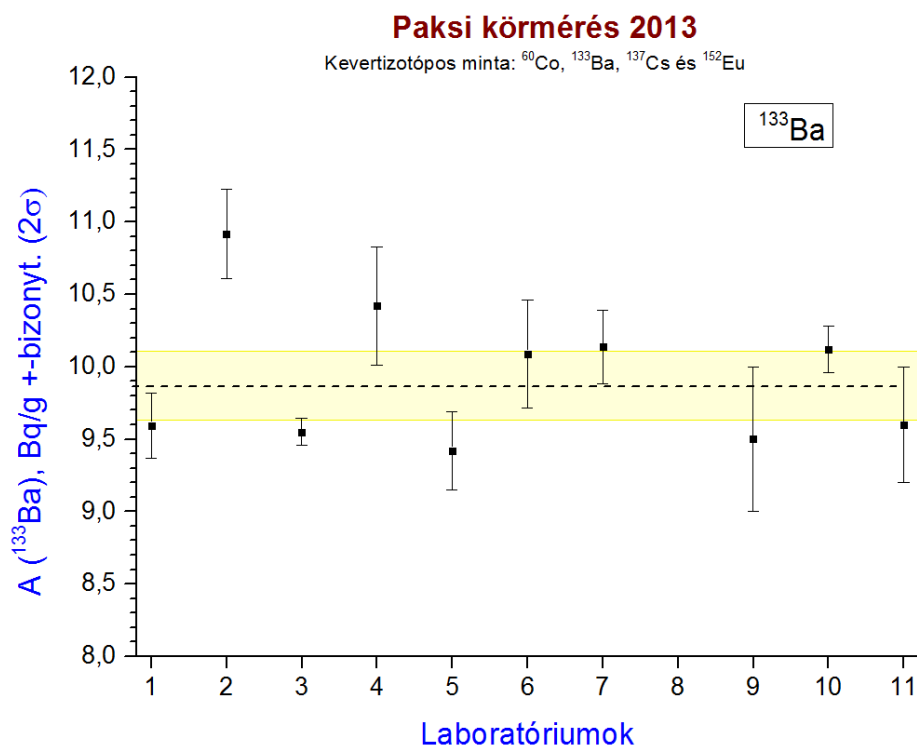
Az értékelés során a laboratóriumok részértékelést is kaptak, ami alapján lehetőségük volt korigálni a berendezés beállítását, a kalibrációt és újramérni a mintát. Ilyenkor a korigált eredmény lett figyelembe véve. Néhányan éltek is a lehetőséggel.

Néhány kiemelés a levelezésekből:

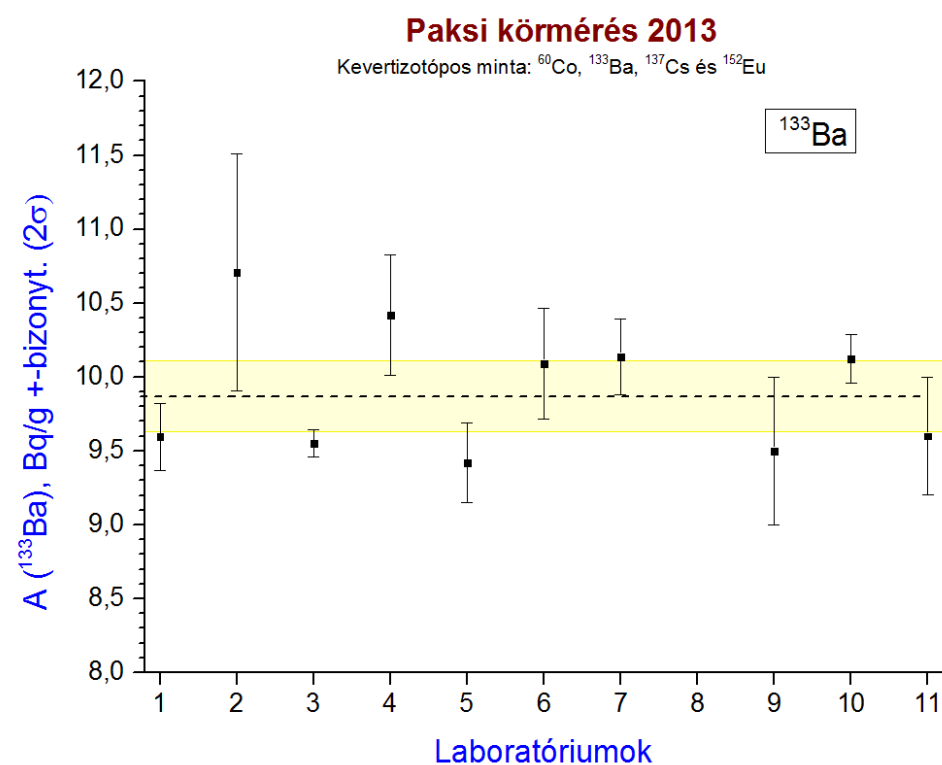
“Utólagosan, az eredmények ismeretében újra átnéztük a méréseinket, amely során felfedeztünk egy szisztematikus hibát. Az általunk használt etalont régi izotóp törzsoldatból gyártottuk, amely során több lépésben is higítani kellett. Ennek során a pipettahegyek, illetve a tömény törzsoldatot tartalmazó üveg fiolát elfelejtettük visszamérni.” (korrekciós faktor!!) /2. számú laboratórium/

“Megmértük még kétszer az anyagot és szerintem az lehet a gond, hogy a standardunk nem jó, elvileg elég régi, 2000-ben higított Ba” /8. számú laboratórium/

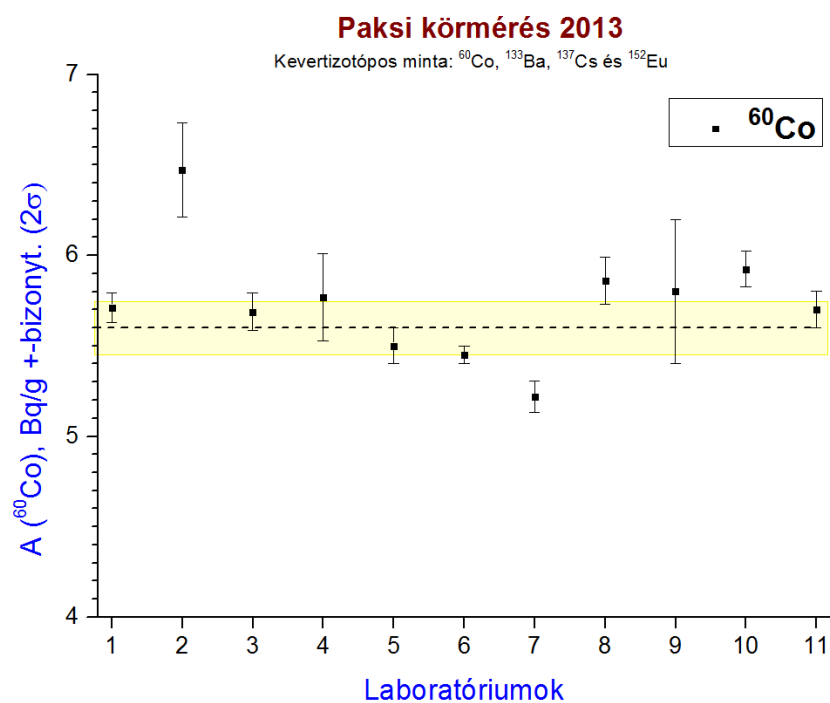
A megadott korrekciós faktorokkal módosításra kerültek az érintet laboratórium adata, de jelentős változást csak a ^{133}Ba koncentrációjánál tapasztaltunk. Természetesen újra kellett számolni az átlagokat és a szórásokat is.



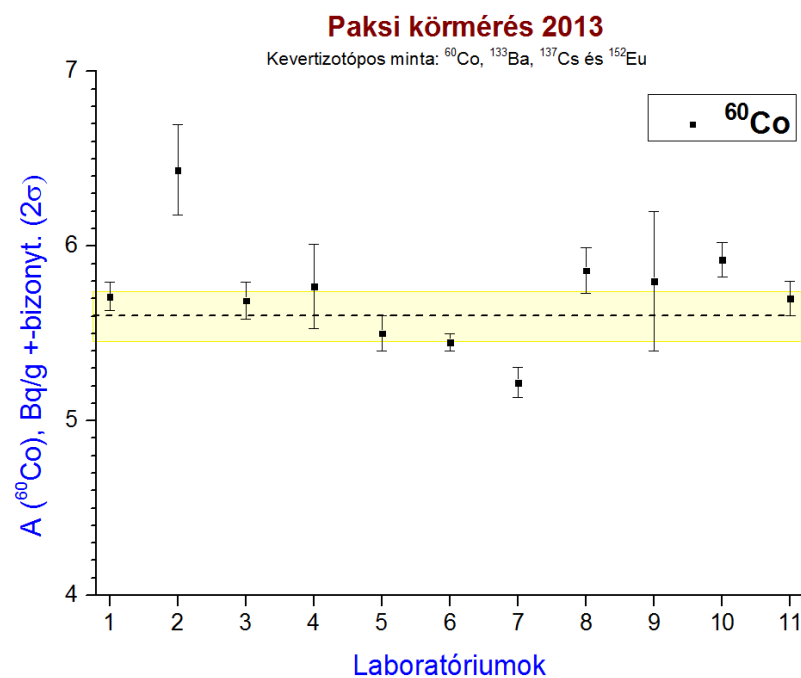
Eredeti. Átlagérték: $9,842 \pm 0,25$



Korrigált. Átlagérték: $9,769 \pm 0,202$



Eredeti. Átlagérték: $5,60 \pm 0,15$



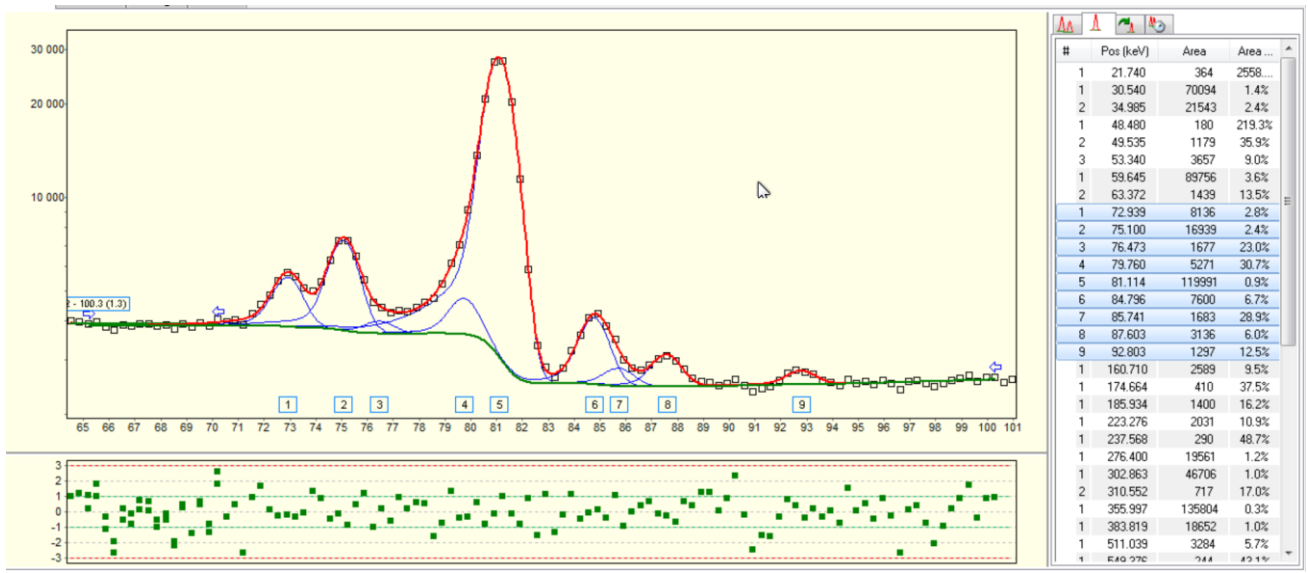
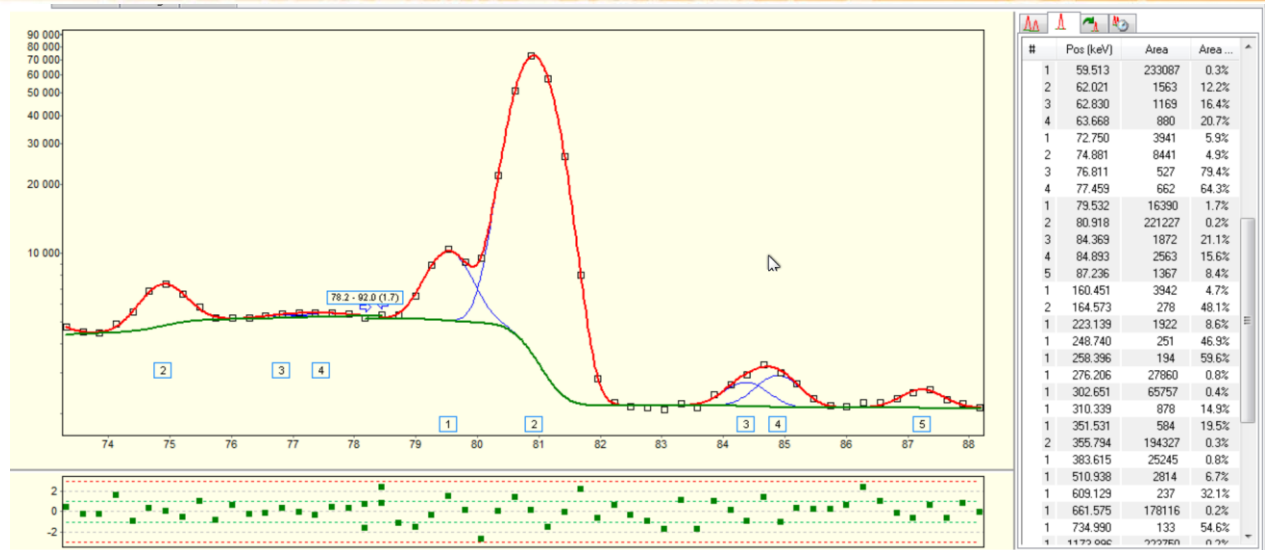
Korrigált. Átlagérték: $5,594 \pm 0,15$



Néhány szó a mérőrendszerekről



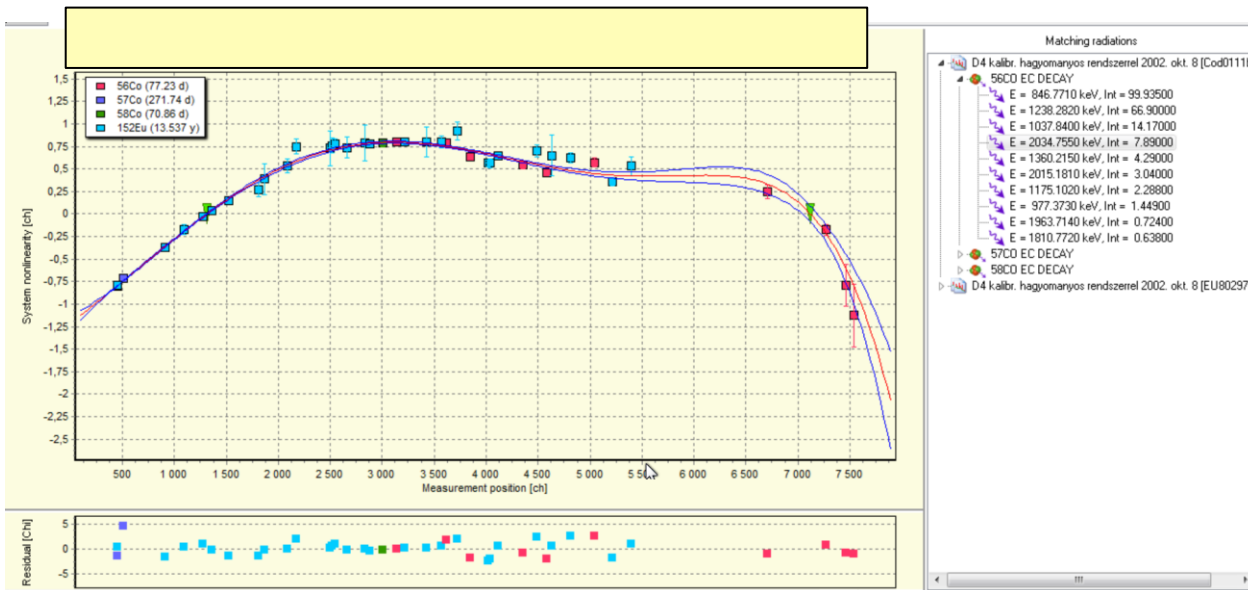
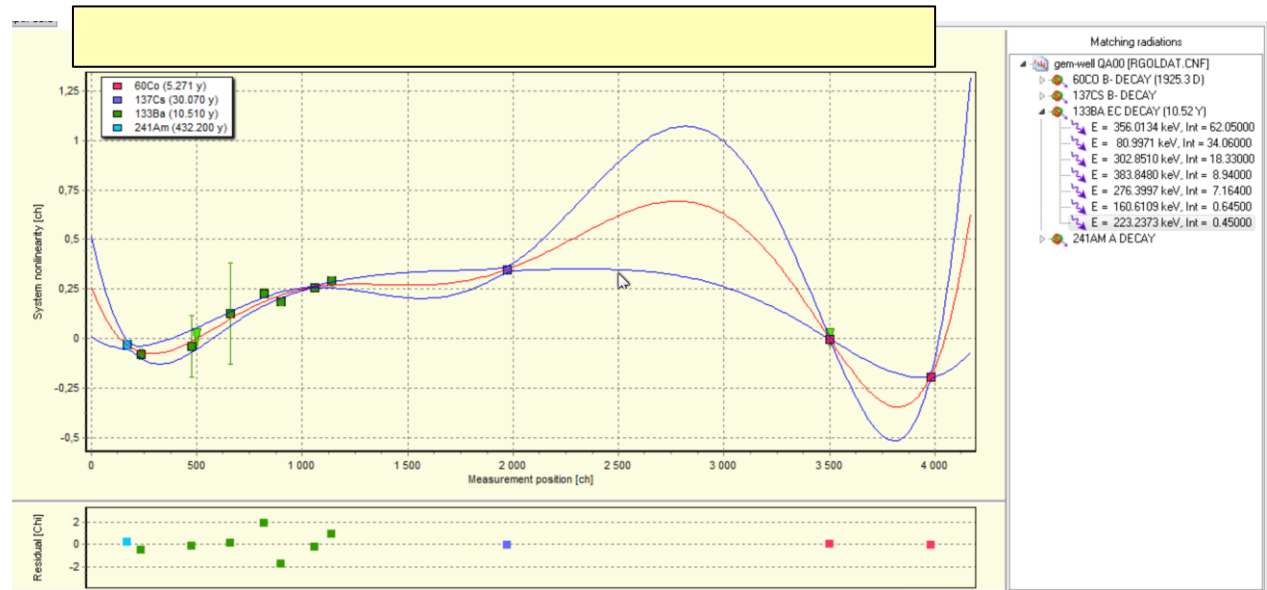
A kis energiájú ^{133}Ba csúcsok (79 és 81 keV) illesztése a jó energiefelbontásnak köszönhetően problémamentes.



A gyengébb energiefelbontás a 81 keV-es ^{133}Ba csúcsterületének meghatározásánál a bizonytalanságot növeli.

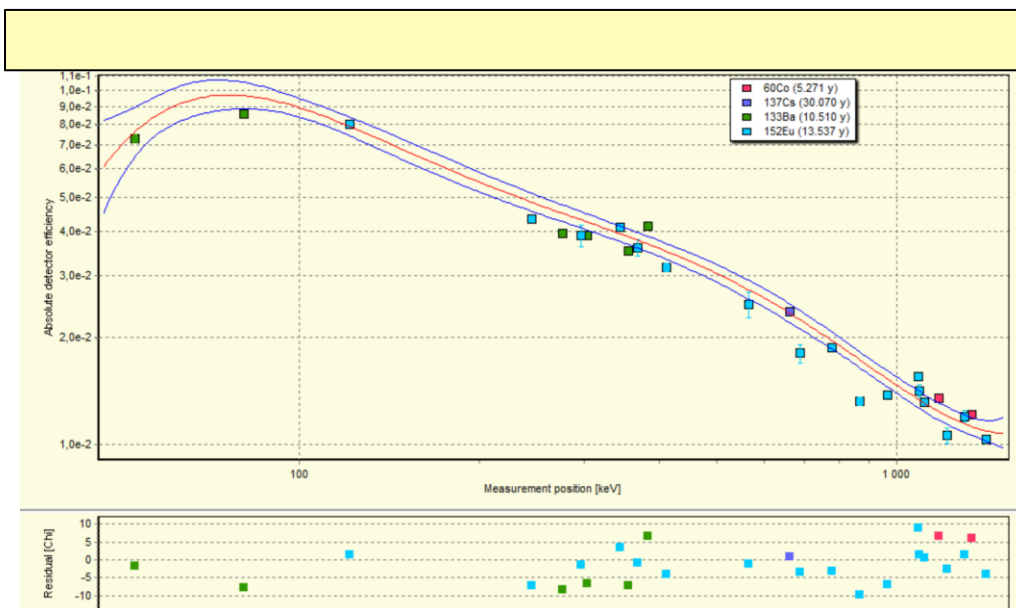
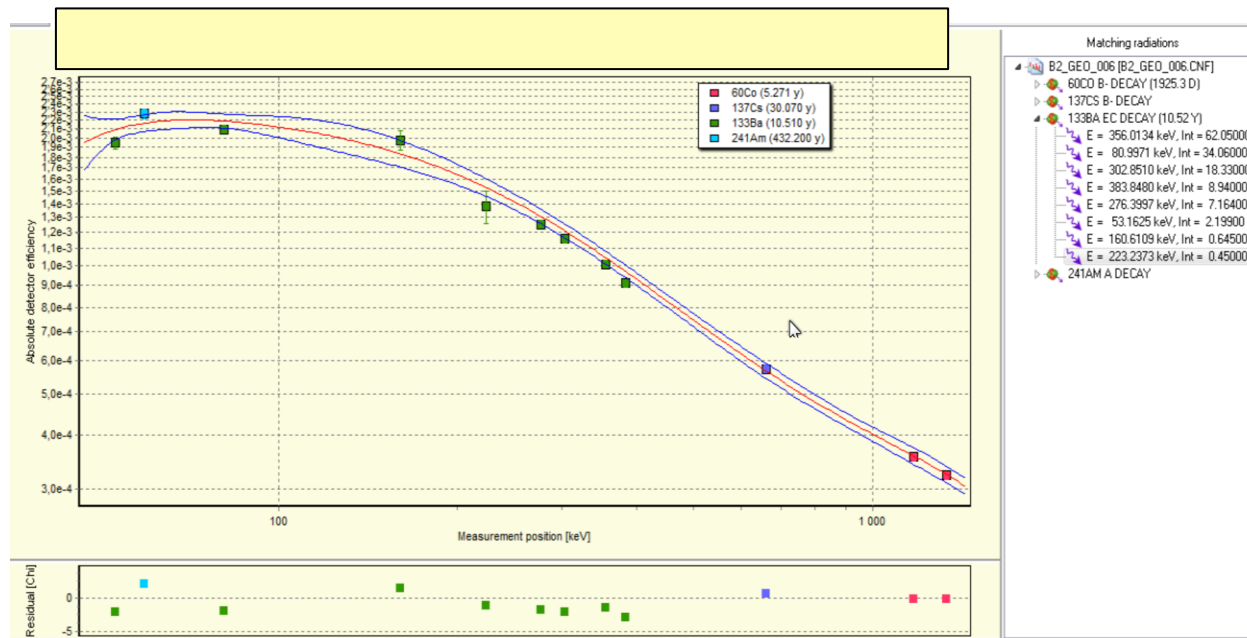


A kalibrációnál hiányzó ^{152}Eu miatt rossz a linearitás. 400 keV fölött csak 3 mérési pont van.



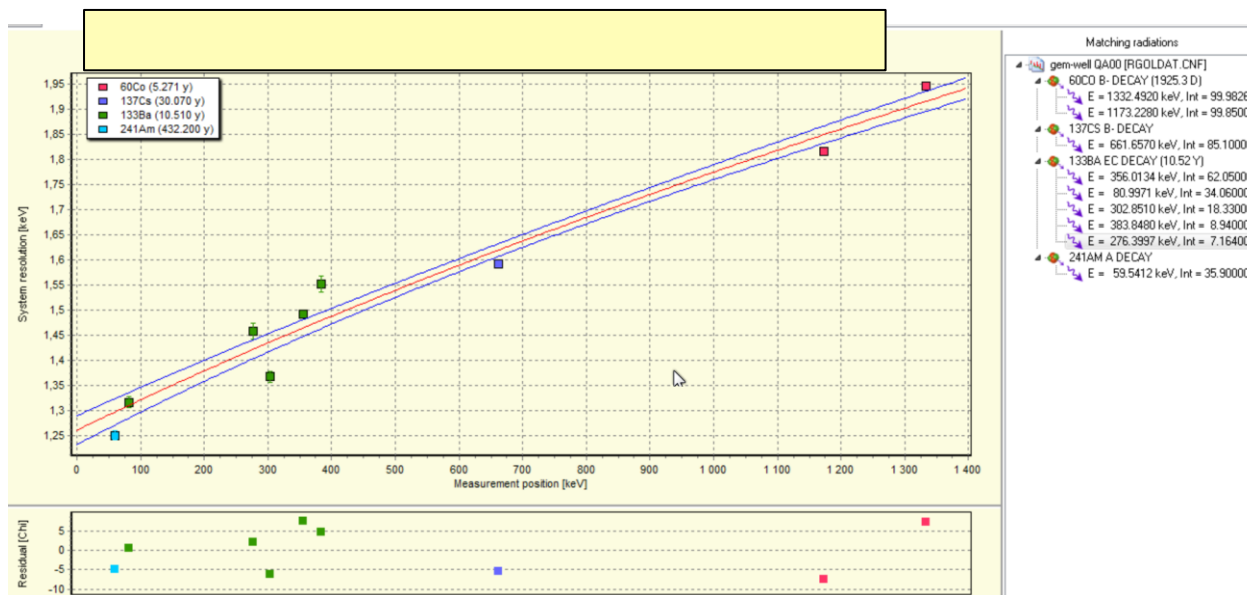
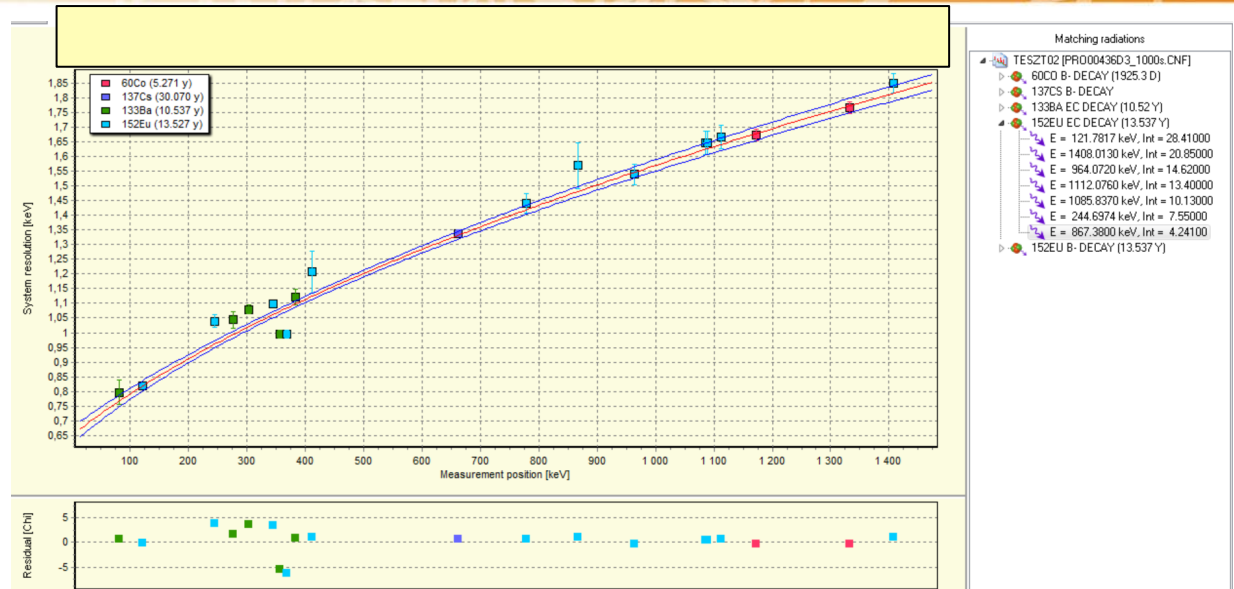
Egy tipikus nonlingörbe, ha elegendő számú mérési pont van.

Harásfok görbe:
A 100-250 keV-es tartományban 7-8%-os a hiba! Hiányzik az ^{152}Eu !



A mérési pontok nagymérvű szórása a koincidencia-korrekción hiányára utal.

Megfelelő energiafelbontás elegendő mérési pont esetén.



Kevés mérési pont miatt rossz energiafelbontás

VOLT HASZNA ENNEK A MUNKÁNAK?

Reméljük igen.

- Mindenki kapott egy független értékelést a rendszeréről, módszeréről.
- Lehetősége volt változtatni a beállításokon és azt újra ellenőrizni.
- Néhány szisztematikus hiba felszínre került.
- Mindenki el tudja helyezni magát egy képzeletbeli rangsorban.
- Akinek szükséges fel tudja használni az akkreditációhoz.

JÁRULÉKOS HASZON

Számítással javaslat született egy kalibráló sugárforrás összetételre. Ezzel megszűnne vagy legalábbis mérséklődne pl. a hatásfokgörbék bizonytalansága és gyakori “elszállása” 80 keV-nél kisebb és 1400 keV-nél nagyobb energiatartományban.

A számítások a következő feltételeken alapúltak:

- Pontforrás, 10 óra mérési idő, 1%-os holtidő, minimálisan 50000 csúcsbeütés a kalibrációs vonalakra,
- Átlagos 20%-os relatív hatásfok, $d=2$ cm detektor-minta távolság,
- A Compton-háttér figyelembe vétele a kis energiájú vonalakra a $<0,5\%$ stat. bizonytalanság elérése.

Izotóp	Aktvitás (Bq)
^{60}Co	1000
^{133}Ba	1000
^{137}Cs	500
^{152}Eu	2000
^{207}Bi	3000
^{241}Am	500



mvm paksi atomerőmű

Köszönöm figyelmüket!

