

TARTU ÜLIKOOL

Loodus- ja täppisteaduste valdkond

Füüsika instituut

Hando Tohver

**OMANEELDUMISEFEKT GAMMASPEKTROMEETRIAS  
EHITUSMATERJALIDE KIIRGUSOHUTUSE HINDAMISEL**

Bakalaureusetöö (6 EAP)

Füüsika, keemia ja materjaliteaduse õppekava, füüsika eriala

Juhendajad:  
Siiri Suursoo, PhD  
Taavi Vaasma, PhD

Tartu 2020

## **Omaneeldumiseefekt            gammaspektromeetrias            ehitusmaterjalide kiirgusohutuse hindamisel**

Euroopa Liidu liikmesriikedes kasutatakse ehitusmaterjalidest põhjustatud gammakiirguse doosi reguleerimiseks I-indeksit, mis on kolme looduslikult esineva radioaktiivse elemendi –  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  – aktiivsuskontsentratsioonide põhjal arvutatav suurus. Töö eesmärgiks oli uurida, kuidas gammaspektrometrilisi mõõtmisi mõjutav  $\gamma$ -kiirguse omaneeldumiseefekt sõltub ehitusmaterjali tihedusest, keemilisest koostisest kui ka  $\gamma$ -kiire energiast. Seejärel koostati töökindel I-indeksi määramise meetodika. Omavahel võrreldi eksperimentaalse ja mudelarvutusliku meetodi võimekust. Tulemustest selgus, et korrektse aktiivsuskontsentratsiooni määramisega saab paremini hakkama mudelarvutusmeetod, kusjuures meetodi suurim miinus – täpse keemilise koostise teadmine – ei osutu I-indeksi määramisel probleemiks. Töö tulemuste põhjal kirjutati VBA+Python keskkonnas programm, mis võimaldab rutiinset aktiivsuskontsentratsioonide määramist efektiivselt läbi viia.

Märksõnad: Gammispektromeetria, ehitusmaterjalid, omaneeldumine

CERCS kood: P220 — Tuumafüüsika

## **Self-absorption effect in gamma spectrometry for assessing the radiation safety of building materials**

In the member states of the European Union, the activity concentration index I is used to regulate the dose of  $\gamma$ -radiation from building materials – value that is calculated from the activity concentrations of three naturally occurring radioactive elements –  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$ . The aim of the study was to investigate how the self-absorption effect of  $\gamma$ -radiation influencing gamma spectrometric measurements depends on the density of the building material, its chemical composition as well as the energy of the  $\gamma$ -rays. A reliable methodology for determining the I-index was then developed. The capabilities of the experimental and computational method were compared. The results showed that the computational method is more suitable for determining the correct activity concentrations, whereas the biggest disadvantage of the method - knowing the exact chemical composition - did not prove to be a problem in regards of determining the I-index. Based on the results of this thesis, a program was written in the VBA + Python environment, which allows routine determination of activity concentrations to be done more effectively.

Keywords: Gamma spectrometry, building materials, self-absorption

CERCS code: P220 — Nuclear Physics

# Sisukord

<b>Sissejuhatus</b>	<b>5</b>
<b>1 Teooria</b>	<b>6</b>
1.1 Radioaktiivne lagunemine . . . . .	6
1.2 $\gamma$ -kiire vastastikmõju ainega . . . . .	7
1.3 Gammaspektromeetria tööpõhimõte . . . . .	8
1.4 I-indeks . . . . .	10
1.5 Isotoobid . . . . .	10
1.6 Omaneeldumine . . . . .	12
1.7 EFFTRAN . . . . .	14
<b>2 Metoodika</b>	<b>16</b>
2.1 BEGe detektor . . . . .	16
2.2 Kalibratsiooniallikad RGU-1, RGTh-1 ja RGK-1. Kontrollallikad BFI-12 ja CBSS-2. . . . .	17
2.3 Punktallikatega omaneeldumise mõõtmine . . . . .	19
2.4 Proovide ettevalmistamine ja mõõtmine . . . . .	20
2.5 Spektrite analüüs . . . . .	22
<b>3 Tulemused ja arutelu</b>	<b>24</b>
3.1 Omaneeldumistegur . . . . .	24
3.1.1 Omaneeldumisteguri sõltuvus proovi tihedusest . . . . .	24

3.1.2	Omaneeldumisteguri sõltuvus keemilisest koostisest . . . . .	25
3.1.3	Omaneeldumisteguri tundlikkuse sõltuvus proovi tihedusest ja keemilisest koostisest . . . . .	28
3.1.4	Omaneeldumisteguri sõltuvus $\gamma$ -kiirguse energiast . . . . .	29
3.2	Radionukliidide aktiivsuskontsentratsioonid . . . . .	31
3.3	Määramatused . . . . .	34
3.4	ACIX – programm korrigeeritud aktiivsuskontsentratsiooni arvutamiseks . . .	37
3.5	Proovide ja kontrollallika I-indeksid . . . . .	39
	<b>Kasutatud kirjandus</b>	<b>41</b>
	<b>A Omaneeldumistegurite väärtused</b>	<b>43</b>
	<b>B BFI-12 <math>\Delta K</math> sõltuvus energiast</b>	<b>45</b>
	<b>C Omaneeldumistegurite määramatus</b>	<b>46</b>
	<b>Tänuavaldused</b>	<b>48</b>
	<b>Lihtlitsents</b>	<b>49</b>

# Sissejuhatus

Ehitusmaterjalid koosnevad tihti looduslikest ainetest, mis võivad sisaldada radioaktiivseid elemente. Gammakiirguse doos, mida ehitusmaterjalid põhjustada võivad, on seadusandlusega reguleeritud [1]. Doosi arvutamine on see-eest keeruline ja ajakulukas protsess. Selle asemel on seaduses kasutusel legislatiivse võimuga aktiivsuskontsentratsiooni indeks I, mille abil on võimalik varakult välja sõeluda kõik potentsiaalselt ohtlikud ehitusmaterjalid. I indeksi määramiseks on vaja esmalt määrata kolme radionukliidi,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$ , sisaldus ehitusmaterjalis. [2]

Radionukliidide sisaldust aines saab määrata gammaspektromeetrilise meetodiga. Kuna  $\gamma$ -footoneid kiirgavad radionukliidid asuvad uuritava materjali sees, siis suure huvi all on kiirguse ja aine vaheline vastastikmõju. Mõõtmiste kalibreerimiseks on vaja sobivat kalibratsiooniallikat, milles vastastikmõju kiirguse ja aine vahel toimuks võimalikult sarnaselt uuritava prooviga. Nii ehitusmaterjalide kui ka keskkonnaproovide keemilise koostise ja tiheduse varieerumise tõttu on raske, kallis ning ajakulukas tellida igale proovile vastavat kalibratsiooniallikat [3], mistõttu pakuvad huvi alternatiivsed meetodid, mis vähendavad laboratoorset tööd. Laialdaselt kasutatakse tulemuste korrigeerimiseks mudelarvutusmeetodeid. Enamik mudelarvutusprogramme see-eest eeldavad keemilise koostise teadmist. Iga ehitusmaterjali tootja käest materjali koostise saamine pole teostatav. Olukorra võib lahendada üldistatud keemilise koostise kasutamine, kui selgub, et kindlatel tingimustel on mudelarvutusmeetod keemilise koostise täpse teadmise osas vähetundlik.

Käesoleva töö raames uuritakse, kuidas  $\gamma$ -kiirguse vastastikmõju ainega sõltub nii kiirguse energiast kui ka ehitusmaterjali tihedusest ja keemilisest koostisest. Seejärel võrreldakse omavahel gammaspektromeetria eksperimentaalset ja mudelarvutuslikku meetodit, millega korrigeeritakse  $\gamma$ -kiirguse omaneeldumist proovis. Töö eesmärgiks on välja töötada robustne töömeetodika, mille abil oleks võimalik kontrollida I-indeksi vastavust seadusandluse nõuetele.

# Peatükk 1

## Teooria

### 1.1 Radioaktiivne lagunemine

Radioaktiivne isotoop ehk radionukliid on liigse energiaga aatom, mis vabaneb energiast ioniseeriva kiirguse toimetel. Energiast vabanemise käigus võib muutuda radioaktiivse isotoobi prootonite ja neutronite arv. Lagunevat tuuma kutsutakse emanukliidiks ja lagunemise produkti tütar nukliidiks. Looduslike radionukliidide seas on kõige levinum  $\alpha$ -,  $\beta$ - ja  $\gamma$ -kiirgus. [4]

$\alpha$ -kiirgus on liigsest energiast vabanemine  ${}^4\text{He}$  tuuma kiirgamise teel. Kiirguse läbitungimisvõime on madal, tavatingimustes piisab paberlehest, sentimeetrist õhust või nahakihist, kuid suure massi ja laengu tõttu on kiirguse ioniseerimisvõime kõrge.  $\alpha$ -kiirgus moodustab teravate piikidega spektri. Piigi energia vastab lagunemisel tekkinud  $\alpha$ -osakese energiale, mille abil on võimalik lagunev radionukliid määrata. [4]

$\beta$ -kiirgus on liigsest energiast vabanemine kas elektroni või positroni kiirgamise teel. Sellega kaasneb vastavalt antineutriino või neutriino kiirgamine. Kiirguse läbitungimisvõime on  $\alpha$ -kiirgusest parem, suure kiirusega osake suudab penetreerida nahakihti, kuid varjestusesks piisab õhukesest alumiiniumkihist või plastikust. Täpne läbitungimisvõime sõltub  $\beta$ -kiirguse energiast. Kui  $\beta$ -kiirguse tulemusena tekib positron, siis see annihileerub kiiresti ümbritsevate elektronidega ja tulemusena kiirgatakse kaks  $\gamma$ -kiirt. Erinevalt  $\alpha$ -kiirgusest ei iseloomusta  $\beta$ -kiirgust kitsaste piikidega spekter, kuna kiirgatud elektron jagab osaliselt vabanenud energia kaasaskäiva antineutriinoga, mille tulemusena kirjeldab  $\beta$ -kiirgust pidev spekter. Beetaspektromeetrias lähtutakse radionukliidi määramisel pidevspektri intensiivsuse maksimumist ja maksimumenergiast. [4]

$\gamma$ -kiirgus on liigsest energiast vabanemine footoni kiirgamise teel, kusjuures muutub vaid nukliidi energia, prootonite ja neutronite arv jääb samaks. Siiski on harjumuspärane

kirjeldada radioaktiivset lagunemist ka  $\gamma$ -kiirgusest lähtuvalt. Sellisel juhul toimub lagunemine eelmainitud kahe kanali,  $\alpha$  või  $\beta$  kaudu ning liigse energiaga tekkinud tütar nukliid vabaneb sellest  $\gamma$ -kiirguse kaudu. Sellegipoolest liigitatakse  $\gamma$ -kiirgus emanukliidi karakterseks omaduseks, sest kuigi karakteristliku energiaga  $\gamma$ -footoni emiteeris tütar nukliid, ei oleks see protsess saanud toimuda, kui sellele poleks vahetult eelnenud emanukliidi  $\alpha$ - või  $\beta$ -lagunemine. [4]

Emanukliidi lagunemine tütar nukliidiks ei pruugi tagada stabiilset lõpptulemust, mistõttu võib tekkinud tütar nukliid laguneda ja nii edasi kuni energeetiliselt pole lagunemine enam võimalik. Emanukliidist algavat ja stabiilse lõpp-produktiga lõppevat nukliidide jada nimetatakse lagunemisreaks. [4]

Looduslikult esinevate radionukliidide emanukliidid on väga pika poolestusajaga. Lagunemisrea siseselt võib nukliidide vahel tekkida tasakaal. Kui lagunemisrea emanukliidi poolestusaeg on tütar nukliidi poolestusajast märkimisväärselt pikem, siis sellist tasakaalu kutsutakse sekulaarseks tasakaaluks. Sekulaarse tasakaalu tulemusena on uuritavas materjalis emanukliidi ja tütar nukliidi aktiivsused võrdsed. Mitte-tasakaalulisest olukorrast tasakaalulise olukorra tekkeks peab mööduma ligikaudu 7 tütar nukliidi poolestusaega. [4]

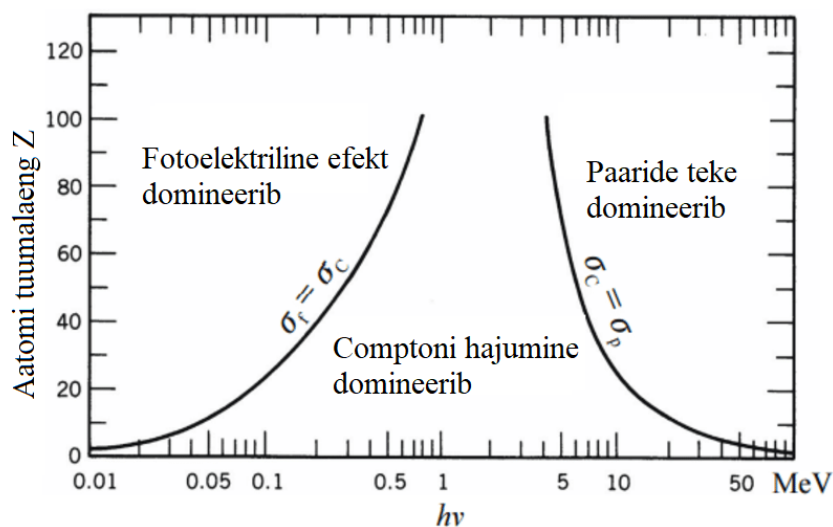
## 1.2 $\gamma$ -kiire vastastikmõju ainega

$\gamma$ -footonid suudavad astuda vastastikmõjusse ainega peamiselt kolmel viisil.

Suuremas osas looduslikult kiiratud  $\gamma$ -footonite energiavahemikus astub kiirgus ainega vastastikmõjusse fotoelektrilise efekti kaudu. Fotoelektriline efekt on nähtus, kus  $\gamma$ -footon neelatakse täielikult aatomi sisekihi elektroni poolt, tulemusena saab elektron piisava energia, et põgeneda aatomi potentsiaaliaugust ning muutub vabaks elektroniks. See-juures sõltub vastastikmõju suuresti neelava aine aatomlaengust. Mida kõrgem on aatomi laeng, seda rohkem on aatomil elektrone ja seda sügavamal potentsiaaliaugus asuvad sisekihtide elektronid. Fotoelektrilise efekti tõttu võib tekkida massineeldumiskoeffitsendi väärtusesse teravad kasvupiirkonnad, mis tulenevad asjaolust, et energia kasvades suudab footon astuda vastastikmõjusse aina rohkemate sisekihi elektronidega. [4]

Fotoelektriline efekt domineerib madalal energial neelava aine kõrge aatomlaengu juures. Erinevate vastastikmõjude domineerimispiirkonnad on välja toodud joonisel 1.1. Madala aatomlaengu ja keskmise energia piirkonnas domineerib Comptoni hajumine. Comptoni hajumine on kiirguse ja aine vastastikmõju, kus  $\gamma$ -footon kannab osa oma energiast üle laetud osakesele, tavaliselt on selleks elektron, vastastikmõju tulemusena muutub elektroni impulss ja footoni liikumissuund. Energia muutus on funktsioon suuna muutusest ehk hajumise nurgast.

Comptoni hajumine on peamine koe ja ioniseeriva kiirguse vastastikmõju viis, mille läbi saab bioloogiline kude kahjustada. [4]



Joonis 1.1:  $\gamma$ -footoni ja aine vahelise vastastikmõju domineerimispiirkonnad.  $\sigma$ -d viitavad vastastikmõjude ristlõigetele.[5]

Kõrgetel energiatel domineerib paaride teke. Paaride teke on nähtus, kus  $\gamma$ -foton muutub tuuma mõjuraadiuses elektron-positron paariks, seejuures peab  $\gamma$ -fotonil olema vähemalt 1022 keV (kiloelektronvolt) energiat. Kuna looduslikult kiirgatud  $\gamma$ -fotonid on reeglina madalama energiaga, siis keskkonnaproove uurides paaride teke domineerivaks vastastikmõjuks ei ole. [4]

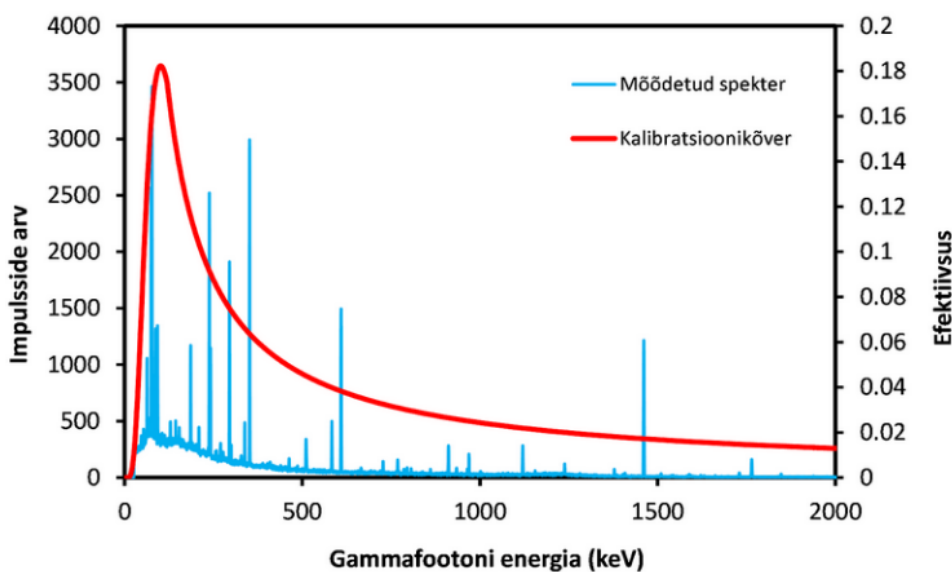
Materjalis esinevaid radionukliide eelmainitud vastastikmõjude vahendusel uurib gammaspetsimeetria.

### 1.3 Gammaspetsimeetria tööpõhimõte

Gammaspetsimeetria eesmärk on selgitada välja materjalis sisalduvad  $\gamma$ -kiirgavad radionukliidid ja määrata nende kogus, mis avaldub aktiivsuskontsentratsiooni näol. Aktiivsuskontsentratsioon on aine aktiivsus massiühiku kohta. Selleks valmistatakse uuritavast materjalist proov ja asetatakse detektori kambrisse, kus proovist emiteeruv kiirgus saab detektori materjaliga (pooljuht- või stsintillatsioonikristalliga) vastastikmõjusse astuda. Iga kiiratud foton see-eest kristalliga vastastikmõjusse ei astu, mistõttu on vajalik korrigeerida tulemusi parandusteguriga. Footonite loendamise efektiivsust kindal energial kirjeldatakse suurusega koguenergiajoone efektiivsus  $\epsilon$ , mis sõltub nii detektori ehitusest, footoni energiast kui ka kalibreerimisel kasutatavast kalibratsiooniallikast. Kalibratsiooniallikas on varasemalt määratud aktiivsusega proov, mis on ideaalsel juhul uuritava prooviga nii geomeetriselt kui keemiliselt võrdväärne. [6, 3]



Erinevate energiatega  $\gamma$ -fotonite mõõtmisel moodustub spekter, mille spektraalkoordinaadiks on energia ja väljundiks impulsside arv. Näide spektrist on välja toodud joonisel 1.2.



Joonis 1.2:  $\gamma$ -fotonite mõõtmisel moodustuv spekter koos efektiivsuse kalibratsiooni kõver.

Kuna radionukliidide lagunemisel kiirgatud  $\gamma$ -fotonid on karakteristikud, siis spektrit mõõtes on võimalik piikide ehk koguenergiajoonte järgi tuvastada proovis sisalduvaid radionukliidide. Impulsside arv sõltub mõõteajast, mis võib igal mõõtmisel olla erinev. Impulsside arvu asemel kasutatakse nende jagatist,  $\frac{N}{t}$ , ehk koguenergiajoone loenduskiirust.

Gammaspektromeetria tööpõhimõtet kirjeldab põhivõrrand

$$C = \frac{1}{\varepsilon \cdot \gamma \cdot m} \left( \frac{N_{proov}}{t_{proov}} - \frac{N_{foon}}{t_{foon}} \right) \left( \prod_i K_i \right)^{-1}, \quad (1.1)$$

kus  $C$  on radionukliidi aktiivsuskontsentratsioon,  $\gamma$  on laguneva tuuma  $\gamma$ -fotoni kiirgamise tõenäosus,  $m$  on proovi mass ja  $\frac{N}{t}$  on koguenergiajoone loenduskiirus. Suurte loenduskiiruste korral ei suuda detektor kõiki impulsse registreerida, osa vastastikmõjusid jääb mõõtmata, mistõttu valemis esinev  $t$  ei kirjelda mitte mõõteaga vaid detektori elusaega. Elusaeg on aeg, mille jooksul suudab detektor impulsse registreerida.  $K_i$  on parandustegurid, mis võtavad arvesse nii proovi radionukliidide radioaktiivset lagunemist proovivõtust mõõtmiseni, mõõtmise algusest lõpuni kui ka proovis kiiratud fotonite vastastikmõju proovi materjaliga. [3]

Ehitusmaterjalide kiirgusohutuse kindlakstegemisel ei ole lühikese poolestusajaga radionukliidid fookuses, sest eesmärgiks on hinnata potentsiaalset terviseriski, mida ehitusmaterjalidest kiirgatud gammakiirgus inimesele pikemas perspektiivis (hoonete

kasutusaja jooksul) kujutab. Proovi mõõtmise jooksul lagunenu radionukliidide kogust ei korrigeeritud, kuna käesolevas töös uuritavate radionukliidide poolestusajad olid piisavalt pikad, et mõõtmise jooksul lagunenu radionukliidide arvu koguhulgast võib lugeda tühiseks. Siiski võib esineda looduses ka tehislikke radionukliide, mille poolestusaeg on aastate suurusjärgus, mistõttu on tavapraktikaks proovi kogumise ja mõõtmise vahel toimunud radioaktiivse lagunemise korrigeerimine.

## 1.4 I-indeks

Ehitusmaterjalidest saadava doosi hindamine taandub kolme radionukliidi –  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  – mõõtmisele ning saadud aktiivsuskontsentratsioonide põhjal indeksi I väärtuse arvutamisele, mis on defineeritud kui

$$I = \frac{C_{Th}}{200 \text{ Bq/kg}} + \frac{C_{Ra}}{300 \text{ Bq/kg}} + \frac{C_K}{3000 \text{ Bq/kg}}, \quad (1.2)$$

kus  $C_x$  on  $x$  radionukliidi aktiivsuskontsentratsioon ja Bq on aktiivsuse SI süsteemi ühik, mis kirjeldab lagunemiste arvu sekundis.

Selline lähenemine on paika pandud üleeuroopalisel tasandil Euroopa Komisjoni direktiiviga [1] ja Eesti-siseselt keskkonnaministri määrusega „Kiirgustöötaja ja elaniku efektiivdooside seire ja hindamise kord, radionukliidide sissevõtmust põhjustatud dooside doosikoefitsientide ning kiirgus- ja koefaktori väärtused ning nende mõõtmise kord“ [7]. Samuti reguleerib valdkonda majandus- ja kommunikatsiooniministri määrus „Ehitusmaterjalidele ja -toodetele esitatavad nõuded ja nende nõuetele vastavuse tõendamise kord“ [2].

Kuigi aktiivsuskontsentratsiooni indeks ei tõlgendu otse ruumis viibiva inimese doosiks saab siiski ehitusmaterjalide aktiivsuskontsentratsiooni indeksit kasutada konservatiivse sõelumisvahendina, mis võimaldab tuvastada problemaatilisi materjale, millelt saadav aastane doos ületab Euroopa Direktiivis [1] määratud 1 mSv/a piirdoosi.

Lähtudes piirdoosist hinnatakse kõik materjalid, mille I-indeks ületab väärtust 1, problemaatiliseks ning nende kasutust piiratakse. [2]

## 1.5 Isotoobid

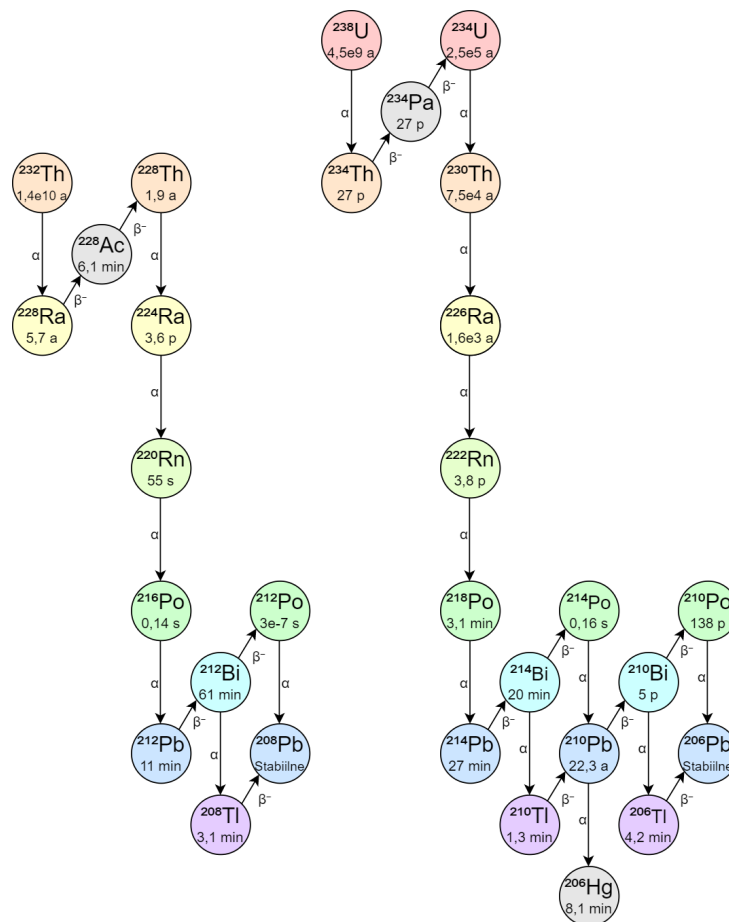
Töö raames tunti huvi peamiselt kolme looduses esineva radionukliidi  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{40}\text{K}$  vastu. Lisaks uuriti ka tehislisku radionukliidi  $^{137}\text{Cs}$ .

$^{232}\text{Th}$  on looduslikult esinev radioaktiivne isotoop, mille pikk poolestusaeg, ligikaudu

14 miljardit aastat, tagab ta olemasolu pinnases, kivimites, taimedes ja loomades.  $^{232}\text{Th}$  lagunedes tekib nii  $\gamma$ - kui  $\alpha$ -kiirgus ning tema tütar nukliidide lagunemisel ka  $\beta$ -kiirgust.  $^{232}\text{Th}$  ja tema tütar nukliidid (joonis 1.3) moodustavad potentsiaalse terviseohu. Lisaks gammakiirgusest põhjustatud väliskiiritusele võivad  $^{232}\text{Th}$  rea radionukliidid põhjustada ka sisekiiritust, kui need satuvad inimese kehasse kas joogi või söögiga või sisse hingates. Sissehingamise puhul mängivad doositekitajana rolli nii radioaktiivse gaasi –  $^{232}\text{Th}$  tütar nukliidi  $^{220}\text{Rn}$  – sisaldus õhus kui ka radionukliidide kleepumine tolmu osakestele [8].  $^{232}\text{Th}$  kiirgab lagunemisel 0,259% tõenäosusega 63,8 keV  $\gamma$ -footoni, mistõttu  $^{232}\text{Th}$  aktiivsuskontsentratsiooni määramine tema enda koguenergiajoone järgi osutub keeruliseks. See-eest on võimalik aktiivsuskontsentratsiooni usaldusväärselt määrata ta tütar nukliidide:

- $^{228}\text{Ac}$  338 keV, 911 keV ja 969 keV,
- $^{212}\text{Bi}$  727 keV,
- $^{212}\text{Pb}$  239 keV

koguenergiajoonte järgi.



Joonis 1.3:  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{238}\text{U}$  lagunemisread koos nukliidide poolestusaegadega.[9]

$^{226}\text{Ra}$ , poolestusajaga 1600 aastat, on raadiumi kõige stabiilsem isotoop, mis tekib  $^{238}\text{U}$  lagunemisrea  $^{230}\text{Th}$   $\alpha$ -lagunemise tulemusena. Suurtes kogustes  $^{226}\text{Ra}$  on terviseoht, kuid kõige kahjulikum on tema gaasilises olekus lagunemisprodukt  $^{222}\text{Rn}$  poolestusajaga 3,8 päeva.  $^{222}\text{Rn}$  on  $\alpha$ -kiirgaja ja talle iseloomuliku emaneerumisomaduse tõttu võib radionukliid ning tema lühiealised tütar nukliidid (joonis 1.3) sattuda sissehingatavasse õhku ja põhjustada kopsuvähki. [9]

$^{226}\text{Ra}$  enda koguenergiajoone mõõtmine osutub keeruliseks, kui proov sisaldab ka uraani. Looduslikus uraanis on esindatud nii  $^{238}\text{U}$  kui  $^{235}\text{U}$ .  $^{235}\text{U}$  185,7 keV koguenergiajoon on piisavalt lähedal  $^{226}\text{Ra}$  186,2 keV joonele, mis teeb  $^{226}\text{Ra}$  eristamise  $^{235}\text{U}$ -st detektori jaoks võimatuks.  $^{226}\text{Ra}$  mõõtmiseks peab olema rahuldatud sekulaarse tasakaalu tingimus.  $^{222}\text{Rn}$  takistab looduslikes proovides  $^{238}\text{U}$  lagunemisrea tasakaalu teket oma emaneerumisomaduse tõttu. Tasakaalu tekkimiseks tuleb proov hermeetilisest sulgeda ja seejärel oodata vähemalt 3 nädalat, et tasakaalutingimust saaks lugeda täidetuks.  $^{226}\text{Ra}$  aktiivsuskontsentratsiooni hinnatakse tema lagunemisrea produktide:

- $^{214}\text{Pb}$  242, 295 keV ja 352 keV
- $^{214}\text{Bi}$  609 keV, 1120 keV ja 1764 keV

koguenergiajoonte järgi. [9]

Kiirgusohutuse seisukohast pakub huvi loodusliku  $^{40}\text{K}$  sisaldus ehitusmaterjalides.  $^{40}\text{K}$  on looduses enimlevinud radioaktiivne nukliid [10], mille lagunemine toob endaga kaasa kõrge energiaga gammafootoni kiirgamise.  $^{40}\text{K}$  poolestusaeg on ligikaudu 1,25 miljardit aastat ning nukliidi aktiivsuskontsentratsiooni määratakse nukliidi enda lagunemise käigus kiiratud  $\gamma$ -footoni energia mõõtmisega. [9]

$^{137}\text{Cs}$  on antropogeense saaste marker. Kuigi tavaehitusmaterjalide I-indeksi arvutamisel seda arvesse ei võeta, on  $^{137}\text{Cs}$  sisaldus reguleeritud välitingimustes kasutatavates ehitusmaterjalides, täitepinnases kuni 5 Bq/g ja tänavate ning mänguväljakute ehitusmaterjalides kuni 2 Bq/g [7].  $^{137}\text{Cs}$  lagunemisel  $^{137}\text{Ba}$ -ks kiirgatakse  $\gamma$ -footon energiaga 662 keV, mille abil on võimalik  $^{137}\text{Cs}$  aktiivsuskontsentratsiooni määrata.

## 1.6 Omaneeldumine

Omaneeldumine on materjali omadus neelata iseendast emiteeruvat kiirgust. Omaneeldumine sõltub nii kiirguse energeetilisest karakteristikast kui materjali karakteristikast. Omaneeldumise nähtust on kõige selgemalt märgata suure tihedusega materjalides madala energiaga gammakiirgajate juures, nagu näiteks  $^{210}\text{Pb}$ . Omaneeldumisenähtust on võimalik kirjeldada

omaneeldumisteguriga, mis kirjeldab aine ja kiirguse vahelist vastastikmõju. [3]

Teguri juures on oluline defineerida taustsüsteem. Võimalik on võrrelda materjalist emiteeruvat kiirgust ja seda sama kiirgust ilma materjali takistuseta, ehk taustsüsteemiks võtta kiirguse leviku vaakumis või õhus. Siiski on praktilisem siduda tegur detektori kalibreerimisel kasutatava kalibratsiooniallikaga. Sellest tulenevalt kirjeldab tegur proovi materjalist emiteeruva kiirguse ja kalibratsiooniallikast emiteeruva kiirguse erinevust, mistõttu saab omaneeldumistegurist efektiivsuskövera parandustegur kindla proovi, kalibratsiooniallika ja energia korral. [3]

Kalibratsiooniallikas on teatud keemilise koostise, geomeetria ja aktiivsusega allikas, mille abil on võimalik koostada detektori efektiivsusköver. Kui gammaspektromeetriste mõõtmiste läbiviimisel puudub prooviga identne kalibratsiooniallikas, siis tihedusest, keemilisest koostisest ja geomeetriast tingitud erinevuse tõttu ei ole võimalik täielikult kalibratsiooniallikaga proovis toimuvat omaneeldumist korrigeerida. [6]

Omaneeldumistegurit on võimalik määrata kahel viisil. Esiteks saab vaadata kollimeeritud kiire käiku aines ja võrrelda siseneva ning väljuva kiirguse intensiivsust. Teine võimalus on välja selgitada aine kiirgusvõime ja seejärel mõõta ainest väljuvat kiirgust. Valemite kujul võib seadusi käsitleda:

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\frac{\mu}{\rho}\rho x}, \quad \frac{O}{A} = \frac{1 - \exp^{-\mu_m \rho x}}{\mu_m \rho x}, \quad (1.3)$$

kus  $x$  on neelava aine paksus,  $\mu$  on aine neeldumiskoeffitsient ja  $\rho$  on aine tihedus.  $\frac{\mu}{\rho}$  suhet ehk  $\mu_m$  nimetatakse massineeldumiskoeffitsiendiks.  $I_0$  on kiirguse algne intensiivsus,  $I$  ainet läbinud kiirguse intensiivsus,  $O$  on ainest väljuva kiirguse intensiivsus ja  $A$  on aines tekkinud kiirguse intensiivsus.  $\frac{O}{A}$  suhe näitab, mitu protsenti tekkinud kiirgusest jõuab ainest välja. [11]

Vasakul on Beer-Lambert'i seadus, mis käsitleb kollimeeritud kiire neeldumist ja paremal omaneeldumisvõrrand. Omaneeldumisvõrrandi korral ei penetreeri kiirgus materjali väljastpoolt, selle käigus läbides ainet paksusega  $x$ , vaid emiteerub materjali seest, kusjuures kiirgus läbib iga kord varieeruva teepikkuse, vastavalt kui lähedal on lagunev radionukliid materjali pinnale ja mis suunas on emiteeritud  $\gamma$ -kiir. Võrrand kirjeldab silidrilise geomeetriaga proovide omaneeldumist summeerides kõik emiteeritud  $\gamma$ -kiirte käigud läbi erinevate materjalikihtide. Tulemuseks on materjalist väljuva kiirguse intensiivsus. [11]

Ideaalselt saab kollimeeritud kiirega määrata aine neeldumiskoeffitsendi ja siis hinnata materjali omaneeldumist. Eksperimentaalse töö ajakulu ja vajalike kiirgusallikate puudumise tõttu kasutatakse tihti eksperimentaalsete meetodite asemel mudelarvutust.

Kiirguse stohhastiline iseloom teeb raskeks igasuguste deterministlike mudelarvutuste

tegemise, mistõttu kõige levinumad programmid kasutavad omaneeldumise hindamiseks Monte-Carlo meetodeid. Monte Carlo meetodid moodustavad arvutialgorütmide klassi, mis kasutavad korduvat juhuslikku valimit, et jõuda numbriliste tulemusteni, milleni determinislike meetoditega jõudmine pole teostatav. [12]

## 1.7 EFFTRAN

Üks Monte Carlo meetodile toetuv programm on EFFTRAN. EFFTRANi tööpõhimõte on üles ehitatud Moensi teoreemile, mille kohaselt virtuaalse koguenergiajoone efektiivsuse ja virtuaalse kogu-efektiivsuse suhe ei sõltu kindlal energial proovi geomeetriast ega keemilisest koostisest, sest tegemist on detektorit kirjeldava suurusega. [12]

Koguenergiajoone efektiivsus seostab spektris kindlal energial koguenergiajoone pindala allika poolt emiteeritud  $\gamma$ -footonite arvuga. See-eest kogu-efektiivsus seostab omavahel allika poolt emiteeritud  $\gamma$ -footonite arvu kogu spektri pindalaga. Virtuaalne efektiivsus viitab tõsiasi, et väljaspool detektori kristalli toimivate hajumistega ei arvestata. Moensi teoreemi abil on võimalik arvutada tundmatu proovi koguenergiajoonte efektiivsust, kui on välja arvatud kalibratsiooniallika ja proovi kogu-efektiivsuse suhe ning kalibratsiooniallika koguenergiajoone efektiivsus.

Meetodi võib kirja panna järgmiselt:

$$\varepsilon_{\text{proov}} = \varepsilon_{\text{kal}} \frac{\eta_{\text{proov}}}{\eta_{\text{kal}}}, \quad (1.4)$$

kus  $\varepsilon$  on koguenergiajoone efektiivsus ja  $\eta$  on kogu-efektiivsus. [12]

Proovi koguenergiajoone efektiivsuse arvutamiseks tuleb esmalt leida proovi ja kalibratsiooniallika kogu-efektiivsused. Kalibratsiooniallika koguenergiajoone efektiivsus on detektori kalibreerimisel juba leitud, mistõttu omaneeldumisteguri moodustabki kogu-efektiivsuste suhe. Selleks konstrueeritakse EFFTRANis detektori, kalibratsiooniallika ja proovi mudel. Kõik mudelid on piiratud silindrilise sümmeetriaga. Seejärel genereeritakse ühtlane jaotus  $\gamma$ -kiiri üle allika ruumala, millest igaüks kiiratakse isotroopiliselt juhuslikult valitud nurgaga. Kiiratud  $\gamma$ -kiirtest võetakse juhuslik valim ja hinnatakse  $\gamma$ -kiire vastastikmõju tõenäosust detektori kristalliga, seejuures mängib rolli, kuidas kindlal energial footon astub vastastikmõjusse keemiliste elementidega allikas ja detektori materjalides.  $\gamma$ -kiirte vastastikmõju tõenäosused integreeritakse kokku üle ruumi ja arvutatakse kaalutud keskmine, millest moodustubki kogu-efektiivsus  $\eta$ . Kogu-efektiivsus sõltub detektori

geomeetriast ning materjalidest, lisaks allika keemilisest koostisest, geomeetriast ja tihedusest. Arvutuskäik tehakse läbi nii proovi kui kalibratsiooniallika korral. Kui EFFTRANi sisestada kalibratsioonikõvera väärtused, siis annab EFFTRAN väljundiks kindlal energial koguenergiajoone efektiivsuse. Kui sisestada EFFTRANi kalibratsiooniallika koguenergiajoone efektiivsuse asemel väärtused 1, siis annab EFFTRAN väljundiks kogu-efektiivsuste suhte, mis korrigeerib kalibratsiooniallika ja proovi tihedusest, keemilisest koostisest ja geomeetria erinevustest tingitud omaneeldumise erinevust. [12]

Detektori geomeetria ja materjalide määramine ei osutu probleemiks, kui on olemas tootjapoolne detektori detailne joonis. Ka kalibratsiooniallika keemiline koostis on üldiselt referentsmaterjali (teatud aktiivsuskontsentratsiooniga materjal) sertifikaadiga määratud. Proovid ja referentsmaterjalid asetatakse sama geomeetriaga proovitopsidesse. Nii kalibratsiooniallikat kui proovi kaaludes saab tiheduse arvutada. See-eest ei saa tagada kalibratsiooniallika ja proovi materjali keemilise koostise kattuvust, keskkonnaproovide või looduslike materjalide uurimisel ei teata materjali täpset keemilist koostist.

Proovi keemilise koostise teadmatusel tulenevalt ei saa alati mudelarvutusprogramme usaldusväärset kasutada. Siiski, probleemi saab potentsiaalselt lahendada, kui selgub, et kindlatel tingimustel on mudelarvutusmeetod keemilise koostise täpse teadmise osas vähetundlik. Tähehädades, et kalibratsiooniallika ja proovi keemilise koostise erinevus ei mõjuta märkimisväärselt omaneeldumisteguri väärtust.

Käesoleva töö raames uuriti mudelarvutusprogrammi EFFTRAN rakendatavust võrreldes eksperimentaalse meetodiga, nende täpsust erinevatel tihedustel, geomeetrial,  $\gamma$ -kiirte energiatel ja mudelarvutusprogrammi tundlikkust keemilise koostise osas.

# Peatükk 2

## Metoodika

### 2.1 BEGe detektor

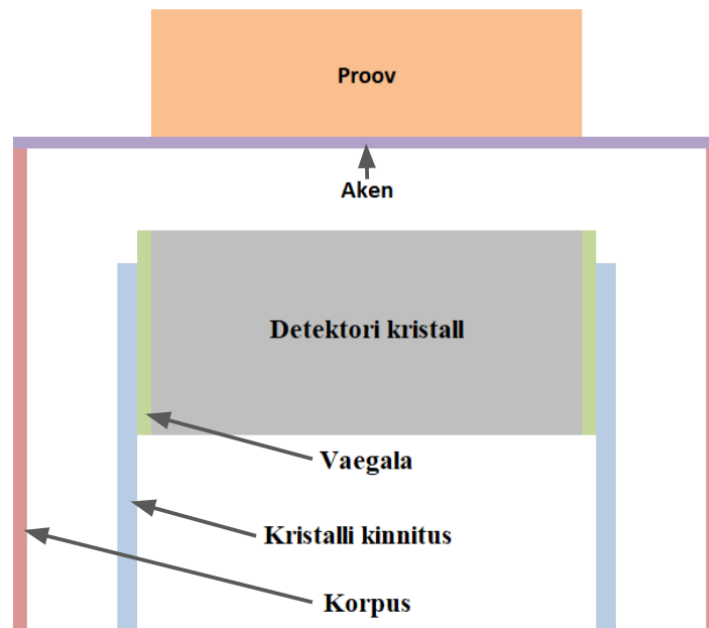
Käesoleva töö raames kasutati mõõtmiste läbiviimiseks Canberra BEGe (*Broad Energy Germanium*) tüüpi detektorit (tootja Mirion Technologies, USA). Tegemist on planaarse ülipuhast germaaniumkristalli kasutava pooljuhtdetektoriga, mille lai energiavahemik, 3 keV-ist 3 MeV-ni, võimaldab määrata looduslikes materjalides esinevaid radionukliide. Germaaniumi väikese keelutsoonilaiuse tõttu on vajalik, et soojusest tingitud müra oleks maha surutud kristalli mahajahutamisega, milleks kasutatakse vedelat lämmastikku. Ümbritseva fooni vähendamiseks on detektori kristallikamber ümbritsetud plii varjestusega ning plii karakteristikliku röntgenkiirguse peatamiseks detektori kambri sisu vase mähisega. Detektor on ühendatud arvutiga, mis genereerib mõõtmise andmete põhjal spektri väljundfaili. Väljundfail kirjeldab  $\gamma$ -footonite ja aine vahelise vastastikmõjude arvu sõltuvust loenduskanalist. Kanalid on lineaarses seoses energiaga.

EFFTRANi kasutamiseks tuli konstrueerida detektorist mudel. Mudeli konstrueerimisel kasutatud parameetrid saadi tootjatelt ning on välja toodud tabelis 2.1 ja proov-detektor konfiguratsiooni on näha joonisel 2.1.



Tabel 2.1: Mudeli konstrueerimisel kasutatud detektori geomeetriad kirjeldavad suurused. Diameetrid viitavad välisele diameetrile.

kristalli diameeter	71,00 mm		
kristalli kõrgus	30,00 mm		
kristalliääre kumerus	0,01 mm		
akna paksus	0,60 mm	kristalli materjal	germaanium
akna-kristalli vahe	4,50 mm	akna materjal	süsinik-epoksiid
surnud kihi paksus	0,10 mm	corpuse materjal	alumiinium
corpuse diameeter	85,00 mm	kristalli kinnituse materjal	vask
corpuse paksus	1,50 mm		
kristalli kinnituse paksus	0,60 mm		



Joonis 2.1: Detektor-proov konfiguratsiooni ristlõige.

## 2.2 Kalibratsiooniallikad RGU-1, RGTh-1 ja RGK-1. Kontrolliallikad BFI-12 ja CBSS-2.

Gammaspektromeetrilise meetodika juures on äärmiselt olulisel kohal kalibratsiooniallikad. Kalibratsiooniallikaid kasutatakse, et:

1. kalibreerida energiatelg (mis detektori kanal millisele energiale vastab);

2. kalibreerida resolutsioonitelg (mida paremini on kalibreeritud resolutsioonitelg, seda paremini on võimalik eristada kahte lähestikku asetsevat koguenergiajoont);
3. saada teada mõõteefektiivsus;
4. tagada mõõtmiste jälgitavus (mõõtmistulemused oleksid otseselt seostatavad SI-ühikutega).

Radionukliidide määramiseks võeti kasutusele kolm kalibratsiooniallikat,  $^{226}\text{Ra}$  hindamiseks RGU-1,  $^{232}\text{Th}$  hindamiseks RGTh-1 ja  $^{40}\text{K}$  hindamiseks RGK-1. Kalibratsiooniallikad valiti radionukliidide järgi, mida I-indeksi määramiseks vaja läheb. Kõik kalibratsiooniallikad on valmistatud referentsmaterjalidest (kindlate aktiivsuskontsentratsioonidega materjalid), mis on valmistatud IAEA (*International Atomic Energy Agency*) poolt 1987. aastal [13]. Referentsmaterjalide vanus ei valmista probleeme, kuna uuritavate radionukliidide poolestusajad on tuhandetes ja miljardites aastates. Kalibratsiooniallikate tihedused ja aktiivsuskontsentratsioonid on välja toodud tabelis 2.2, geomeetria on proovidega identne. Proovi ja allikate geomeetria sõltub kahest asjaolust. Ühest küljest mõjutab geomeetriat topsi liik (mõõdud ja topsi materjal), teisalt see, kui palju materjali on topsi pandud.

Meetodite võrdlemiseks kasutati kontrollallikaid, et veenduda tulemuste tõesuses, meetodite usaldusväärsuses ja konstrueerida mõõte-metoodikale laiaulatuslik määramatuse profiil. Esimeseks kontrollallikaks valiti madala tihedusega,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  ja  $^{60}\text{Co}$  isotoope sisaldav CBSS-2 kalibratsiooniallikas. Kalibratsiooniallikas oli Tšehhi Metroloogia Instituudi poolt valmistatud. CBSS-2 topsi geomeetria met57 erines kalibratsiooniallika topsi geomeetriast met2oz, kuid seda minimaalselt, muutused tulemustes langesid mõõtemääramatuste piiridesse, mistõttu oli allikate omavaheline võrdlemine õigustatud. CBSS-2 kontrollallika eesmärgiks oli kontrollida, kui võrd edukalt on võimalik määrata proovis nukliidide aktiivsuskontsentratsioone, kui kalibreerida detektori efektiivsuskõver mitte-mõõdetavate nukliididega. Lisaks kontrollallika madala tiheduse tõttu saab kontrollida, kui hästi tulevad meetodid toime madala tihedusega proovi korrigeerimisega. Teiseks kontrollallikaks valiti 2019. aastal NPL'i (*National Physical Laboratory*, UK) korraldatud rahvusvahelise  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  võrdlusmõõtmise proov BFI-12. Kontrollallika anum oli kalibratsioonianumaga identne, kuid ei olnud täielikult täidetud materjali puuduse tõttu. Käesoleva kontrollallika eesmärgiks oli kontrollida  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  mõõtemetodite täpsust. Lisaks ka hinnata, kas meetodid suudavad edukalt korrigeerida geomeetria erinevusest tingitud omaneeldumise efekti. BFI-12 ja CBSS-2 aktiivsuskontsentratsioonid on välja toodud vastavalt tabelites 3.1 ja 3.2.

Tabel 2.2: Vasakus tabeli kalibratsiooniallikate aktiivsuskontsentratsioonid katteteguriga  $k=2$  [13]. Kõik suurused on Bq/g ühikutes. Paremal tabelis on välja toodud kalibratsiooniallikate tihedused.

		Tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	
	RGU   RGTh   RGK	RGU-1	1,496
Ra-226	4,939 ± 0,025	RGTh-1	1,368
Th-232	3,246 ± 0,065	RGK-1	1,626
K-40	13,573 ± 0,091	CBSS-2	0,985
		BFI-12	1,342

## 2.3 Punktallikatega omaneeldumise mõõtmine

Käesoleva töö raames kasutati eksperimentaalsete omaneeldumistegurite arvutamiseks Cutshalli [11] meetodit. Selleks asetati proov detektori kristalli kohale ja kollimeerimata punktallikas proovi keskele. Sama protsess läbiti ka kalibratsiooni- ja kontrollallikatega. Mõõdetud spektrite loenduskiiruseid kasutades on võimalik välja arvutada omaneeldumistegur valemiga 2.1, mis on tuletatud valemist 1.3.

$$K = \frac{\frac{R}{R_0} - 1}{\ln \frac{R}{R_0}}, \quad (2.1)$$

kus  $R$  on proovi või kontrollallikat läbinud punktallika loenduskiirus, kusjuures  $R$  saamiseks tuleb mõõdetud loenduskiirusest (punktallikas + proov) maha lahutada proovi loenduskiirus, ja  $R_0$  on kalibratsiooniallikat läbinud punktallika loenduskiirus. [11]

Omaneeldumise mõõtmiseks kasutati 5 erinevat punktallikat. Nukliidide nimetused ja energiad on välja toodud tabelis 2.3. Madala energiaga gammafootoneid kiirgavaid punktallikaid on ebaproportsionaalselt palju, kuna madala energia piirkonnas on omaneeldumine kõige tugevam.

Töö käigus kontrolliti ka kollimeetritud punktallika kiire rakendatavust. Selleks valmistati plii-metallist risttahuka-kujuline kollimaator. Kollimaatori geomeetrilised parameetrid olid piiratud detektori akna kandevõime poolt. Piisavaks loeti, kui kollimaatori neeldumisvõime 2000 keV energiaga  $\gamma$ -footoni korral on vähemalt 95%. Arvutuse

Tabel 2.3: Punktallikate nukliidid ja eksperimendis kasutatud gammafootonite energiad.

Nukliidi nimi	Energia (keV)
<sup>210</sup> Pb	46,6
<sup>241</sup> Am	59,6
<sup>133</sup> Ba	302,9
<sup>133</sup> Ba	356,0
<sup>137</sup> Cs	661,7
<sup>60</sup> Co	1332,5

tulemusena selgus, et tingimuse rahuldamiseks peab  $\gamma$ -kiire allika ja detektori vahel olema vähemalt 6 cm pliid. Kollimaatori keskele puuriti 2 mm diameetriline auk, mille abil oleks võimalik tekitada joonkiirgust.

Kollimeeritud kiirguse lähenemine osutus ebapraktiliseks, kuna punktallikas ei olnud eristatav ümbritsevast foonist. Kollimeeritud kiire kasutamise jaoks oleks tarvis kõrge aktiivsusega allikaid, mille hoiustamine, kasutamine ja vastavate lubade taotlemine poleks keskkonnaproovide mõõtmiste raames majanduslikult põhjendatud. Lisaks valmistavad kõrge aktiivsusega punktallikad ka täiendavat terviseriski töötajatele.

## 2.4 Proovide ettevalmistamine ja mõõtmine

Omaneeldumistegurite mõõtmiseks valmistati 6 proovi, mille tihedused varieerusid 1,05-2,25 g/cm<sup>3</sup> (tabel 2.5). Proovide materjal võeti portlandtsement CEM I 42,5N tüüpi 40 kg (tootja Kunda Nordic Tsement) tsemendikotist. Kuivatamiseks kasutati termilise alumiiniumlehega kaetud vaagnat, mille sisse tõsteti lusikaga tsemendikoti 5 erinevast piirkonnast visuaalselt homogeenet tsemendipulbrit. Kuivatusvaagen asetati ahju, kus proov kuivas ligikaudu 24 tundi 105 °C kuumuse juures.

Madala tihedusega tsemendiproovi valmistamiseks täideti üks tops kokku pressimata tsemendipulbriga. Ülejäänud pulber suruti hüdraulilise pressiga, mille jupid tehti kokku lubrikatiivse õliga hilisemaks sujuvamaks pressitud materjalide kättesaamiseks. Valmistati neli eri tihedusega hokilitrikujulist proovi, kusjuures maksimaalne pressi pinge oli ligikaudu 400 KPa. Kõik proovid asetati met2oz (mõõtmed tabelis 2.4) geomeetriaga topsidesse ning kaaluti. Radooni väljapääsemise takistamiseks kaeti topsi kaane ja sein vaheline pragu modelleerimissaviga ja seejärel isoleerteibiga. Kõige lõpus kirjutati peale proovide sisu mass ja sulgemise kuupäev. Proovi keemiline koostis (tabel 2.4) saadi tootjate käest.

Tabel 2.4: Proovi keemiline koostis. Täidetud met2oz anuma geomeetria. Akna-anuma vahe kirjeldab detektori akna ja proovi vahe, mis tekib, kui proov fikseerida topsihoidjaga kristalli peale.

Ühend	Massiprotsent
CaO	59.53%
SiO <sub>2</sub>	19.35%
CaCO <sub>3</sub>	7.50%
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.59%
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.28%
MgO	1.87%
SO <sub>3</sub>	1.62%
K <sub>2</sub> O	0.68%
Na <sub>2</sub> O	0.13%
<b>Täitmise kõrgus</b>	18,80 mm
<b>Diameeter</b>	61,60 mm
<b>Seina paksus</b>	0,25 mm
<b>Akna-anuma vahe</b>	0,20 mm
<b>Materjal</b>	Alumiinium

Tabel 2.5: Valmistatud proovide nimekiri. \*Tsement 1 on Tsement 6 võrdlusproov, mille abil kontrolliti mõõtemetoodika kordustäpsust. Tsement 1 mõõtetulemused kattusid Tsement 6 tulemustega määramatuse piires, mistõttu loeti metoodika kordustäpsuse osas usaldusväärseks.

Proovi nimi	Materjali mass	Proovi tihedus
Tsement 6	62,481(1) g	1,0564 g/cm <sup>3</sup>
Tsement 1*	65,023(1)g	1,0993 g/cm <sup>3</sup>
Tsement 3	80.350(1) g	1,3585 g/cm <sup>3</sup>
Tsement 4	98,099(1) g	1,6586 g/cm <sup>3</sup>
Tsement 2	120,894(1) g	2,0440 g/cm <sup>3</sup>
Tsement 5	133,085(1) g	2,2501 g/cm <sup>3</sup>

Pressitud tsemendipulbri ülemisele äärelle tekkis tume triip (joonis 2.2). Kõige tõenäosem põhjendus on pressimise käigus pulbriga kokkupuutes olnud lubrikant. Ootamatu nähtus aktiivsuskontsentratsiooni mõõtmisi ei mõjutanud, kuna nähtus ei saanud põhjustada proovi märgatavat ristsaastumist uuritavate radionukliididega, mistõttu rohkem tähelepanu asjaolule ei pööratud.

Ettevalmistatud proovid seisid ligikaudu 3 nädalat, et <sup>238</sup>U rea radionukliidide, <sup>226</sup>Ra ja <sup>222</sup>Rn vahel oleks tagatud sekulaarne tasakaal. Aja möödumisel sooritati iga prooviga ööpäeva pikkune mõõtmine. Ööpäevased mõõtmised tehti ka kõikide kalibratsiooniallikatega ja tühja anumaga. Lisaks kontrolliti ka ööpäevaste mõõtmistega kollimaatori potentsiaalset kasutuskõlblikkust.



Joonis 2.2: Hüdrauliliselt pressitud tsemendipulber.

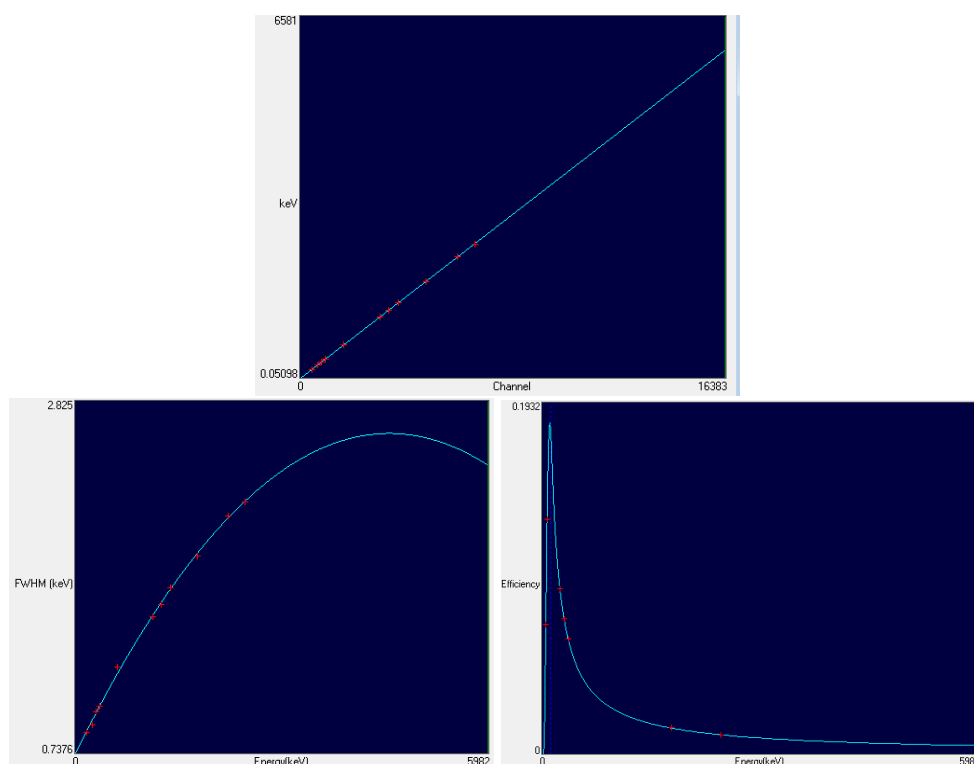
Järgmisena sooritati iga proovi ja kalibratsiooniallikaga ükshaaval <sup>210</sup>Pb, <sup>241</sup>Am, <sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs ja <sup>60</sup>Co punktallikatega mõõtmine. Punktallikas asetati detektori kristalli kohal asetseva proovi kaane keskele. Madalama energiaga punktallikad (<sup>210</sup>Pb, <sup>241</sup>Am) nõudsid aktsepteeritava statistilise määramatuse (< 2%) jaoks pikemaid mõõteajaga, mis varieerusid paarikümnest minutist mõne tunnini. Kõrgema energiaga ja intensiivsemate punktallikate (<sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co) korral piisas 3-minutilise mõõteajast, et tagada aktsepteeritav mõõtemääramatus. Viimasena sooritati punktallikatega mõõtmised CBSS-2 ja BFI-12 kontrolliallikatega.

## 2.5 Spektrite analüüs

Mõõtmiste väljundfailide analüüsiks kasutati GammaVision (versioon 6.07, tootja Ortec) tarkvara. Detektori väljundfaili liides .CNF ei ühtinud GammaVisionile sobivate liidestega, mistõttu esimese sammuna konverteeriti spektrifailid programmiga Cambio (versioon 4.0, tootja Sandia National Laboratories) .spc failiformaati. Kõikidest spektritest lahutati maha fooni spekter (mõõtmine tehtud tühja anumaga).

Punktallikatega tehtud mõõtmiste analüüsil spektrifaile ei kalibreeritud, kuna spektromeetri energiatelg oli võrdlemisi stabiilne, GammaVision suutis radionukliidide piigid õigesti tuvastada. See-eest kalibreeriti detektori energiatelg, resolutsioon ja efektiivsus aktiivsuskontsentratsioonide arvutamiseks. Kalibreerimise läbiviimisel kasutati kalibratsiooniallikaid RGU-1 ja RGTh-1. RGK tulemused arvutati GammaVisioni analüüsimisvõimekuse abita Excelis, kuna  $^{40}\text{K}$  spektris on ainult üks koguenergiajoon 1460 keV, mistõttu osutub selle abil kalibratsioonikõverate loomine problemaatiliseks.

Kalibreerimiseks valiti kalibratsiooniallikas usaldusväärsed koguenergiajooned ja vastavalt nende joonte energiatele ja aktiivsustele koostas GammaVision kalibreerimiseks energia-, resolutsiooni- ja efektiivsuskõvera. Kõverate kujusid on näha jooniselt 2.3.



Joonis 2.3: RGU-1 põhjal koostatud kalibratsioonikõverad GammaVision tarkvara abil. Järjestus: energiakõver, resolutsioonikõver, efektiivsuskõver. Punased täpid on andmepunktid, mille järgi kõver moodustati.

Kasutati varasemalt konstrueeritud keskkonnas esinevate nukliidide raamatukogu. Raamatukogu sisaldab endas radionukliidide nimetusi, poolestusaegu, gammafootonite energiad ja vastavate footonite emiteerimistõenäosusi. Nukliidide raamatukogu on vajalik, et GammaVision tarkvara saaks aru, millisele nukliidile spektris esinevad koguenergiajooned kuuluvad. Korrektselt kalibreeritud spektri abil annab GammaVision igale koguenergiajoonele vastava aktiivsuse, lahterdab nukliidide kaupa koguenergiajooned ja hindab loendusstatistilist määramatust esitades tulemused .rpt faili kujul. Lisaks loendusstatistilisele määramatusele annab GammaVision ka:

- liitmääramatuse, kuhu on lisatud efektiivsuse määramatus,
- nukliidide raamatukogu failist (vaikeväärtus olenevalt radionukliidist kuni 5%) süstemaatilise,
- juhuslikust veast tulenev määramatus, kui vastav info on proovi kohta kohta sisestatud (vaikeväärtused 1%).

# Peatükk 3

## Tulemused ja arutelu

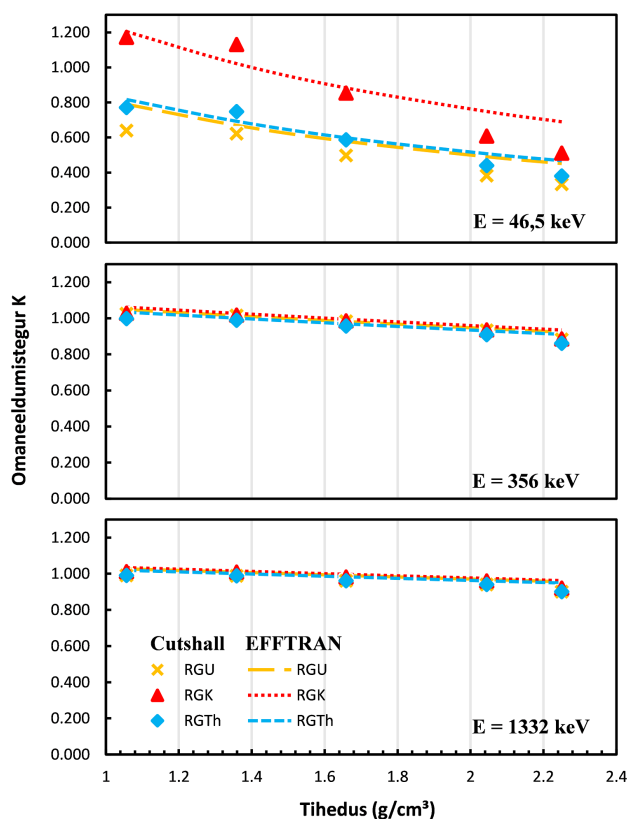
### 3.1 Omaneeldumistegur

#### 3.1.1 Omaneeldumisteguri sõltuvus proovi tihedusest

Tavaolukorras pole proovi tihedus kalibratsiooniallikaga võrdne, mistõttu on oluline uurida mudelarvutusmeetodi ja eksperimentaalse meetodi poolt genereeritavate korrigeerivate väärtuste funktsionaalset sõltuvust tihedusest. Usaldusväarsuse testimiseks võrreldi meetodite omavahelist kokkulangevust. Omaneeldumistegurite väärtused on välja toodud Lisas A ja nende määramatused Lisas C.

Joonis 3.1 illustreerib omaneeldumist proovi tiheduste vahemikus 1-2,3 g/cm<sup>3</sup> madala, keskmise ja kõrge energiaga  $\gamma$ -fotonite korral. On näha, et madala energia piirkonnas on mudelarvutusmeetodi ja eksperimentaalse meetodi vaheline kooskõla kehv.

Mainimist väärivad eksperimentaalse



Joonis 3.1: Omaneeldumisteguri sõltuvus proovi tihedusest.



meetodi omaneeldumisteguri väärtuse stagneerumine 1,3-1,4 g/cm<sup>3</sup> piirkonnas. Sellist nähtust mudelarvutus ei ennusta.

Tulemusi üldistades võib öelda, et tiheduse kasvades omaneeldumisteguri väärtus langeb - läbivale  $\gamma$ -kiirgusele jääb ette rohkem ainet, mille arvelt on vastastikmõju tõenäosus suurem. Omaneeldumise sõltuvust tihedusest kirjeldavad hästi kõverate tõusud, madala energia piirkonnas sõltub omaneeldumisnähtus märkimisväärselt rohkem tihedusest kui kõrge energia piirkonnas. Madala energia piirkonnas valitseb sub-lineaarse seos omaneeldumistegurite ja tiheduse vahel, mis lähenevad energia kasvades lineaarsele sõltuvusele.

Keskmise energia piirkonnas on meetodite kokkulangevus hea, sõltuvus lineaarne, ning kalibratsiooniallikate vaheline erinevus väiksem, mis on ka ootuspärane, kuna energia kasvades on suurem tõenäosus, et  $\gamma$ -kiir ei astu vastastikmõjusse läbitava ainega. Omaneeldumisteguri varieerumine tihedusega on väiksem, seda kõikide kalibratsiooniallikate korral. Kõrge energia piirkonnas langevad tulemused praktiliselt kokku. Võib märkida, et kõrge energiaga  $\gamma$ -kiire neeldumine praktiliselt ei sõltugi kalibratsiooniallika keemilisest koostisest ega tihedusest, sest kõrge energiaga footonid neelduvad proovis ülivähe.

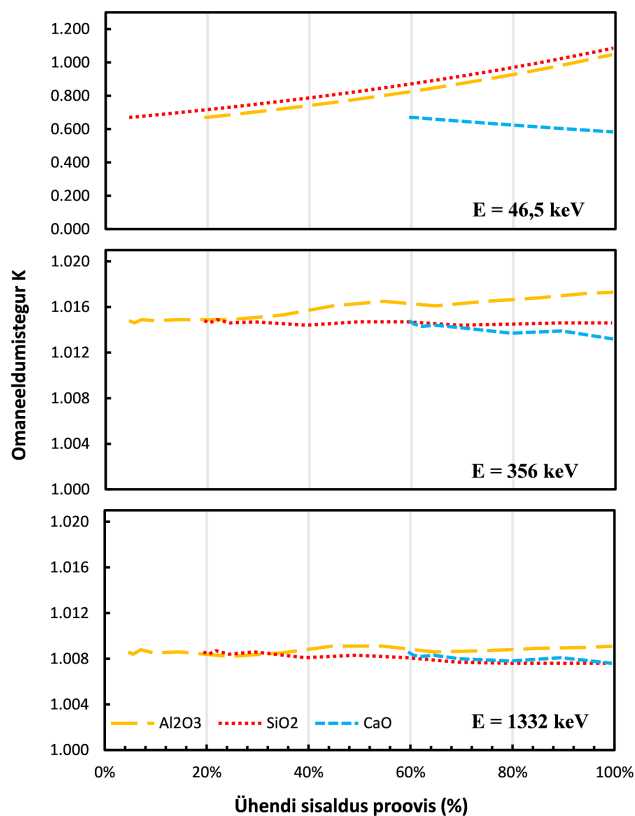
Väljaspool madala energia piirkonda on tiheduse erinevuse korrigeerimiseks piisav lineaarne lähendus. Madala energia piirkonna tiheduse korrigeerimiskõvera täpset funktsionaalset sõltuvust konstrueeritud katsega määrata ei olnud võimalik. Kuna ehitusmaterjalide kiirgusohutuse seisukohast pole vajalik hinnata madala energiaga  $\gamma$ -kiirgajaid, siis tundmatu funktsionaalne seos ei valmista probleeme.

### 3.1.2 Omaneeldumisteguri sõltuvus keemilisest koostisest

Omaneeldumisteguri sõltuvust keemilisest koostisest uuriti EFFTRANiga. Selleks, et oleks võimalik välistada tiheduste erinevustest tulenev efekt, viidi arvutused läbi kontrollallikaga tiheduselt kõige sarnasema prooviga. Otsust toetas veel fakt, et sarnase tihedusega kontrollallika korral tulemused kattusid sertifikaadi väärtustega mõõtemääramatuse piires (Peatükk 3.2). Seejärel hakati varieerima EFFTRANis proovi keemilise koostise (tabel 2.4) sisendit. EFFTRANisse sisestatakse proovi koostis keemiliste ühendite kujul. Ühendite osakaalud tuleb ette anda protsentidena, kuid väärtused kokku ei pea andma 100% - normeerimise teostab programm automaatselt sisestatud väärtuste põhjal. Selleks, et suurendada huvipakkuva keemilise ühendi osakaalu proovis, jättes ülejäänud ühendite massiprotsentide suhted samaks, kasutati valemit:

$$x_0 = \frac{1}{\frac{1}{A} - 1} \sum_{i=1}^{N-1} x_i, \quad (3.1)$$

kus  $x_0$  on kasutaja poolt EFFTRAN'isse sisestatav väärtus (huvipakkuva keemilise ühendi normeerimata osakaal proovis). Matriksi normeerimisel moodustab see A protsenti proovi kogumassist.  $N$  on erinevate keemiliste ühendite arv proovis ja  $x_i$  on  $i$ -nda keemilise ühendi protsentuaalne sisaldus.



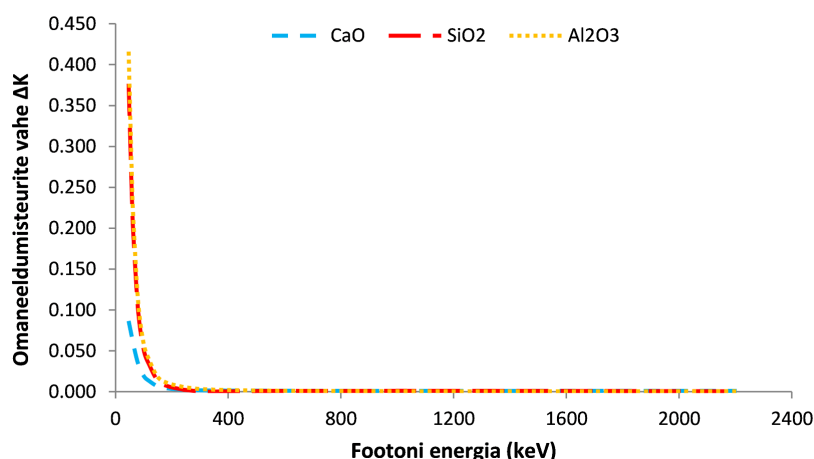
Joonis 3.2: Omaneeldumisteguri sõltuvus ühendi sisaldusest proovis.

mänginud rolli, missuguse keemilise ühendi sisaldust muuta, kõrgemal kui 300 keV piirkonnas muutus kõikide ühendite korral parandustegurite erinevus tühiseks. Sama järelduseni jõuti ka analoogse arvutuse läbiviimisel kontrollallikas BFI-12-ga (Lisa B).

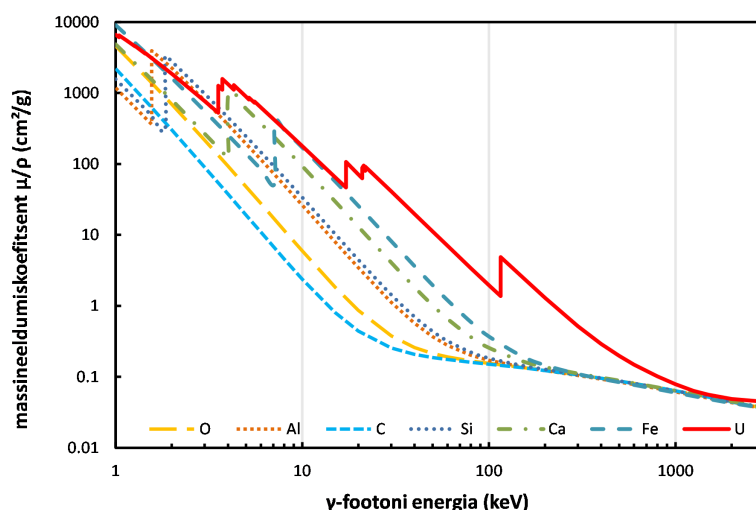
$^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsioone määratakse kõrge energiaga  $\gamma$ -footonitega, mistõttu on täpse keemilise koostise mõju lõpptulemusele väike. See-eest asuvad  $^{226}\text{Ra}$  aktiivsuskontsentratsiooni arvutamisel kasutatavad koguennergiajooned, 242 keV ja 295 keV, täpselt piiri peal, keemilise koostise mõju omaneeldumistegurile ei ole enam tühine. Siiski on see mõju piisavalt väike, 242 keV koguennergiajoone korral muutus joonisel 3.3 illustreerid tingimustes tulemus vaid kuni 0,6% originaalse proovi omaneeldumisteguri väärtusest. Madalast tundlikkusest tingituna tasub siiski kasutada materjale modelleerides üldistatud keemilist koostist.

Kalibratsiooniallikaks valiti RGU-1. Varieerimiseks valiti kolm peamist keemilist ühendit:  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$  ja  $\text{CaO}$ . Alustati proovi algsest massiprotsendist ja hakati suurendama 1%, 2,5%, 5% ja edasi 10% võrra. Lõpetati, kui proovi moodustas vaid üks keemiline ühend. Muudetud keemilise koostisega proovi omaneeldumistegureid erineva energiaga  $\gamma$ -footonite korral on näha joonisel 3.2. Joonisel ei alga  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{CaO}$  ega  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sisaldused nullist, vaid nende elementide originaalsisaldusest tsemendis. Tsemendi originaalkoostis on välja toodud tabelis 2.4.

Selgus, nagu on näha joonisel 3.3, et hoolimata sellest kui palju proovi keemilist koostist muuta, muutuvad parandustegurid märkimisväärselt vaid madala energia piirkonnas. Seejuures ei



Joonis 3.3: Tsemendi ja vaid ühest ühendist koosneva hüpoteetilise proovi omaneeldumistegurite vahe.



Joonis 3.4: Massineeldumiskoeffitsendid. [14]

Tõepoolest, kui võrrelda mudelarvutuse tulemust elementide massineeldumiskoeffitsientidega (joonis 3.4), siis on näha selget trendi, kus kergete elementide koeffitsiendid langevad 300-2000 keV piirkonnas kokku.

Tulemustest saab järeldada, et kui uuritav materjal sisaldab peamiselt kergetest elementidest koosnevaid keemilisi ühendeid, ei ole täpne protsentuaalse keemilise koostise teadmine oluline ning EFFTRAN'i mudeli koostamiseks sobivad väga hästi materjalide üldised koostised, mida on võimalik leida internetist. I indeksi määramisel olulisi radionukliide,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{40}\text{K}$ , on võimalik määrata piisavalt kõrge energiaga  $\gamma$ -footonite abil, mistõttu suur omaneeldumistegurite vahe madala energia piirkonnas ei osutu probleemiks. Analooesed tulemused saadi ka BFI-12 kontrollallika keemilist koostist varieerides.

Kuna CaO, SiO<sub>2</sub> ja Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> näol on tegu ühenditega, mis koosnevad kergetest elementidest, siis tehtud järeldust ei saa laiendada raskematest elementidest koosnevatele proovidele. Juba massineeldumiskoeffitsientidest selgub (joonis 3.4), et 100-1000 keV vahemikus ei lange raske elemendi U (ehk uraan) massineeldumiskoeffitsient kergete elementidega kokku. Samas tundub 1000-2000 keV piirkonnas kattuvus olevat hea ja tulevikus tasub uurida, kas leidub ka energiateljel piirkondi, kus saab laiendada keemilise koostise teadmatust raskematele elementidele.

### 3.1.3 Omaneeldumisteguri tundlikkuse sõltuvus proovi tihedusest ja keemilisest koostisest

Järgmisena vaadati kalibratsiooniallika keemilise koostise kui ka tiheduse erinevuse mõju omaneeldumistegurile erinevatel proovi tihedustel.

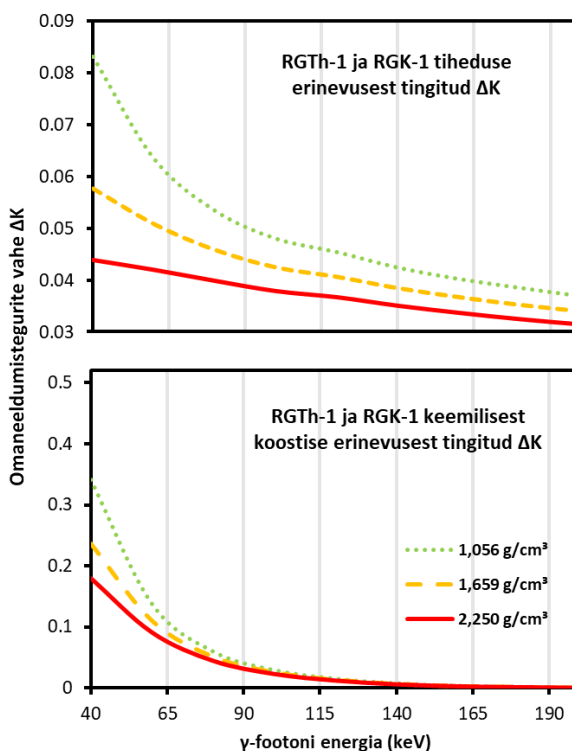
Selleks võrreldi omavahel nelja EFFTRANi keskkonnas modelleeritud kalibratsiooniallika

1. RGTh-1,
2. RGK-1,
3. RGTh-1 keemilise koostisega, kuid RGK-1 tihedusega,
4. RGK-1 keemilise koostisega, kuid RGTh-1 tihedusega,

omaneeldumistegureid.

Omaneeldumistegurid arvatati erinevate tihedustega proovide korral, graafikul 3.5 on välja toodud omaneeldumistegurite vahe kõverad kolme proovi tiheduse korral. Ülemisel graafikul on näha 1. ja 3. kalibratsiooniallikaga arvatatud omaneeldumistegurite vahe, kus ainukeseks erinevuseks oli tihedusest tingitud erinevus.

Alumisel graafikul on kujutatud 2. ja 4. kalibratsiooniallikale vastavate omaneeldumistegurite vahe, kus erinevuseks on keemiline koostis. Selgus, et mida madalam on proovi tihedus, seda suurem on nii proovi ja kalibratsiooniallika tihedusest kui ka keemilisest koostisest tingitud



Joonis 3.5: Keemilise koostisest ja tihedusest tingitud omaneeldumistegurite vahe erinevatel proovi tihedustel.

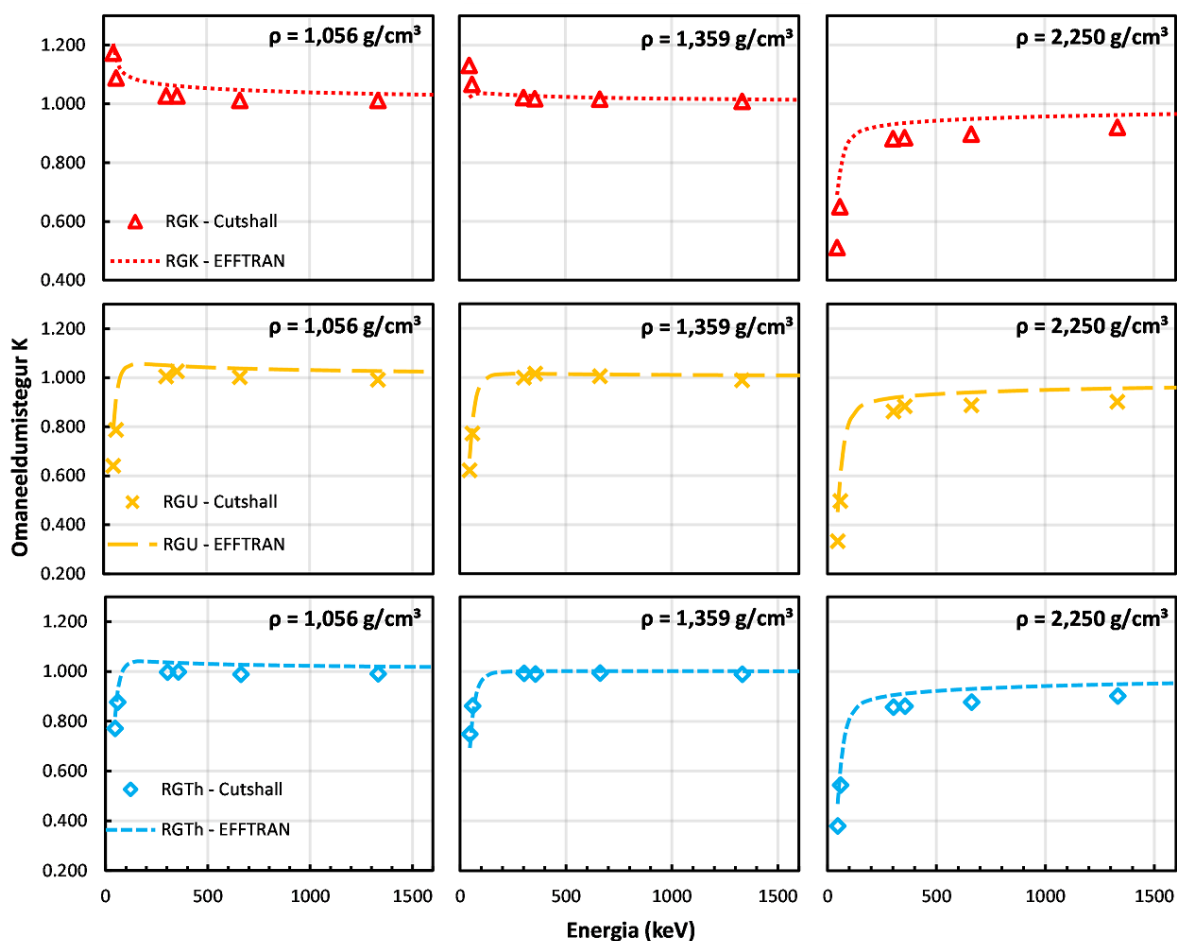
erinevuste mõju. Võib järeldada, et kui tegemist on väga madala tihedusega prooviga, siis on oluline, et proovi ja kalibratsiooniallika keemilised koostised kui ka tihedused ühtiksid. Tasub mainida, et EFFTRAN ennustab nähtust vaid madala energiaga  $\gamma$ -footonite korral.

Tiheduste erinevuse tundlikkus proovi tihedusest on suuruselt keemilise koostise tundlikkusest väiksem, aga madalatel energiatel siiski aktuaalne. Tulemustest võib järeldada, et mida madalam on proovi tihedus, seda olulisem on valmistada proovile sarnase keemilise koostisega ja tihedusega kalibratsiooniallikas. Tiheduse kasvades on näha, et kalibratsiooniallika keemilise koostise olulisus langeb. Samu tulemusi täheldati ka RGU-1 ja RGK-1 kalibratsiooniallikatega tehtud analoogsete omaneeldumistegurite vahede arvutuste juures.

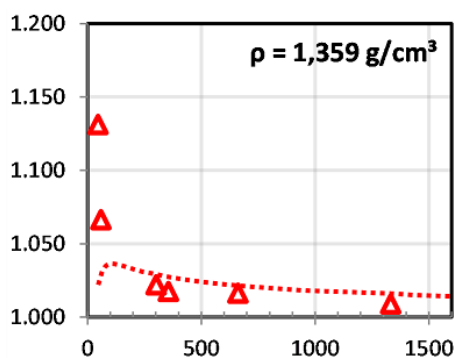
### **3.1.4 Omaneeldumisteguri sõltuvus $\gamma$ -kiirguse energiast**

Kui proovil ja kalibratsiooniallikal on sama geometria, siis võib peale keemilise koostise ja tiheduse omaneeldumisteguri väärtust mõjutada veel olulisel määral  $\gamma$ -footoni energia. Omaneeldumisteguri sõltuvust energiast uuriti nii eksperimentaalselt kui mudelarvutusmeetodiga. Mudelarvutus, võrreldes eksperimentaalse meetodiga, ei ole sõltuvuses punktallikate olemasolust, omaneeldumisteguri väärtusi on võimalik uurida pideva kõverana. Eksperimentaalse meetodi muutumispiirkond on piiratud punktallikate energia väärtustega. Tulemustest selgus (joonis 3.6), et madala energia piirkonnas domineeris omaneeldumisteguri (K) järsk muutus, ootuspäraselt kasvas parandusteguri väärtus koos energiaga. Üldiselt kehtis platoole alt poolt lähenev funktsionaalne sõltuvus.

Siiski esines ka erandeid. RGK kalibratsiooniallika ja madala tihedusega tsemendiproovide korral lähenes K piirväärtusele ülevalt poolt, mistõttu domineeris madala energia piirkonnas K väärtuse kahanemine. Niisuguse tulemuse põhjuseks võib olla asjaolu, et RGK kalibratsiooniallikas koosneb kergematest keemilistest elementidest. Peatükis 3.1.3 selgunud proovi keemilise koostise olulisus madala energia piirkonnas võis kalibratsiooniproovi väikeses omaneeldumisnähtuses rolli mängida.



Joonis 3.6: Tsemendist valmistatud proovide omaneeldumistegurite sõltuvus  $\gamma$ -kiirguse energiast.  $\rho$  viitab proovi tihedusele.



Joonis 3.7: eksperimentaal- ja mudelarvutusmeetodi lahknevus madalatel energiatel (väljavõige joonisest 3.6).

Üldjoontes andsid mudelarvutus- ja eksperimentaalmeetod funktsionaalselt samu tulemusi, kuid erandina esines ka üks märkimisväärne erinevus kahe meetodi vahel. Nagu on ka näha joonise 3.6 väljalõikest joonisel 3.7, siis RGK ja keskmise tihedusega proovi korral ennustas eksperimentaalmeetod energia kasvades omaneeldumisteguri kahanemist, kuid mudelarvutusmeetod ennustas madala-energia piirkonnas maksimumi. Erinevust võib selgitada asjaoluga, et eksperimentaalmeetod toetub lihtsale logaritmilisele valemile, mille sisendiks on loenduskiirused, kuid mudelarvutus jälgib juhuslikult genereeritud  $\gamma$ -kiirte käiku läbi konstrueeritud detektori ja proovi. Nende kaalutluste alusel

tasub pigem usaldada mudelarvutusmeetodit.

## 3.2 Radionukliidide aktiivsuskontsentratsioonid

Kontrollallika BFI-12 analüüsitulemused on esitatud tabelis 3.1. Mudelarvutusmeetodiga saadud  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsioonid kattusid mõõtemääramatuste piires sertifikaadi väärtustega. See-eest Cutshalli meetod ennustas märkimisväärselt erinevaid aktiivsuskontsentratsioone. Lahkheli on võimalik selgitada geomeetria erinevuste kaudu, kontrollallika proovitops ei olnud materjali vähesuse tõttu ääreni täis. Võib järeldada, et eksperimentaalset meetodit pole sobilik kasutada, kui proovi ja kalibratsiooniallika vahel on märkimisväärne geomeetiline erinevus.

Kontrollallika tulemused andsid kinnitust, et EFFTRAN suudab korrektselt arvutada aktiivsuskontsentratsioone, kui proovi ja kalibratsiooniallika tihedused ei ole võrdsed, geomeetria ei ole identne ja kasutatakse üldandmeid antud materjalitüübi keemilise koostise kohta. Tõepoolest, kuna EFFTRAN ei tee eeldusi proovi ja kalibratsiooniallika geomeetria, keemilise koostise ega tiheduse kohta, vaid simuleerib üksikute  $\gamma$ -kiirte käiku läbi kasutaja sisestatud andmete põhjal konstrueeritud proovi ja kalibratsiooniallika, tuleb mudelarvutusprogramm erinevuste korrigeerimisega hästi toime.

Tabel 3.1: Kontrollallika BFI-12 aktiivsuskontsentratsioonid ühikutega Bq/g katteteguriga  $k=2$ .

Nukliid	$C$ (Cutshall)	$C$ (EFFTRAN)	$C$ (Sertifikaat)
$^{40}\text{K}$	$0,1922 \pm 0,0160$	$0,1761 \pm 0,0159$	$0,1607 \pm 0,0112$
$^{226}\text{Ra}$	$0,1174 \pm 0,0036$	$0,1042 \pm 0,0060$	$0,1063 \pm 0,0034$
$^{232}\text{Th}$	$0,1461 \pm 0,0058$	$0,1408 \pm 0,0076$	$0,1300 \pm 0,0048$

Lisaks kontrollallikale BFI-12 analüüsiti ka kontrollallikat CBSS-2. Tasub märkida, et  $^{241}\text{Am}$  koguenergiajoon 59,64 keV on piisavalt madala energiaga, et kalibratsiooniallikal RGTh-1 puuduvad usaldusväärsed koguenergiajooned, mille järgi käesolevas piirkonnas detektori efektiivsust kalibreerida. Seetõttu kasutati kalibreerimiseks kalibratsiooniallikana RGU-1.

Tabel 3.2: CBSS-2 kontrollallika aktiivsuskontsentratsioonid katteteguriga  $k=2$ . Kõik väärtused on ühikutes Bq/g.

Nukliid	$C$ (Cutshall)	$C$ (EFFTRAN)	$C$ (Sertifikaat)
$^{241}\text{Am}$	$66,0 \pm 4,1$	$65,6 \pm 4,6$	$71,8 \pm 0,8$
$^{137}\text{Cs}$	$36,1 \pm 2,8$	$35,3 \pm 2,8$	$39,8 \pm 0,5$
$^{60}\text{Co}$	$37,8 \pm 2,7$	$36,5 \pm 2,7$	$45,0 \pm 0,5$

Tabelist 3.2 on näha, et kuigi eksperimentaalne ja mudelarvutusmeetod nõustuvad tulemustes mõõtemääramatuse piires, siis sertifikaadi väärtustega nad kooskõlas ei ole. Põhjuseks võib olla kontrollallika tiheduse märkimisväärne erinevus RGU-1 kalibratsiooniallikast ( $0,985 \text{ g/cm}^3$  vs  $1,496 \text{ g/cm}^3$ ) kui ka sobiliku kalibratsiooniallika puudumine, mistõttu ei olnud võimalik koostada detektorile just nende radionukliidide aktiivsuskontsentratsiooni mõõtmiseks sobilikku efektiivsuskõvera (CBSS-2 ennast kasutataksegi kalibratsiooniallikana).

Tulemustest võis järeldada, et täpse aktiivsuskontsentratsiooni määramisel on äärmiselt oluline kalibreerida detektor vastavalt koguenergiajoonte, tähendades, et iga kasutatud koguenergiajoone kohta peaks olema kalibratsiooniallikas vastav teatud aktiivsusega kiirgaja. Kalibratsioonikõvera intrapoleeritud väärtusele ei saa täpse määramise vajadusel toetuda.

Järgmisena testiti eksperimentaalset ja mudelarvutusmeetodit väga erinevate proovi tiheduste juures (joonis 3.8). Eksperimentaalse meetodi korral kasutati punktallikate energiatele kõige lähedasemaid koguenergiajooni:  $^{40}\text{K}$  sisaldus leiti 1460 keV koguenergiajoone järgi,  $^{232}\text{Th}$  määramisel kasutati  $^{228}\text{Ac}$  911 keV koguenergiajoont ning  $^{226}\text{Ra}$  määramiseks kasutati  $^{214}\text{Pb}$  352 keV energiaga koguenergiajoont (töös kasutatavad punktallikad on välja tootud tabelis 2.3). Mudelarvutusmeetodiga ei olnud koguenergiajoonte valik piiratud, mistõttu kasutati kõiki spektris eristatavaid ja usaldusväärseid koguenergiajooni (nukliidide määramiseks kasutatud koguenergiajoonte energiad on välja tootud peatükis 1.5).

Proovi tiheduse varieerudes muutub omaneeldumistegur, kuid proovi aktiivsuskontsentratsioon peab jääma muutumatuks. Kuna tegemist on tundmatu prooviga, siis tõesed aktiivsuskontsentratsiooni väärtused ei olnud teada, mistõttu tuli valida kõige usaldusväärsema tulemusega proov. Tõeseks ehk oodatavaks väärtuseks valiti kalibratsiooniallikaga kõige sarnasema tihedusega proov. RGTh korral valiti proov tihedusega  $1,359 \text{ g/cm}^3$  ja RGK korral  $1,659 \text{ g/cm}^3$ . RGU tihedusele vastanduvat proovi ei olnud. Kuna oli teada, et BFI-12 tihedusel sai EFFTRAN tulemuste korrigeerimisega hästi hakkama, siis otsustati kasutada tõelise väärtuse näitajana BFI-12-le kõige sarnasema tihedusega tsemendiproovi.



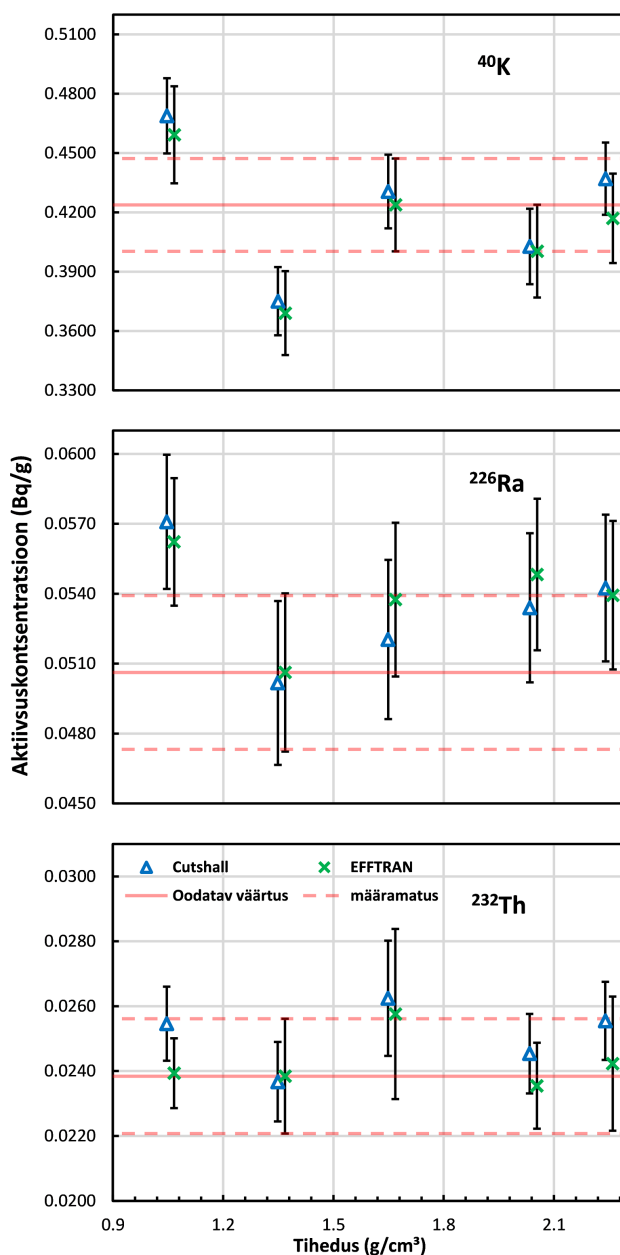
## Aktiivsuskontsentratsioonide

korrigeerimine erinevatel tihedustel oli üldjoontes edukas. Esmalt vaadeldi kahe lähenemise - eksperimentaalse meetodika ja mudelarvutuste - omavahelist kokkulangemist ilma tulemuste võrdlemiseta tõelise väärtusega.  $^{40}\text{K}$  ja  $^{226}\text{Ra}$  korral oli eksperimentaalse meetodika ja mudelarvutuste vaheline koosõla suurepärase, kõikidel tihedustel kattusid väärtused määramatuse piires. Erandiks on seejuures  $^{232}\text{Th}$ , kus meetodikatevaheline koosõla oli kehvem, viiest tihedusest täheldati tulemuste kattuvust vaid kolmel.

Järgnevalt kitsendati käsitlust tuues sisse tulemuste võrdluse tõelise väärtusega.  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{226}\text{Ra}$  mudelarvutusmeetodiga korrigeeritud aktiivsuskontsentratsioonid kattusid täielikult tõelise väärtusega määramatuse piires. Eksperimentaalne meetod niivõrd edukas ei olnud,  $^{232}\text{Th}$  korral kattusid eksperimentaalse meetodi väärtused tõelise väärtusega mõõtemääramatuse piires, kuid  $^{226}\text{Ra}$  korral ei kattunud kõige madalama tihedusega proovi eksperimentaalse meetodiga määratud väärtus

mõõtemääramatuse piires. Niisugune erinevus võib viidata varasemalt EFFTRANiga uuritud nähtusele, kus madalatel proovi tihedustel mõjutab kalibratsiooniallika ja proovi vaheline tiheduse erinevus rohkem. Sarnast tulemust täheldati ka  $^{40}\text{K}$  korral.

$^{40}\text{K}$  mõõtmiste analüüs andis kõige kehvema kokkulangevusega tulemusi, oodatava väärtusega langes kokku vaid neli proovi viiest. Võimalik põhjus, miks  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsiooni korrigeerimine ei olnud niivõrd edukas, võis seineda selles, et  $^{40}\text{K}$  korral on vaid üks



Joonis 3.8: Proovide korrigeeritud  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsioonid ühikutega Bq/g katteteguriga  $k=2$ .

koguenergiajoon, mille abil aktiivsuskontsentratsiooni arvutada. Väga oluline on ka fooni mõju.  $^{40}\text{K}$  esineb keskkonnas ja seega ka foonispektris rohkem kui  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{232}\text{Th}$ . Foon ei ole ajas aga konstantne.  $^{40}\text{K}$  mõju foonis võivad mõjutada näiteks gammaspektromeetri ruumis olevate proovide hulk või inimeste arv ruumis mõõtmise ajal.

Tulemustest joonistus välja, et üldiselt olid mudelarvutuslikult korrigeeritud tulemused usaldusväärsemad kui eksperimentaalsed tulemused. Ühelgi tiheduse juures ei suudetud proovis tehislisku radionukliidi  $^{137}\text{Cs}$  tuvastada.

### 3.3 Määramatused

Proovi aktiivsuskontsentratsiooni hindamisel mängib suurt rolli määramatus. Määramatuse allikaid on see-eest palju ja erinevate iseloomudega. Loetledes EFFTRANi abil arvutatud lõpptulemust mõjutavaid võimalikke määramatuseid:

1. Proovi mass (ristkülikjaotus)
2. Footoni emiteerimistõenäosus (ristkülikjaotus)
3. Radionukliidide poolestusaeg (ristkülikjaotus)
4. Omaneeldumistegur – 4.1 detektori geomeetria, 4.2 proovi geomeetria, 4.3 proovi keemiline koostis, 4.4 EFFTRANi arvutusmetoodikast tulenev määramatus ja 4.5 Monte-Carlo statistiline komponent (ristkülikjaotus)
5. Proovivõtust mõõtmiseni möödunud aeg (ristkülikjaotus)
6. Proovi, fooni ja kalibratsiooniallika loendusstatistika (Poissoni jaotus)
7. Kalibratsiooniallika teadaolev aktiivsus (normaaljaotus)

Nagu näha, on täieliku määramatusega arvestamine vaevarikas töö. Kõikide proovidega rehkendamise asemel tehti täies mahus liitmääramatuse hindamine läbi vaid kontrollallikaga BFI-12. Liitmääramatuse hindamisel lähtuti Rahvusvahelise Standardiorganisatsiooni mõõtemääramatuse väljendamise juhendist [15] ning hinnati iga määramatuse komponendi mõju lõpptulemuse määramatusele. Selline lähenemine võimaldab määramatuse arvutamisel ajakulu vähendada, kuna selguvad peamised määramatuse allikad.

Ülalloetletud komponentide mõõtemääramatuse hindamiseks tuli kasutada erinevaid allikaid. Loendus-statistilist määramatust (6) hinnatakse spektri analüüsimisel koguenergiajoone eraldamisel ümbritsevast Comptoni foonist. Füüsikaliste konstantide määramatused (2, 3) on leitud kirjandusest [9] või sertifikaatidest (4.1, 7) [13]. Proovide füüsikalise karakteristika määramatust kirjeldab (1) kaalu ja (4.2) mõõtenihiku määramatus. Proovi keemilise koostise

(4.3) määramatuse hindamine osutub väga keeruliseks, kuna peamised keemilise koostise informatsiooni allikad on kas tootjatelt saadud retseptid (ainehulgad on tavaliselt antud protsentuaalse vahemikuna) või varasemalt kirjanduses uuritud analoogsete materjalide keemilised koostised (uuritud materjal ei ole siiski huvialune proov, mistõttu konkreetse proovi määramatusest ei saa rääkida). Siiski ei osutu koostise määramatuse teadmatus probleemiks, kuna varasemalt sai näidatud (vt peatükk 3.1.2), et väljaspool madala energia piirkonda pole omaneeldumisteguri väärtus eriti tundlik keemilise koostise suhtes.

Omaneeldumisteguri määramatuse hindamine osutub samuti keeruliseks. EFFTRAN suudab hinnata Monte-Carlo meetodist tulenevat statistilise komponendi lisandumist, kuid ei võimalda hinnata meetodi üldist määramatust, kui on teada kõikide sisendite määramatused. Üldjoontes on programmiga töötades kasutatud programmi sisestatud riskülikjaotuse vaikeväärtust 3%, mis katab sisendite määramatusest tulenevaid erinevusi. Käesolevas töös kontrolliti alternatiivset lähenemist, mida kasutab GammaVision parandustegurite määramatuse hindamiseks [16]. Valem määramatuse arvutamiseks on järgmine:

$$\Delta K_i = \sqrt{\frac{|K_i - 1|}{100}} K_i, \quad (3.2)$$

kus  $K_i$  on  $i$ -ndale koguenergiajoonele vastav omaneeldumistegur.

Alternatiivne lähenemine võimaldab hinnata määramatust dünaamilisemalt, madalatel energiatel või kalibratsiooniallikast väga erineva tihedusega proovi korral annab meetod märkimisväärselt kõrgemaid määramatuse hinnanguid ning kõrgetel energiatel ja prooviga sarnase kalibratsiooniallika korral annab madalamaid määramatuse hinnanguid.

Tabel 3.3:  $^{226}\text{Ra}$  aktiivsuskontsentratsiooni määramatuse analüüs BFI-12 näitel. Tabelis esimese nelja veeru väärtused vastavad valemiga (3.2) arvatud tulemustele. Võrdluseks on välja toodud ka seni kasutatud 3% vastav määramatus ja lisaks ka hüpoteetiline olukord GEO (arvatud 3.2 valemiga), kui kontrollallika proovitops oleks täielikult materjaliga täidetud ja omaneeldumistegur poleks geomeetria korrigeerimise tõttu niivõrd 1-st erinev.

Füüsikaline suurus	Väärtus	Standard-määramatus	Lõpptulemuse osakaal (3.2)	Lõpptulemuse osakaal (3%)	Lõpptulemuse osakaal (GEO)
$N_{KAL}$ (6)	$2,66528 \cdot 10^6$	1750	0,0%	0,0%	0,0%
$N_{FOON}$ (6)	393,0	19,8	0,0%	0,0%	0,0%
$R_{KAL}$ (7)	413,70 Bq	1,05 Bq	0,3%	1,4%	2,0%
$\gamma$ (2)	35,6%	0,0462%	0,0%	0,0%	0,0%
$N_{PROOV}$ (6)	12549	136	5,9%	26,8%	38,0%
$m$ (1)	49,867 g	0,000577 g	0,0%	0,0%	0,0%
$K_2$ (4)	1,1914	0,0521	93,8%	71,6%	59,9%
$\Delta_t$ (5)	276,00 p	1 p	0,0%	0,0%	0,0%
$T$ (3)	1600 a	4,04 a	0,0%	0,0%	0,0%

Tulemused tabelis 3.3 illustreerisid kahte põhilist aktiivsuskontsentratsiooni määramatuse allikat: proovi loendusstatistika ja omaneeldumisteguri määramatuse komponent, kusjuures proovi osakaal oli 5,9% ja omaneeldumisteguri osakaal 93,8%. Väiksema kaaluga määramatusega allikas oli kalibratsiooniallika aktiivsus osakaaluga 0,3%. Kolme määramatuse komponendi summa andis praktilises lähenduses 100% määramatusest, näidates, et ülejäänud määramatused moodustavad tühise osa lõpptulemusest. Mainimist tasub asjaolu, et kontrollallika korral moodustas proovi loendusstatistiline määramatus kogu määramatusest vaid 5,9%, mis pole sugugi tavaline olukord. Põhjuseks on nii BFI-12 kontrollallika kõrge  $^{226}\text{Ra}$  aktiivsuskontsentratsioon võrreldes tavalise keskkonnaprooviga, võimaldades madalat loendusstatistilist määramatust, kui ka omaneeldumisteguri erakordselt kõrge määramatus, kuna kalibratsiooniallika ja kontrollallika geomeetriad erinesid. Kui võrrelda omavahel geomeetria erinevusega (3.2) ja erinevusega lõpptulemuse (GEO), siis on selgelt näha, niivõrd suur mõju on geomeetria erinevusest tingitud omaneeldumisteguril lõpptulemustele. Kui kalibratsiooni- ja kontrollallikal poleks geomeetria erinevusi, siis oleks samale loendusstatistikale vastanud 38% osakaal ja omaneeldumistegurile 60% osakaal lõppmääramatusest. Valem (3.2) hindab standardseid olukordi väiksema määramatusega, kusjuures andes madalamaid määramatusi kui eelmainitud vaikeväärtus 3% ning ebatavalistes olukordades, nagu näiteks geomeetria erinevuste esinemisel, kõrgema määramatusega, mis sobib rutiinsete analüüside läbiviimiseks ideaalselt. Oluline on siiski see, et määramatuse põhikomponendid on eelmainitud kolm, vaatamata nende omavahelisele suhetele.

Omaneeldumisteguri määramatuse olulisus oli ootuspärane, kuna aktiivsuskontsentratsioonide

arvutamisel parandusteguri väikese varieerumise korral muutub lõpptulemus märkimisväärselt. Aktiivsuskontsentratsiooni analüüsimisel selgus, et valem (3.2) on hetkeseisuga parim lahendus, kui töötada nii EFFTRANi ideaaltingimustel kui ka suurte erinevuste esinemistel. Töös esinevad aktiivsuskontsentratsiooni määramused arvutati 3.2 valemiga.

### 3.4 ACIX – programm korrigeeritud aktiivsuskontsentratsiooni arvutamiseks

Omaneeldumisteguritega korrigeeritud aktiivsuskontsentratsioonide arvutamiseks loodi labori keskkonnas kasutamiseks VBA vahendusel Pythoni keskkonnas programm ACIX. Programmi peamine eesmärk oli vähendada aega, mis kulub GammaVisioni väljundfaili lugemisele ja arvutuskäigu vahetulemuste vormistamisele. Programmi abil on võimalik automatiseerida omaneeldumisteguritega korrigeeritud mitme koguenergiajoone keskmise väärtuse arvutused koos määramatusega. Programmi graafiline kasutajaliides on sarnaselt EFFTRANiga vormistatud Exceli keskkonda (joonis 3.9), mistõttu programmide-vaheline arväärtuste ülekandmine on tehtud äärmiselt lihtsaks.

#### Activity concentration calculator

The screenshot displays the ACIX program interface, which is designed to look like an Excel spreadsheet. It is divided into three main sections: data input, calculation, and output.

**Activity concentration calculator (Input Table):**

Nuclide	Energy (keV)	Self-absorption factor
Pb-214	351	1.0149
Pb-214	242	1.0149
Pb-214	295	1.0154
Pb-214	53	0.74733
Pb-214	785.5	1.0114
Bi-214	609.3	1.0126
Bi-214	1764.8	1.0076
Bi-214	1120.3	1.0097
Bi-214	1238.11	1.0093
Bi-214	1377.67	1.0087
Bi-214	2204.21	1.0066
Bi-214	2447.86	1.006
Ra-226	186.2	1.0128

**Averaged Calculation (Output Table):**

Nuclide	Activity concentration (Bq/g)	Activity concentration uncertainty k=2
Pb-214	4.994E-02	1.353E-03
Bi-214	5.062E-02	3.392E-03
Ra-226	5.809E-02	6.038E-03

**Individual Peak Calculation (Output Table):**

Nuclide	Activity concentration (Bq/g)	Activity concentration uncertainty k=2
Pb-214	5.019E-02	1.876E-03
Pb-214	5.029E-02	3.524E-03
Pb-214	4.939E-02	2.348E-03
Pb-214	5.129E-02	2.005E-02
Pb-214	6.027E-02	2.467E-02
Bi-214	4.069E-02	1.534E-03
Bi-214	5.053E-02	4.269E-03
Bi-214	4.233E-02	4.006E-03
Bi-214	4.481E-02	1.039E-02
Bi-214	5.524E-02	1.194E-02
Bi-214	5.174E-02	9.199E-03
Bi-214	5.398E-02	1.592E-02
Ra-226	5.809E-02	6.038E-03

Additional interface elements include an 'IMPORT DATA' button, a 'CALCULATE' button, and configuration options for 'Save Configuration' and 'Load Configuration'. Summary statistics at the bottom show: Total added uncertainty: 0.51%, Reference activity uncertainty: 0.51%, Extra uncertainty: 0%.

Joonis 3.9: ACIX programmi kasutajaliides.

ACIX ootab kasutajalt 5 sisendit:

1. otsitavate radionukliidide nimed, kusjuures nukliidid peavad olema olema spektri analüüsimisel GammaVisioni kasutatud nukliidide raamatukogus,

2. nukliidide koguenergiajoonte energiad,
3. omaneeldumistegurid,
4. kalibratsiooniallika määramatus,
5. GammaVisioni väljundfail.

Nukliidide nime, tegurite ja kalibratsiooniallika liitmääramatust ning nukliidide koguenergiajoonte energiade nimekirja on võimalik salvestada konfiguratsioonifailina ja on tarvis sisestada vaid üks kord. Omaneeldumistegureid on võimalik kopeerida otse EFFTRANi programmist.

GammaVisioni väljundfailist loeb ACIX välja sisestatud koguenergiajoonte aktiivsuse, proovi kogumise ja mõõtmise kuupäevad ning loendus-statistilise määramatuse. Aktiivsuskontsentratsioon arvutatakse iga individuaalse koguenergiajoone kohta (valem 3.3) kui ka ühise nukliidi nimetuse all olevate koguenergiajoonte keskmise kohta (valem 3.4). Keskmise arvutamisel kasutatakse vaid neid koguenergiajooni, mis GammaVision on ise määranud kõlblikuks keskmise arvutamisel ning suudab edukalt eristada ümbritsevatest koguenergiajoontest ja foonist. Keskmise arvutamisel kasutatakse kaale, mida arvutatakse kui  $w = \frac{1}{\Delta x^2}$ , kus  $w$  on kaal ja  $\Delta x$  aktiivsuskontsentratsiooni määramatus. Proovide radioaktiivset lagunemist korrigeeritakse proovivõtust mõõtmiseni, ehk tulemused väljendavad radionukliidide aktiivsuskonstentratsioone proovis selle võtmise ajal.

Omaneeldumistegurite määramatuste arvutamiseks kasutab programm eelnevas peatükis mainitud valemit (3.2). Aktiivsuskontsentratsiooni ja selle määramatust hindab programm järgmiste valemitega:

$$C_{x_i} = \frac{A_{x_i} \cdot 2^{\frac{t}{\tau_x}}}{m_{proov} \cdot K_i} \quad \Delta C_{x_i} = \sqrt{\left(\frac{\Delta A_i}{A_i}\right)^2 + \left(\frac{\Delta K_i}{K_i}\right)^2} C_{x_i}, \quad (3.3)$$

kus  $C_{x_i}$  on  $x$  nukliidi  $i$ -ndale koguenergiajoonele vastav aktiivsuskontsentratsioon,  $m_{proov}$  on proovi mass,  $A_{x_i}$  on  $x$  nukliidi  $i$ -ndale koguenergiajoonele vastav aktiivsus,  $t$  on proovivõtust mõõtmiseni möödunud aeg ja  $\tau_x$  on  $x$  nukliidi poolestusaeg.  $\Delta A_i$  ja  $\Delta C_{x_i}$  on vastavate füüsikaliste suuruste määramatused.  $\Delta K_i$  on vastavale koguenergiajoonele omaneeldumisteguri (arvutatud valem 3.2), kalibratsiooniallika aktiivsuse ja kasutaja poolt sisestatud lisanduvate määramatuse

liitmääramatus.  $N$  on  $x$  nukliidi koguenergiajoonte koguarv.

$$C_{kesk,x} = \frac{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\Delta C_{x_i}^2} C_{x_i}}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\Delta C_{x_i}^2}} \quad \Delta C_{kesk,x} = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\Delta C_{x_i}^2}}}. \quad (3.4)$$

### 3.5 Proovide ja kontrollallika I-indeksid

Kunda Nordic Tsement CEM I tüüpi tsemendiproovide I-indeksid on ohutult allpool seadusandlusega kehtestatud taset (tabel 3.4), seda kõikidel tihedustel ja kõikide parandustegurite juures. See-eest kontrollallikas BFI-12 on üle määratud piiri ning illustreerib, miks korrektse omaneeldumisteguri määramine on niivõrd oluline. Korrigeerimata tulemus on kahtlemata üle 1, kuid peale omaneeldumisteguriga korrigeerimist on tulemus 1 lähedane ja selgelt enam ei joonistu välja, kas materjali peaks käsitlema sobiva ehitusmaterjalina või mitte.

Proovi nimi	Tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	I-indeks	I-indeks (CUTSHALL)	I-indeks (EFFTRAN)
Tsement 6	1,056	0,479	0,474	0,462
Tsement 3	1,359	0,422	0,420	0,418
Tsement 4	1,659	0,419	0,430	0,425
Tsement 2	2,044	0,418	0,444	0,437
Tsement 5	2,250	0,407	0,454	0,433
BFI-12	1,342	1,252	1,186	1,060

Tabel 3.4: Proovide ja kontrollallika I-indeksid. „I-indeks“ vastab korrigeerimata aktiivsuskontsentratsioonidega arvutatud I-indeksile. Tabeli neljas ja viies veerg vastavate meetoditega korrigeeritud I-indeksitele.

Selleks, et I-indeksit saaks õigesti tõlgendada, peaks ehitusmaterjali gammaspektromeetriliseks analüüsimiseks tehtud proov olema sama tihedusega, nagu materjali ehituses tegelikult kasutatakse. Kui proov on ülemäära kokku pressitud, on võimalik, et alahinnatakse materjali kiirgusohklikkust.

# Kokkuvõte

Käesoleva töö raames kontrolliti ja arendati edasi ehitusmaterjalidest põhjustatud kiirgusdoosi hindamiseks vajalike radionukliidide aktiivsuskontsentratsioonide mõõtmise ja arvutamise meetodikat. Mudelarvutusmeetod osutus paremaks kui eksperimentaalne meetod. Selgus, et madala energiaga  $\gamma$ -kiirguse puhul on omaneeldumisteguri sõltuvus proovide keemilisest koostisest väga suur, kuid energia kasvades see sõltuvus kahaneb ning  $> 300\text{keV}$  piirkonnas on keemilise koostise mõju kergetest elementidest koosnevatele proovidele tühine. Täheledatakse, et madalama tihedusega proovides on keemilise koostise mõju suurem. Tulevikus saab kõikide kergetest elementidest koosnevate ehitusmaterjalide arvutamisel kasutada üldistatud kirjandusest leitud keemilisi koostisi, kuna  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ja  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsiooni on võimalik arvutada piisavalt kõrge energiaga koguenergiajoonte abil.

Omaneeldumistegurite sõltuvused tihedusest ja energiast olid ootuspärased, kusjuures võrreldavaid tulemusi andsid nii eksperimentaalne kui mudelarvutusmeetod. Siiski esines erandeid, mis võisid olla tingitud proovi ja kalibratsiooniallika keemilise koostise erinevustest.

Erineva tihedusega Kunda tsemendi proovide puhul kattusid EFFTRANi arvutatud aktiivsuskontsentratsioonid  $^{226}\text{Ra}$  ja  $^{232}\text{Th}$  korral oodatud väärtusega määramatuse piires, kuid eksperimentaalse meetodi puhul see kõikidel tihedustel nii ei olnud. Üleüldiselt olid  $^{40}\text{K}$  aktiivsuskontsentratsiooni tulemused kehvemad, kuna nende arvutamisel ei olnud võimalik keskmistada üle mitme koguenergiajoone ning looduslik  $^{40}\text{K}$  foon on võrreldes teiste nukliididega märkimisväärselt suurem ja muutlikuma iseloomuga.

Aktiivsuskontsentratsioonide arvutamiseks sai loodud programm, mis toetus töö tulemustele ja muudab rutiinsed analüüsid lihtsamaks ja kiiremaks. Tsemendiproovide I-indeks oli kõikidel tihedustel arvutatud aktiivsuskontsentratsioonide kohaselt alla ühe, mistõttu uuritud tsemendi kasutamine ehitusmaterjalina ei kujuta kiirguskaitse seisukohast ohtu. See-eest kontrollallikana kasutatud kõrgahju räbu I-indeks ilma omaneeldumiskorrektsoonideta oli 1,342, kuid korrigeerides tulemust omaneeldumisteguritega, saadi 1,060, mis illustreerib asjaolu, et korrigeerimata või valesti korrigeeritud tulemused võivad viia valede järeldusteni ja sellest tulenevalt tekitada inimestele potentsiaalset kiirgusohtu.



# Kasutatud kirjandus

- [1] Council of European Union, “Council directive 2013/59/euratom,” kasutatud 28.03.20, <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/ET/TXT/PDF/?uri=CELEX:02013L0059-20140117&from=EN>.
- [2] Majandus- ja kommunikatsiooniminister, “Ehitusmaterjalidele ja -toodetele esitatavad nõuded ja nende nõuetele vastavuse tõendamise kord,” kasutatud 28.03.20, <https://www.riigiteataja.ee/akt/119022019005>.
- [3] K. Isakar, K. Realo, M. Kiisk ja E. Realo, “Efficiency corrections in low-energy gamma spectrometry,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **580**, 90–93 (2007).
- [4] J. C. Bryan, *Introduction to nuclear sciences* (CRC Press, 2018).
- [5] Shutdown Margin – SDM, “Interaction of gamma radiation with matter,” kasutatud 10.04.20, <https://www.nuclear-power.net/nuclear-power/reactor-physics/interaction-radiation-matter/interaction-gamma-radiation-matter>.
- [6] G. Gilmore, *Practical gamma-ray spectroscopy* (Wiley, 2008).
- [7] Keskkonnaminister, “Kiirgustöötaja ja elaniku efektiivdooside seire ja hindamise kord, radionukliidide sissevõtmist põhjustatud dooside doosikoefitsientide ning kiirgus- ja koefaktori väärtused ning nende mõõtmise kord,” kasutatud 28.03.20, <https://www.riigiteataja.ee/akt/122112016022>.
- [8] Department of Health and Human Services: Agency for Toxic Substances and Disease Registry, “Public health statement for thorium cas: 7440-29-1,” kasutatud 01.04.20, <https://www.atsdr.cdc.gov/phs/phs.asp?id=658&tid=121>.
- [9] Laboratoire National Henri Becquerel, “Nucléide - lara: Library for gamma and alpha emissions,” kasutatud 15.05.20, <http://www.nucleide.org/Laraweb/index.php>.

- [10] I. A. E. Agency, *Generic Procedures for Assessment and Response during a Radiological Emergency*, IAEA-TECDOC-1162 (IAEA, 2000).
- [11] N. H. Cutshall, I. L. Larsen ja C. R. Olsen, “Direct analysis of 210pb in sediment samples: Self-absorption corrections,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **206**, 309–312 (1983).
- [12] T. Vidmar, “Efffran - a monte carlo efficiency transfer code for gamma-ray spectrometry,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **550**, 603–608 (2005).
- [13] International Atomic Energy Agency, *Preparation of Gamma-ray Spectrometry Reference Materials RGU-1, RGTh-1 and RGK-1*, Report - IAEA/RL/148 (IAEA, 1987).
- [14] National Institute of Standards and Technology, “X-ray mass attenuation coefficients,” kasutatud 21.04.20, <https://physics.nist.gov/PhysRefData/XrayMassCoef/tab3.html>.
- [15] International Organization for Standardization, “Guide to the expression of uncertainty in measurement,” kasutatud 18.04.20, <https://www.iso.org/standard/50461.html>.
- [16] Advanced Measurement Technology, Inc, “GammaVision Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator for Microsoft Windows 7, 8.1, and 10 Professional. A66-BW Software User’s Manual. Software Version 8.1.” kasutatud 07.04.20, <https://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/manuals/a66-mnl.pdf>.

# Lisa A

## Omaneeldumistegurite väärtused

Tabel A.1: RGU kalibratsiooniallika baasil tsemendiproovide omaneeldumistegurid

RGU EFFTRAN						RGU Cutshall					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	0,640	0,622	0,498	0,382	0,334	<b>46,5</b>	0,790	0,670	0,579	0,491	0,452
<b>59,5</b>	0,786	0,772	0,677	0,563	0,498	<b>59,5</b>	0,913	0,814	0,731	0,644	0,604
<b>302,9</b>	1,004	0,999	0,964	0,911	0,862	<b>302,9</b>	1,051	1,016	0,981	0,940	0,919
<b>356,0</b>	1,025	1,015	0,983	0,933	0,883	<b>356,0</b>	1,048	1,014	0,982	0,943	0,923
<b>661,7</b>	1,001	1,005	0,973	0,930	0,887	<b>661,7</b>	1,038	1,012	0,987	0,956	0,940
<b>1332,5</b>	0,990	0,988	0,961	0,941	0,901	<b>1332,5</b>	1,027	1,009	0,991	0,968	0,956

Tabel A.2: RGTh kalibratsiooniallika baasil tsemendiproovide omaneeldumistegurid

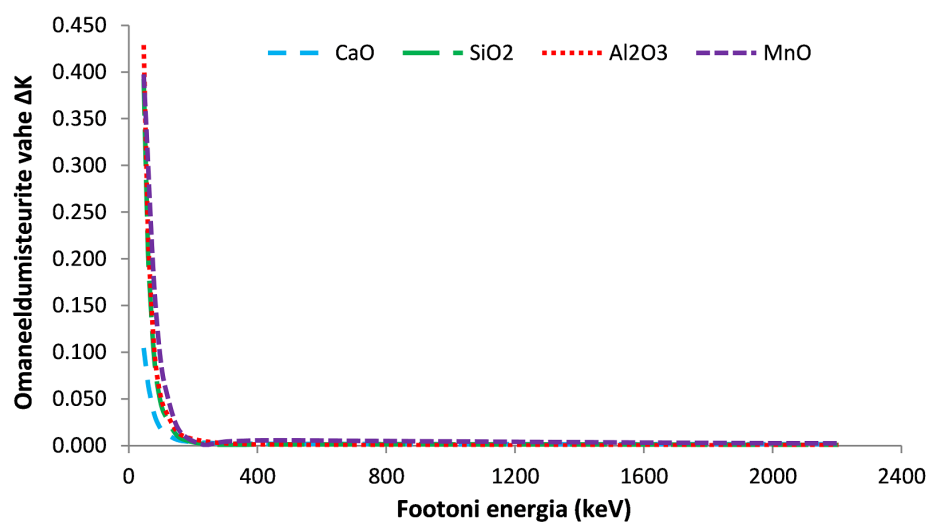
RGTh EFFTRAN						RGTh Cutshall					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	0,817	0,693	0,599	0,508	0,468	<b>46,5</b>	0,771	0,748	0,587	0,441	0,380
<b>59,5</b>	0,922	0,821	0,738	0,650	0,610	<b>59,5</b>	0,877	0,861	0,750	0,619	0,544
<b>302,9</b>	1,036	1,001	0,967	0,926	0,905	<b>302,9</b>	0,997	0,992	0,958	0,905	0,857
<b>356,0</b>	1,034	1,001	0,969	0,931	0,911	<b>356,0</b>	0,998	0,989	0,958	0,909	0,861
<b>661,7</b>	1,027	1,002	0,976	0,946	0,930	<b>661,7</b>	0,989	0,993	0,961	0,919	0,877
<b>1332,5</b>	1,019	1,001	0,983	0,961	0,949	<b>1332,5</b>	0,991	0,988	0,961	0,941	0,902

Tabel A.3: RGK kalibratsiooniallika baasil tsemendiproovide omaneeldumistegurid

RGK EFFTRAN						RGK Cutshall					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	1,205	1,022	0,883	0,749	0,690	<b>46,5</b>	1,172	1,131	0,854	0,609	0,511
<b>59,5</b>	1,155	1,029	0,924	0,815	0,764	<b>59,5</b>	1,088	1,066	0,920	0,746	0,650
<b>302,9</b>	1,065	1,029	0,994	0,952	0,931	<b>302,9</b>	1,027	1,022	0,987	0,931	0,881
<b>356,0</b>	1,061	1,027	0,995	0,955	0,935	<b>356,0</b>	1,027	1,017	0,985	0,935	0,885
<b>661,7</b>	1,047	1,022	0,996	0,965	0,949	<b>661,7</b>	1,012	1,016	0,983	0,940	0,896
<b>1332,5</b>	1,034	1,016	0,997	0,974	0,962	<b>1332,5</b>	1,011	1,009	0,981	0,960	0,920

# Lisa B

## BFI-12 $\Delta K$ sõltuvus energiast



Joonis B.1: Omaneeldumistegurite vahe originaalse BFI-12 proovi ja puhtast ühendist koosneva proovi vahel.

# Lisa C

## Omaneeldumistegurite määramatus

Ekspriimentaae meetaaia omaeelaumisteguri määramatus arvutaa tuletiseaa vaalemist (2.1):

$$\Delta K = \frac{x \cdot \ln(x) - x + 1}{x \cdot \ln^2(x)} \cdot \Delta x, \quad x = \frac{R}{R_0}, \quad \Delta x = \sqrt{\left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2 + \left(\frac{\Delta R_0}{R_0}\right)^2}.$$

Tähised on ära selgitatud vaalemi (2.1) juures.  $\Delta R$  ja  $\Delta R_0$  on vastavate füüsikaliste suuruste loendus-statistilised määramatused.

Mudelarvutusmeetaaia omaeelaumisteguri määramatus arvutaa vaalemiga (3.2).

Ekspriimentaae ja mudelarvutusmeetaaia omaeelaumistegurite määramatused on esitatud järgnevates tabelites.

Tabel C.1: RGU kalibratsiooniallika baasil ekspriimentaae meetaaia ja EFFTRANi omaeelaumistegurite määramatused katteteguriga  $k=2$ .

RGU Cutshall						RGU EFFTRAN					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	2,00%	1,04%	1,18%	1,18%	1,48%	<b>46,5</b>	8,56%	11,08%	12,67%	14,03%	14,59%
<b>59,5</b>	1,12%	1,18%	1,18%	1,14%	1,38%	<b>59,5</b>	5,59%	8,46%	10,24%	11,83%	12,49%
<b>302,9</b>	0,84%	0,86%	0,86%	0,88%	0,90%	<b>302,9</b>	3,79%	0,66%	3,63%	5,42%	6,16%
<b>356,0</b>	0,48%	0,48%	0,48%	0,48%	0,48%	<b>356,0</b>	3,69%	0,57%	3,51%	5,27%	5,97%
<b>661,7</b>	0,88%	0,88%	0,89%	0,89%	0,90%	<b>661,7</b>	3,29%	0,77%	3,07%	4,64%	5,29%
<b>1332,5</b>	0,83%	0,83%	0,84%	0,89%	0,85%	<b>1332,5</b>	2,76%	0,69%	2,61%	3,97%	4,52%

Tabel C.2: RGTh ja RGTh kalibratsiooniallika baasil EFFTRANi omaneeldumistegurite määramatused katteteguriga k=2.

RGTh Cutshall						RGTh EFFTRAN					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	2,39%	1,58%	1,56%	1,51%	1,76%	<b>46,5</b>	8,56%	11,08%	12,67%	14,03%	14,59%
<b>59,5</b>	1,34%	1,39%	1,39%	1,31%	1,54%	<b>59,5</b>	5,59%	8,46%	10,24%	11,83%	12,49%
<b>302,9</b>	0,84%	0,85%	0,86%	0,88%	0,90%	<b>302,9</b>	3,79%	0,66%	3,63%	5,42%	6,16%
<b>356,0</b>	0,45%	0,45%	0,45%	0,45%	0,46%	<b>356,0</b>	3,69%	0,57%	3,51%	5,27%	5,97%
<b>661,7</b>	0,87%	0,87%	0,88%	0,89%	0,89%	<b>661,7</b>	3,29%	0,77%	3,07%	4,64%	5,29%
<b>1332,5</b>	0,83%	0,83%	0,84%	0,84%	0,85%	<b>1332,5</b>	2,76%	0,69%	2,61%	3,97%	4,52%

Tabel C.3: RGK kalibratsiooniallika baasil tsemendiproovide omaneeldumistegurite määramatused katteteguriga k=2.

RGK Cutshall						RGK EFFTRAN					
Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>	Proovi tihedus (g/cm <sup>3</sup> )	<b>1,056</b>	<b>1,359</b>	<b>1,659</b>	<b>2,044</b>	<b>2,250</b>
$\gamma$ -footoni energia (keV)						$\gamma$ -footoni energia (keV)					
<b>46,5</b>	3,40%	2,68%	2,55%	2,36%	2,53%	<b>46,5</b>	9,06%	2,97%	6,83%	10,02%	11,14%
<b>59,5</b>	1,47%	1,53%	1,52%	1,45%	1,69%	<b>59,5</b>	7,87%	3,40%	5,50%	8,61%	9,72%
<b>302,9</b>	0,87%	0,87%	0,88%	0,90%	0,92%	<b>302,9</b>	5,10%	3,40%	1,56%	4,37%	5,25%
<b>356,0</b>	0,47%	0,46%	0,46%	0,47%	0,47%	<b>356,0</b>	4,95%	3,30%	1,44%	4,24%	5,10%
<b>661,7</b>	0,89%	0,89%	0,90%	0,90%	0,91%	<b>661,7</b>	4,34%	2,93%	1,28%	3,74%	4,52%
<b>1332,5</b>	0,83%	0,83%	0,84%	0,84%	0,85%	<b>1332,5</b>	3,69%	2,50%	1,08%	3,20%	3,90%

# Tänuavaldused

Avaldan tänusoove oma toetavatele ja abivalmittele juhendajatele Siiri Suursoole ja Taavi Vaasmale, kes mind pika töö jooksul nõnda aitasid ja nõustasid. Tänu oma võrratutele juhendajatele sain täiel rinnal nautida teadustöö valmimise protsessi. Lisaks soovin tänada Heli Kirikut, kes mind lõputöö kirjutamise ajal nõustas ning viimistlemisega aitas. Viimasena tänan oma elukaaslast, kes nii vaimselt kui ka keeleparandusega toetas.



# **Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks**

Mina, Hando Tohver,

1. annan Tartu Ülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose

**Omaneeldumiseefekt gammaspекtrometrias ehitusmaterjalide kiirgusohutuse hindamisel,**

mille juhendajad on Siiri Suursoo, PhD ja Taavi Vaasma, PhD,

- (a) reprodutseerimiseks säilitamise ja üldsusele kättesaadavaks tegemise eesmärgil, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace-is lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;
  - (b) üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tartu Ülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas digitaalarhiivi DSpace'i kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.
2. olen teadlik, et punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.
  3. kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest tulenevaid õigusi.

Tartu, 29. mai 2020. a.