

На правах рукописи

Дмитриев Андрей Юрьевич

**РАЗРАБОТКА АВТОМАТИЗИРОВАННОГО КОМПЛЕКСА
ДЛЯ МАССОВОГО МНОГОЭЛЕМЕНТНОГО
НЕЙТРОННОГО АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА
НА РЕАКТОРЕ ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ**

01.04.01 – Приборы и методы экспериментальной физики

Диссертация
на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель –
кандидат физ.-мат. наук, доцент
Фронтасьева Марина Владимировна

Дубна – 2015

Оглавление

Введение.....	3
1. Актуальность темы	3
2. Цели и задачи диссертационной работы.....	6
3. Методы исследования.....	7
4. Научная новизна.....	8
5. Достоверность результатов диссертационной работы	10
6. Основные положения, выносимые на защиту:.....	10
7. Практическая значимость.....	12
8. Внедрение результатов работы.....	12
9. Аprobация работы.....	12
10. Публикации.....	14
Обзор работ по автоматизации НАА.....	15
1. Тенденции в области автоматизации НАА.....	15
2. Примеры комплексной автоматизации НАА	16
3. Программное обеспечение для автоматизации НАА	22
4. Заключение	30
Основная часть	31
1. Методические проблемы автоматизации массового многоэлементного НАА. Комплекс методов для автоматизации массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ.....	31
1.1. Варианты НАА, используемые при рутинных массовых измерениях.....	31
1.1.1. Абсолютный метод.....	31
1.1.2. Относительный метод	31
1.1.2.1. Метод одного компаратора.....	31
1.1.2.2. k_0 -метод.....	32
1.1.2.3. Классический относительный метод	33
1.1.2.4. Метод группового стандарта.....	34
1.2. Определение концентраций элементов на основе спектрометрической информации	37
1.3. Комплекс методов для автоматизации массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ.....	39
2. Автоматизированный комплекс.....	47
2.1. Автоматическая система измерения спектров наведённой активности с использованием устройств смены образцов.....	47
2.2. Автоматизация на основе программного обеспечения	61
2.2.1. Параметры программ автоматизации	61
2.2.2. Автоматизация количественного определения содержания элементов в образцах. Программа «Концентрация».....	63
2.2.3. Менеджмент проведения массового многоэлементного НАА. База данных НАА 69	
2.2.3.1. Интерфейс базы данных НАА.....	71
2.2.4. Программа для клиентов «Информация о клиенте».....	81
2.2.5. Программа для клиентов «Информация об образцах»	83
2.2.6. Программа подбора стандартов «Поиск стандартов».....	84
2.3. Методы автоматизации для решения вспомогательных задач	85
2.3.1. Автоматизация взвешивания образцов с использованием аппаратурно-программного средства «Вес».....	85
2.3.2. Вспомогательная программа «Журнал измерений»	86
2.3.3. Вспомогательная программа «Среда НАА»	87
Заключение	88
Приложения	90

1.	Участие в межлабораторном тесте WEPAL	90
2.	Благодарности.....	92
3.	Сертификат МАГАТЭ.....	93
4.	Список использованных сокращений	94
5.	Список рисунков	96
6.	Список литературы	97

Введение

1. Актуальность темы

Нейтронный активационный анализ (НАА) является одним из наиболее передовых аналитических методов, широко используемых в геологии, биологии, медицине, экологии и материаловедении как для проведения научных исследований, так и в прикладных целях [1].

Развитие метода инструментального нейтронного активационного анализа (ИНАА) и расширение масштабов его применения во многом связано с развитием реакторной техники. Нейтронный активационный анализ на реакторных нейтронах характеризуется, прежде всего, стабильностью условий анализа и возможностью проведения массовых измерений при проведении масштабных исследований. При этом обеспечивают высокую плотность потока нейтронов и возможность их использования во всем энергетическом спектре (тепловых, резонансных и быстрых), в результате чего значительно улучшают избирательность, чувствительность и точность НАА.

Следующей значимой ступенью в развитии метода стало появление современных полупроводниковых детекторов с высокой степенью разрешения, а также персональных компьютеров, существенно изменивших технический уровень спектрометрических измерений при проведении ИНАА. В дальнейшем развитие метода напрямую определяли компьютерные технологии в обработке спектрометрической информации.

С начала нового тысячелетия основные тенденции в методических разработках были связаны с использованием различных вариантов НАА (абсолютный и относительный методы [2], k_0 -метод [3], метод циклической активации, метод с подавлением комптоновского излучения [4] и другие), а также с совершенствованием качества аналитических измерений и методов обработки спектров, созданием новых компьютерных программ и т.д. В то же время расширялись масштабы использования НАА в прикладных исследованиях в области наук о жизни и в материаловедении, зачастую в сотрудничестве со многими странами.

Следует отметить, что в международной аналитической практике метод НАА был признан референтным (primary) методом [5].

НАА является неразрушающим методом анализа, при его проведении нет необходимости в химическом растворении пробы, что позволяет избежать потерь и обеспечить высокую точность анализа. Метод дает возможность определять концентрации 40-45 элементов одновременно, обладает высокой чувствительностью, избирательностью и производительностью.

В рамках исследовательских международных программ проводят массовый анализ большого количества образцов, что требует организации маркировки, хранения и учета анализируемых образцов, измерений и обработки спектров, а также систематизации результатов анализа.

Таким образом, на современном этапе развития метода НАА приоритетной задачей становится автоматизация процесса его проведения с использованием аналитических установок, работающих на исследовательских реакторах в условиях проведения массовых многоэлементных анализов. Эта задача содержит несколько аспектов:

- создание устройств и систем для автоматизации анализа;
- разработка компьютерных технологий и программного обеспечения, как для их работы, так и для обработки аналитической информации;
- разработка новых методов организации и проведения процесса массового многоэлементного НАА.

Несмотря на то, что создание автоматизированных систем НАА является насущным этапом развития метода, работы в этом направлении, в силу их сложности, в настоящее время малочисленны и продвигаются очень медленно.

Мероприятия по усовершенствованию и стандартизации методов НАА, повышению качества аналитических измерений и их надежности широко пропагандирует и поддерживает Международное Агентство по Атомной Энергии (МАГАТЭ) в рамках ряда международных программ. С помощью Согласованных исследовательских проектов и программ Технической кооперации МАГАТЭ проводит постоянную работу для достижения высокого

уровня исследований, обеспечения стандартизации и удовлетворительной сходимости их результатов при выполнении анализов в разных странах. В настоящее время (2012-2015) усилия МАГАТЭ направлены, в том числе, на реализацию международной программы по разработке единого подхода к автоматизации процесса НАА [6].

В Лаборатории нейтронной физики (ЛНФ) им. И.М. Франка Объединённого института ядерных исследований (ОИЯИ) уже более четырёх десятилетий проводят научно-исследовательские и прикладные работы с использованием НАА [7, 8] на радиоаналитическом комплексе РЕГАТА при импульсном быстром реакторе ИБР-2.

Радиоаналитическая установка РЕГАТА включает пневмотранспортную систему, предназначенную для транспортировки образцов на облучение и обратно; детекторы гамма-излучения со спектрометрической измерительной аппаратурой; устройства для смены измеряемых образцов (УСО) на детекторах гамма-излучения; аппаратурно-программное и программное обеспечение. Установка работает в полуавтоматическом режиме, где часть операций выполняют автоматически, а часть – с участием персонала. Качество аналитических измерений во многом зависит от степени автоматизации операций НАА, поэтому работы в этом направлении ведут постоянно.

В настоящей работе представлены результаты исследований по разработке, созданию и вводу в эксплуатацию аппаратурно-программного комплекса для автоматизации массового многоэлементного НАА на импульсном быстром реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. Аппаратурно-программный комплекс [9, 10, 11, 12] включает:

- автоматическую систему измерения спектров наведённой активности для проведения массового многоэлементного НАА образцов на основе трёх одновременно используемых оригинальных УСО и универсального программного обеспечения для автоматического управления, контроля и оптимизации процесса измерения спектров;
- базу данных НАА;

- а также аппаратурно-программное и программное обеспечение для получения, передачи, обработки, учёта и анализа аналитической информации, получаемой на всех этапах НАА.

Результаты выполненных исследований позволили повысить степень автоматизации операций НАА на реакторе ИБР-2, сократить время, необходимое для проведения измерений облучённых образцов, улучшить качество аналитических данных, увеличить производительность аналитических работ и уменьшить влияние субъективных факторов. Кроме того, создание автоматической системы измерения спектров позволило избавить сотрудников от необходимости выполнения круглосуточной работы по смене образцов на детекторах, избежать получения дополнительной дозы радиации, оказывающей негативное воздействие на организм человека.

Работы проводились в рамках следующих программ МАГАТЭ:

- IAEA Coordinated Research Project 1888 – «Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis» (2012-2015) [6];
- IAEA Technical Cooperation Project (RUS7003) «Harmonization of QA/QC systems according to ISO and international standards in nuclear analytical laboratories of the Russian Federation» (2007-2012).

2. Цели и задачи диссертационной работы

Целью работы является разработка комплекса методов для автоматизации НАА:

- разработка новой методики проведения массового многоэлементного НАА с обеспечением высокого качества аналитических результатов, надежности и производительности;
- организация процесса получения, передачи, хранения, учёта и анализа всей необходимой информации в ходе приёма, хранения, подготовки к облучению и облучения образцов, измерения спектров наведённой активности, при выполнении расчетов при обработке

спектрометрической информации, т.е. на всех этапах массового многоэлементного НАА.

Основной задачей является создание аппаратурно-программного комплекса с использованием современного оборудования и компьютерных технологий для автоматизации проведения массового многоэлементного НАА на радиоаналитическом комплексе РЕГАТА реактора ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ, включающего:

- автоматическую систему для измерения спектров наведённой активности облученных образцов с одновременным использованием трёх оригинальных устройств автоматической смены образцов, в комплексе с тремя полупроводниковыми детекторами гамма-излучения и спектрометрической аппаратурой, а также соответствующее управляющее программное обеспечение;
- базу данных НАА, предоставляющую возможность использования необходимой информации в автоматическом и полуавтоматическом режимах на всех этапах анализа, как программному обеспечению, так и сотрудникам сектора;
- аппаратурно-программные и программные средства, обеспечивающие автоматизацию и оптимизацию процесса получения, передачи, хранения, обработки и анализа всей необходимой информации.

3. Методы исследования

При выполнении диссертационной работы применяли:

- новое оборудование – двух-координатные устройства линейного перемещения с инкрементными энкодерами, референсными и концевыми датчиками;
- а также устройства кругового перемещения, оборудованные шаговыми двигателями с инкрементными энкодерами и референсными датчиками;

- контроллеры устройств линейного и кругового перемещения;
- современные среды программирования Visual Basic и Delphi;
- современную систему управления базами данных MS SQL Server;
- среду Motion Basic для отладки процесса управления УСО;
- библиотеку XemoDll для создания программного обеспечения, управляющего УСО;
- язык REXX (REstructured eXtended eXecutor – «реструктурированный расширенный исполнитель») для динамического создания программы, управляющей спектрометрической программой «Genie-2000»;
- среду поддержки пакетного режима S561 для «Genie-2000» для выполнения динамически создаваемой программы на языке REXX;
- язык SQL (Structured Query Language – структурированный язык запросов) для работы с базой данных;
- методы математической статистики.

4. Научная новизна

Разработан комплекс методов автоматизации массового многоэлементного НАА образцов на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. Создан аппаратурно-программный комплекс для автоматизации НАА.

Впервые разработана, создана и введена в эксплуатацию не имеющая аналогов автоматическая система измерения спектров наведённой активности для проведения массового многоэлементного НАА образцов. Разработаны и внедрены устройства автоматической смены образцов. Разработан метод массовых измерений больших партий образцов на основе комплекса из трёх автоматических УСО (ёмкостью 45 образцов каждое) и, соответственно, трёх полупроводниковых детекторов гамма излучения на основе сверхчистого германия со спектрометрической аппаратурой, а также управляющего программного обеспечения. Все УСО могут быть задействованы одновременно. Разработаны методы и алгоритмы управления системой автоматического

измерения активности облученных образцов и её взаимодействия с базой данных. Создано управляющее программное обеспечение. Разработанная система предусматривает возможность увеличения числа одновременно используемых детекторов и связанных с ними УСО.

Разработаны методы и алгоритмы автоматизации основных этапов исследования очередной партии образцов, начиная от получения образцов, до выдачи отчёта о результатах анализа с концентрациями определяемых элементов и другими характеристиками.

Создана оригинальная база данных НАА, а также интерфейс базы данных для получения, хранения, передачи, поиска, сортировки и анализа всего спектра информации об образцах, стандартных образцах и мониторах потока на всех этапах НАА. База данных особенно эффективна при работе с большими партиями образцов в ходе исследовательских работ международного масштаба.

Разработано аппаратно-программное устройство для автоматизации взвешивания образцов. Автоматизирован процесс получения и дальнейшего использования информации о весе анализируемых образцов, стандартных образцов и мониторов потока.

Разработаны алгоритмы расчёта концентраций элементов относительным методом НАА с использованием программы анализа спектров «Genie-2000» и базы данных НАА. Реализована возможность учёта разницы в потоках нейтронов при облучении образца и стандарта в разное время и/или в разных местах канала облучения. Обеспечена возможность выбора типа файлов измерений, предпочтительных при определении конкретных нуклидов. Внедрён оригинальный метод расчета концентраций с применением так называемого группового стандарта. Разработан метод и алгоритм автоматизированного создания группового стандарта.

Разработан метод и алгоритм подбора стандартных образцов при заданном значении погрешности определения содержания элементов и необходимом элементном составе.

С использованием методов математической статистики предоставлена возможность выявления корреляций между концентрациями некоторых элементов, важных при проведении экологических исследований.

Разработаны алгоритмы контроля качества и достоверности анализа на разных этапах его проведения при массовом многоэлементном анализе образцов.

Предложенный аппаратно-программный комплекс способствует осуществлению мероприятий системы обеспечения и контроля качества аналитических исследований (QC/QA) согласно требованиям международного стандарта ISO/IEC 17025 (ГОСТ Р ИСО/МЭК 17025-2006) [13].

5. Достоверность результатов диссертационной работы

Достоверность результатов исследований подтверждается ручной и программной проверкой тестовых данных, проводимой как в ЛНФ ОИЯИ, так и в рамках межлабораторных испытаний на международном уровне (приложение 1), а также повседневным рутинным использованием в ЛНФ ОИЯИ оборудования и методов, предлагаемых в диссертации. Достоверность результатов также подтверждается качеством аналитических исследований, выполняемых на радиоаналитическом комплексе реактора ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ в рамках международных проектов, публикациями результатов в реферируемых журналах.

В декабре 2013 года получен сертификат МАГАТЭ с высокой оценкой результатов проделанной работы специалистами из 19 стран и секретариатом МАГАТЭ (приложение 3).

6. Основные положения, выносимые на защиту:

- Устройство и принцип работы автоматической системы измерения активности облученных образцов, предназначенной для анализа больших партий и включающей в себя три одновременно работающих оригинальных устройства автоматической смены

образцов, обслуживающие три полупроводниковых детектора со спектрометрической электроникой, и управляющее программное обеспечение. Методы и алгоритмы комплексного управления УСО, полупроводниковыми детекторами и процессами обмена информацией на всех этапах функционирования автоматической системы измерения спектров.

- Методика проведения массового многоэлементного НАА с обеспечением высокого качества аналитических результатов и производительности с использованием аппаратно-программного комплекса. Методы и алгоритмы работы аппаратно-программного комплекса, включающего автоматическую систему измерения спектров наведённой активности, базу данных НАА и программное обеспечение.
- Оригинальный подход к построению и использованию сетевой базы данных, предназначенной для сбора, передачи и хранения информации обо всех этапах НАА, предоставляющей широкие возможности поиска, сортировки, анализа и повседневного использования накопленных данных. Оригинальный интерфейс базы данных, обеспечивающий широкие возможности для использования необходимой информации, а также для электронного документооборота.
- Многоуровневое программное обеспечение для управления устройствами и процессами получения, передачи, анализа и обработки информации.
- Алгоритмы автоматического контроля качества аналитических измерений, промежуточных и окончательных результатов анализа образцов.

7. Практическая значимость

Разработан аппаратурно-программный комплекс, позволяющий автоматизировать НАА на реакторных нейтронах, апробированный в ЛНФ ОИЯИ. С его помощью проводят анализы больших партий различных образцов, обрабатывают большие объёмы данных, в результате чего повысилась производительность анализа, улучшилось качество анализа, снизилось количество субъективных ошибок, вносимых сотрудниками при проведении и обработке результатов НАА. Автоматическая система измерения спектров, одновременно использующая три оригинальных УСО, позволила минимизировать участие человека в рутинных процессах измерения спектров, сократить время контакта персонала с радиоактивными образцами. Программное обеспечение комплекса разрабатывалось с учётом опыта персонала. Программное обеспечение обеспечивает возможность быстрого проведения статистической обработки больших объёмов информации, обладает удобным интерфейсом. Два языка интерфейса (русский и английский) позволяют эксплуатировать программное обеспечение не только сотрудникам сектора, но и иностранным специалистам.

8. Внедрение результатов работы

Разработанный аппаратурно-программный комплекс является безальтернативным повседневным рабочим инструментом сотрудников сектора нейтронного активационного анализа и прикладных исследований (СНААПИ) ЛНФ ОИЯИ. Он может быть использован и рекомендован МАГАТЭ в качестве примера для автоматизации НАА на других реакторах в исследовательских лабораториях мира.

9. Апробация работы

Основные положения диссертации докладывались и обсуждались на следующих конференциях и семинарах:

1. А.Ю. Дмитриев. Разработка комплекса методов для автоматизации массового многоэлементного нейтронного активационного анализа на

реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ. Семинар Отделения ядерной физики ЛНФ ОИЯИ, 24 декабря 2014 г.

2. A.Yu. Dmitriev. Software complex for automation of reactor neutron activation analysis. 3rd International Conference on Circuits, Systems, Communications, Computers and Applications (CSCCA '14), November 22-24, 2014, Florence, Italy.
3. A.Yu. Dmitriev, S.S. Pavlov, I.A. Chepurchenko, M.V. Frontasyeva. Automation system for gamma spectra measurement in neutron activation analysis at the reactor IBR-2. 22th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, May 27-30, 2014, Dubna, Russia.
4. M.V. Frontasyeva, S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev. Automation of reactor neutron activation analysis. The International Atomic Agency's second Research Coordination Meeting on Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis (CRP 1888), December 02-06, 2013, Vienna, Austria.
5. A.Yu. Dmitriev. Automation of neutron activation analysis (NAA) at the IBR-2 reactor of FLNP JINR. Seminar at St. Cyril and Methodius University, November 05, 2013, Skopje, Macedonia.
6. A.Yu. Dmitriev, S.S. Pavlov. NAA database in mass neutron activation analysis at the IBR-2 reactor of FLNP, JINR. 21th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, May 20-25, 2013, Alushta, Ukraine.
7. A.Yu. Dmitriev. Software for automation of neutron activation analysis (NAA) at IBR-2 reactor of FLNP JINR, Russia. Seminar at Comenius University, December 12, 2012, Bratislava, Slovakia.
8. M.V. Frontasyeva, S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev. Automation of reactor neutron activation analysis. The International Atomic Agency's first Technical Meeting on Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis (CRP 1888), August 27-31, 2012, Delft, Netherlands.

9. A.Yu. Dmitriev, S.S. Pavlov, T.M. Ostrovnaya, S.F. Gundorina. Software for automation of neutron activation analysis at the IBR-2 reactor of FLNP JINR. 20th International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, May 21–26, 2012, Alushta, Ukraine.
10. А.Ю. Дмитриев. Программный комплекс для автоматизации нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ. Семинар Отделения ядерной физики ЛНФ ОИЯИ, 17 апреля 2012 г.

10. Публикации

1. S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev, I.A. Chepurchenko, M.V. Frontasyeva. Automation system for measurement of gamma-ray spectra of induced activity for multi-element high volume neutron activation analysis at the reactor IBR-2 of Frank Laboratory of Neutron Physics at the Joint Institute for Nuclear Research. *Письма в журнал «Физика элементарных частиц и атомного ядра» (ЭЧАЯ)*. 2014. Т 11, №6(190). С. 1143-1149.
2. S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev, M.V. Frontasyeva. Automation of reactor neutron activation analysis. *Communications of JINR*, D18-2013-87, Dubna, 2013.
3. А.Ю. Дмитриев, С.С. Павлов. Автоматизация количественного определения содержания элементов в образцах методом нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ. *Письма в журнал «Физика элементарных частиц и атомного ядра» (ЭЧАЯ)*. 2013. Т 10, №1(178). С. 58-64. Работа удостоена премии журнала за 2013 год.
4. А.Ю. Дмитриев, С.С. Павлов. Программное обеспечение для автоматизации нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ. *Ядерные измерительно-информационные технологии*. 2012. №4. С. 54-66.

Обзор работ по автоматизации НАА

1. Тенденции в области автоматизации НАА

Оценка мировых тенденций в области НАА сформулирована в работе [6]. Авторы этой работы, эксперты МАГАТЭ, считают, что уровень автоматизации в большинстве лабораторий НАА ниже уровня, обеспечиваемого современной промышленностью для альтернативных аналитических методов, таких как рентгено-флуоресцентный анализ (РФА), атомно-абсорбционная спектроскопия (ААС), атомная эмиссионная спектрометрия с индуктивно связанной плазмой (ИСП-АЭС), а также масс-спектрометрия с индуктивно связанной плазмой (ИСП-МС).

С этим связана ограниченность объема аналитических работ с использованием НАА, имеющая место на практике, несмотря на востребованность метода. Причины объясняют недостатками как автоматического оборудования (в частности, отсутствием устройств смены образцов), так и программного обеспечения. Как правило, программное обеспечение не рассчитано на высокую производительность работ и не учитывает требований рутинного использования в условиях анализа больших партий образцов. Степень участия персонала в процессе проведения анализа и обработке данных очень существенна. Таким образом, процесс анализа требует большого времени и затрат труда, а также подвержен влиянию субъективных факторов.

Исходя из объективных потребностей в проведении масштабных аналитических исследований, авторы отмечают важную роль автоматизации НАА и рекомендуют стимулировать работы по внедрению современных автоматизированных устройств и компьютерных технологий на всех этапах с целью сокращения времени анализа и повышения качества аналитической информации.

В декабре 2009 года в МАГАТЭ состоялось консультативное совещание: «Подготовка методических рекомендаций по реализации рутинной автоматизации в передовых аналитических лабораториях НАА» [14]. На

совещании были отмечены проблемы в области практического использования исследовательских реакторов, разработки и внедрения автоматических устройств, усовершенствования программного обеспечения с учетом требований массового анализа образцов и высокого качества измерений. По оценке участников совещания, международных экспертов из разных стран, автоматизация НАА в действующих в настоящее время лабораториях существенно расширит возможности для увеличения объемов измерений с применением метода НАА.

В настоящее время действует исследовательский координационный проект МАГАТЭ – CRP 1888 «Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis» (2012–2015), посвященный проблеме автоматизации НАА. Главной задачей проекта является координация работ по внедрению автоматизации НАА на исследовательских реакторах. В рамках проекта созданы три группы, координирующие работы по внедрению устройств смены образцов, работы по созданию и усовершенствованию программного обеспечения для автоматизации НАА, а также обмен опытом в этом направлении.

Сектор НААПИ ЛНФ ОИЯИ принимает активное участие в этом проекте МАГАТЭ и проводит исследования в области автоматизации НАА на радио-аналитическом комплексе РЕГАТА реактора ИБР-2 с учетом передовых тенденций в современной аналитической практике.

2. Примеры комплексной автоматизации НАА

Комплексная автоматизация НАА предусматривает работу в двух основных направлениях – разработку и использование современных устройств автоматизации механических операций в процессе анализа, а также разработку новых компьютерных технологий для управления этими операциями и для обработки спектрометрической информации при минимальном участии персонала. Важными факторами, которые должны быть учтены, являются обеспечение высокой производительности анализа, контроль качества

аналитических измерений, а также организация компьютерного менеджмента всего процесса НАА в условиях проведения массовых измерений.

Обзор опубликованных работ показывает, что наиболее высокий уровень автоматизации достигнут в лаборатории НАА на исследовательском реакторе Технологического университета в Делфте (Нидерланды) [15, 16, 17, 18, 19, 20, 21, 22]. Для целей НАА здесь используют несколько транспортных систем – быстрые для анализа короткоживущих изотопов (КЖИ) и медленные для анализа средне- и долгоживущих изотопов (ДЖИ). После облучения образцов ДЖИ контейнеры могут хранить в пятипозиционной карусели со свинцовой защитой.

Шесть из девяти детекторов гамма-излучения оборудованы УСО вместимостью от 64 до 200 образцов. Спектрометры подключены к локальной компьютерной сети посредством интерфейса RS-232C. Это позволяет осуществлять управление, как самими спектрометрами, так и УСО. Используют УСО, как собственной конструкции, так и модифицированные коммерческие модели, выпуска 1970 годов.

Локальной компьютерной сетью управляет операционная система Linux. Программное обеспечение оригинальной разработки осуществляет:

- менеджмент информации об образцах, условиях облучения и измерения спектров;
- контроль АЦП спектрометров и контроль УСО;
- управление сканирующим спектрометром;
- взаимодействие с контроллером быстрой транспортной системы;
- комплексный анализ спектров, интерпретацию результатов и составление отчётов [18, 19];
- автоматизированный внутренний контроль качества, создание контрольных диаграмм и оценка достоверности результатов [20];
- управление информацией о результатах анализа для внутреннего контроля качества;
- архивирование;

- контроль работоспособности спектрометров [21];
- калибровку по эффективности [22] и др.

Обработку спектров осуществляют в интерактивном режиме. В среднем, партия из 14 образцов, 2 образцов для внутреннего контроля качества и 20 мониторов потока нейтронов, состоящая из 36 – 108 спектров может быть проанализирована в течение 0,5 – 2 часов.

База данных содержит результаты анализа более 60-ти стандартных образцов, накопленные с 1992 года, которые используют для создания контрольных диаграмм.

Производительность лаборатории НАА Дельфтского Технологического университета в области многоэлементного НАА оценивают на уровне 15000 образцов в год. Квалифицированный специалист лаборатории способен обрабатывать около 1000 – 1200 образцов в год.

В более поздней работе [4] описывают 3 спектрометра с детекторами колодезного типа, 2 спектрометра с коаксиальными детекторами и современными УСО, а также 2 спектрометра с коаксиальными детекторами, которые используют на двух быстрых пневматических системах.

Программное обеспечение для анализа спектров наведённой активности [18] содержит модуль графического контроля качества анализа образцов [20]. Создаваемые этим модулем контрольные диаграммы отображают некоторые параметры, используемые для оценки качества аналитических измерений.

Комплексная система автоматизации НАА, используемая на реакторе China Advance Research Reactor (CARR) в Китайском институте атомной энергии (CIAE) описана в работе [23]. В распоряжении экспериментаторов имеются две транспортные системы, габариты которых позволяют транспортировать контейнеры с размерами $\varnothing 19 \times 40$ мм и $\varnothing 39 \times 70$ мм для облучения КЖИ и ДЖИ соответственно. Дистанция между позицией облучения и детекторами гамма-излучения составляет примерно 60 м. Если необходимо, контейнеры с образцами КЖИ после облучения для снижения наведенной

активности выдерживают внутри транспортной системы. Переупаковку образцов производят вручную. Затем образец переносят на один из трёх высокочистых германиевых (HPGe) коаксиальных детекторов. Измеренные образцы отсылают в хранилище отходов. УСО используют для проведения повторных измерений.

Для измерения ДЖИ используют УСО с вместимостью 100 образцов. Контейнеры с образцами имеют электронные метки, с помощью которых осуществляют компьютерное управление и контроль перемещения образцов. Для измерения спектров используют три спектрометра. Каждый детектор оборудован сканером электронных меток для идентификации измеряемых образцов.

Для измерения спектров используют цифровые анализаторы спектров Ortec Dspec-plus и Canberra DSA-2000. Оригинальное программное обеспечение, разработанное для анализа спектров и расчёта концентраций, работает в полуавтоматическом режиме. По сравнению с коммерческим программным обеспечением «Gamma vision» и «Genie-2000» оно обеспечивает лучшую точность в работе с пиками и возможность пакетного анализа для больших партий образцов (более 100 шт.).

Новая интересная автоматизированная пневмотранспортная система, разработанная для НАА КЖИ с использованием реакторов типа TRIGA Mark II или источников нейтронов, представлена в работах [24, 25, 26].

Система предназначена для облучения КЖИ с малым периодом полураспада (< 1 мин.), таких как, например, ^{110}Ag , $^{80\text{m}}\text{Br}$, $^{38\text{m}}\text{Cl}$, $^{116\text{m}}\text{In}$, ^{20}F , $^{179\text{m}}\text{Hf}$, $^{24\text{m}}\text{Na}$, $^{46\text{m}}\text{Sc}$, $^{77\text{m}}\text{Se}$ и $^{207\text{m}}\text{Pb}$. Процесс анализа, начиная с облучения образцов и кончая измерением спектров, полностью автоматизирован.

Пневмотранспортная система через загрузочный модуль связана с УСО на 30 образцов. Контейнеры могут быть помещены в загрузочный модуль, как автоматически из УСО, так и вручную. В пневмотранспортной системе работают специальные модули, с помощью которых осуществляют

механические операции НАА. Например, можно регулировать маршруты транспортировки образцов, а также менять способы облучения, выбирая между источником нейтронов или реактором типа TRIGA Mark II.

Измерительный модуль предоставляет возможность размещения и центрирования образцов на детекторе. Для управления процессами облучения образцов и измерения спектров предназначен модуль управления.

Для создания программного обеспечения использована среда Delphi. Пакет программ предназначен для управления процессами облучения образцов и измерения спектров наведённой активности.

Работа по автоматизации НАА [27] выполнена в Radiation Science and Engineering Center (RSEC) в Государственном Университете Пенсильвании, (США) на реакторе Pennsylvania State Breazeale Reactor (PSBR) типа TRIGA Mark III с пневмотранспортной системой. Измерения спектров проводят в автоматическом режиме с использованием УСО, вращающаяся карусель которого вмещает 90 контейнеров с образцами. По окончании измерений вес образцов и сведения об облучении заносят в спектр вручную.

Спектрометрическая система содержит коаксиальный германиевый HPGe(Li) детектор Canberra GC1518, цифровой анализатор спектров Canberra DSA-2000, программное обеспечение «Genie-2000» и УСО.

Разработанное с помощью Visual Basic программное обеспечение использует библиотеки программы «Genie-2000». Программное обеспечение управляет работой УСО, набором и анализом спектрометрической информации, тем самым обеспечивают возможность проводить автоматические измерения спектров, а также автоматически рассчитывать концентрации элементов для партии образцов.

В работе [28] описаны условия проведения НАА на реакторе Open Pool Australian Lightwater reactor (OPAL) в Австралийской организации по ядерной науке и технологии (ANSTO), оборудованном пневмотранспортными

системами. НАА на реакторе проводят с использованием двух вариантов метода – относительного и k_0 . В будущем предполагают использовать коммерчески доступное УСО на 100 образцов.

Доставку и возврат контейнера с образцами КЖИ контролируют с использованием компьютерных технологий. После облучения образец вручную извлекают из контейнера и помещают на детектор. Для измерения спектров доступны два HPGe коаксиальных детектора р-типа.

Для облучения ДЖИ используют несколько пневматических транспортных систем. После облучения производят ручную выгрузку и помещают образцы в УСО, которым укомплектован HPGe коаксиальный детектор р-типа.

Для измерения спектров КЖИ используют спектрометр Ortec GEM25P-PLUS GEM (HPGe коаксиальный детектор), для ДЖИ – спектрометр Ortec GEM25P4 GEM (HPGe коаксиальный детектор). Оба спектрометра работают с цифровыми анализаторами спектров Ortec DSPEC-Pro.

Программный пакет HyperLab 2005 [47] используют для обработки спектров. Для расчётов методом k_0 в ANSTO применяют две наиболее широко используемые программы: «Kayzero for Windows» (k_0 -ware, Heerlen, Нидерланды) и « k_0 -IAEA» (МАГАТЭ, Вена, Австрия).

Авторы работы признают, что реализованные возможности доставки и измерения спектров не являются в достаточной степени автоматизированными и не отвечают требованиям рутинного анализа с высокой пропускной способностью.

Автоматические пневмотранспортные системы, используемые для проведения НАА на исследовательском реакторе High-Flux Advanced Neutron Application Reactor (HANARO) в Южной Корее, описаны в работе [29]. Системами управляют с помощью программируемых логических контроллеров и персональных компьютеров. Создано специальное программное обеспечение для управления.

3. Программное обеспечение для автоматизации НАА

В работе [30] обсуждается отсутствие современной системной архитектуры для стандартизации взаимодействия аппаратных и программных средств автоматизации и обеспечения совместимости специализированного оборудования для НАА. Специализированная среда может служить для решения этой задачи.

В статье предлагают основы такой среды, названной OpenNAА [31]. Среду разрабатывают при активном участии сообщества экспериментаторов, использующих НАА, как открытое программное обеспечение [32]. Среда привязана к языку программирования С, доступному на разных платформах. Язык С позволяет легко создавать оболочки с использованием С++, Java и других языков. Спецификация предлагает набор функциональных возможностей, которые удовлетворяют требованиям автоматизации НАА.

Спецификация среды OpenNAА определяет общий программный интерфейс между приложением и различными классами операций процесса НАА. Определяют следующие функции: управление системой; сбор данных и контроль над сбором данных; ввод/вывод данных; обработка спектров; управление библиотекой нуклидов; управление библиотекой стандартов; управление анализом данных.

Среда поддерживает низкий уровень API (application programming interface – набор готовых классов, процедур, функций, структур и констант, предоставляемых приложением для использования во внешних программных продуктах) для максимальной гибкости и высокий уровень API, предназначенный для снижения уровня сложности и ускорения разработки с помощью функций, которые используют функции API низкого уровня. Доступные возможности расширения предназначены для обеспечения взаимодействия с новым оборудованием в будущем без необходимости вносить изменения в API.

Спецификация предусматривает использование описательных метаданных (структурированных данных, представляющих собой характеристики

описываемых сущностей для целей их идентификации, поиска, оценки, и управления), таких как метка образца; уникальный аналитический идентификатор; идентификатор проекта; описание, тип и дата сбора образца; идентификатор стандарта; дата, время и продолжительность облучения, поток нейтронов при облучении и идентификатор партии; дата, время и продолжительность измерения спектра; а также геометрия. Использование метаданных значительно расширяет возможности для развития интерфейсов просмотра, понятных для экспериментатора, а также поиска и анализа информации.

Чтобы создать окончательную версию спецификации, разрабатывают эталонную реализацию (ЭР) спецификации. ЭР использует публично доступные программные средства: пакет анализа пиков OpenGammaX [33, 34], математическое и программное обеспечения GNU scientific library [35] и систему управления базами данных SQLite [36, 37]. ЭР выполнена в виде динамически подключаемой библиотеки dll. Конфигурационный файл даёт возможность ядру системы OpenNAA сопоставлять функции, содержащиеся в dll с различными системными функциями спецификации. Это обеспечивает возможность чтения и записи спектров таких форматов, как Ortec CHN, SPC и UFO, МАГАТЭ ASCII и формата OpenNAA, а также работу системы управления анализом данных; менеджмент данных ядерной библиотеки ENDF/B-VII [38] и стандартных материалов, используемых при выполнении операций QA/QC; спектральный анализ одиночных или множественных пиков и др.

Разрабатывают также Java-приложение NbNaa. Приложение будет обеспечивать типичный набор пользовательских средств: управление многоканальным анализатором, анализ спектров и менеджмент библиотеки нуклидов.

Для оценки возможностей программного обеспечения OpenNAA был проведён анализ 35 элементов в 140 образцах и 14 стандартах.

Результаты показали экономию времени до 80% по сравнению с типичным циклом НАА, так как использование метаданных значительно ускоряет процесс поиска и извлечения спектральной информации.

Работа [39] посвящена разработке программного обеспечения HYPERGAM, которое было создано как развитие оригинального программного обеспечения HYPERMET [40] с использованием новых компьютерных возможностей. Алгоритм полуавтоматического анализа гамма-спектров взят из исходного программного обеспечения. Анализ области пика осуществляют путем фитирования с использованием эмпирических формул. Реализована возможность обработки мультиплетных пиков.

Программа написана на языке MATLAB, чтобы предоставить графический интерфейс пользователя и обеспечить возможность работы в операционной системе MS Windows. Все функции активируют с помощью выбора пунктов меню и отображают в обычной «оконной» форме.

Программное обеспечение HYPERGAM имеет ряд преимуществ, обеспечивающих более высокую эффективность обработки результатов НАА: графический пользовательский интерфейс, наглядное отображение результатов, удобная среда управления. Для полного автоматического анализа планируют проводить идентификацию нуклидов.

В Южной Корее на стадии изучения находится новая региональная энергетическая система, основанная на небольшой атомной электростанции. Радиационный мониторинг окружающей среды такой электростанции планируют проводить с помощью изотопного анализа экологических образцов и максимально автоматизированной гамма-спектрометрии, использующей программное обеспечение HYPERGAM

Интерактивная графическая версия широко используемого программного обеспечения HYPERMET [40] рассматривается в работе [41]. Новое программное обеспечение HYPERMET PC разработано, в основном, для

быстрого гамма нейтронного активационного анализа (PGAA). HYPERMET PC позволяет осуществлять автоматическое фитирование спектров, измеренных с помощью высокочистых германиевых детекторов. Результаты фитирования могут быть откорректированы в интерактивном режиме. Обеспечивают высоко точные калибровки по энергии и интенсивности, необходимые для качественного и количественного анализа [42].

Оригинальная концепция HYPERMET описывает форму пиков с помощью полуэмпирических функций. Концепция хорошо зарекомендовала себя по сравнению с другими алгоритмами подгонки пиков [43]. Алгоритм, включённый в программу HYPERMET, успешно фитирует асимметричные пики в широком диапазоне энергий при различных значениях скорости счёта (частоты регистрации). Состав образца может быть определен на основании полного списка найденных энергий и интенсивностей. Массы выбранных элементов определяют методом наименьших квадратов.

В большинстве случаев следует проверить результаты в интерактивном режиме, однако с помощью описываемой версии программного обеспечения получение результата требует намного меньше ручной корректировки.

В будущем планируют включить в программное обеспечение несколько новых модулей. Новая версия программы HYPERMET будет работать на платформе MS Windows.

Коммерческое программное обеспечение для гамма-спектроскопии HyperLab описано на сайте [44] и в руководстве [45]. Ниже перечислены его основные возможности и преимущества.

Возможности программного обеспечения HyperLab:

- высококачественная автоматическая обработка гамма-спектров;
- возможность накопления спектров Canberra Dual LFC и Ortec ZDT-VAR;
- подробное визуальное отображение обрабатываемых областей, выявление мелких деталей;

- полный арсенал ручных настраиваемых инструментов для обработки;
- интерфейс базы данных SQL для хранения спектров и списка пиков;
- оценка эффективности детектора и нелинейности системы;
- возможность обработки большинства популярных форматов файлов со спектрами: Canberra CNF, Ortec SPC и т.д.

Возможности пакетной обработки:

- возможность выполнения обработки большого числа спектров без вмешательства экспериментатора;
- сохранение результатов обработки в базе данных, а также в формате TXT;
- возможность ручной обработки результатов с использованием базы данных с тем же набором инструментов, что и при индивидуальной обработке;
- возможность составления RTF-файлов отчётов с графическим представлением фитирования;
- результаты обработки спектров могут быть получены в течение нескольких минут.

Структурированное хранилище информации в базах данных SQL:

- хранение в сжатом виде спектров, а также пиков, ядерных данных и другой информации, необходимой для рутинной обработки;
- база данных обеспечивает одно независимое место хранения всей рабочей информации лаборатории, что является крупным шагом на пути к электронному документообороту;
- обеспечение строгих логических связей, что позволяет минимизировать вероятность неправильного ввода данных экспериментатором;
- база данных способствует обеспечению достоверности и надёжности результатов;

- база данных отлично подходит для пост-обработки, например, с использованием MS Excel.

Однако, специалисты из ANSTO в своём отчёте [46] утверждают, что база данных программного обеспечения HyperLab версии 2005 года [47] не содержит все поля, необходимые для НАА.

Работа [48] посвящена обзору программного обеспечения GammaLab, представляющего собой набор компьютерных программ, написанных в среде MATLAB и предназначенных для выполнения вычислений в k_0 методе НАА. Все алгоритмы, в том числе, алгоритм основной программы, запускают из командной строки MATLAB. Основные особенности программы: использование необходимых калибровок, вычитание фона, идентификация нуклидов, коррекция спектральной интерференции, определение концентраций элементов и пределов обнаружения. Исходные данные берут из двух файлов: файла со спектром в формате МАГАТЭ ASCII и файла с отчётом, содержащим данные об энергии и площади пиков. Информацию об образце, условиях облучения и измерения и фоне считывают из базы данных QAQCData. Ядерные данные (гамма-линии, периоды полураспадов и k_0 -факторы) считывают из базы данных NucData. Результаты анализа, которые содержат концентрации элементов и погрешности, хранят в базе данных QAQCData.

Для оценки возможностей программы GammaLab были проанализированы несколько сотен спектров, собранных в течение последних лет. Результаты признаны удовлетворительными. Среднее время обработки спектра, имеющего около 100 пиков на компьютере, оснащённом процессором Intel Core 2 с частотой 2,13 ГГц и 1 Гб оперативной памяти, составляло не более 3 минут. В будущем будет доступен графический пользовательский интерфейс. Обработку информации для других методов НАА, например, относительного, планируют внедрить в следующую версию программы GammaLab.

В работе [49] описано программное обеспечение, созданное в лаборатории Nuclear Energy Center for Agriculture (CENA) в Institute of the University of Sao Paulo (Сан Пауло, Бразилия) для автоматизации НАА. Собственное программное обеспечение было разработано с учетом конкретных требований лаборатории для работы с k_0 вариантом НАА: создание базы данных, которая содержит ядерные константы, k_0 параметры, параметры калибровки по эффективности, аналитические данные об анализируемых образцах и данные об облучениях и измерениях; возможность считывания из файлов и записи в базу данных результатов анализа спектров; возможность работы с данными с учётом массовости анализа; создание интерфейса для работы с базой данных с возможностью легко записывать, редактировать и считывать данные; обеспечение работы пакета программ в операционной системе MS Windows. Разработанный пакет состоит из двух программ: Quantu-INAA – для управления данными и выполнения всех расчетов, связанных с методом k_0 и Quantu-MCA – для спектрального анализа.

Основной модуль Quantu-INAA содержит интерфейс для отображения и управления всеми изменяемыми данными. Из основного модуля доступны другие модули для выполнения конкретных задач. Модуль расчета предназначен для вычисления концентраций, погрешностей, пределов обнаружения и др. Этот модуль находит необходимую информацию в базе данных, выполняет вычисления и сохраняет результаты в базе данных.

Модуль отчетов считывает нужные результаты из базы данных и компоует результаты в виде отчётов, отображает на экране, выводит на печать, позволяя осуществлять электронный обмен информацией.

Quantu-MCA также имеет основной модуль, из которого есть доступ к другим модулям программы. Анализ начинают с загрузки спектра с помощью модуля чтения файлов, который способен читать только Ortec файлы с расширением CHN. Основной модуль содержит интерфейс для визуализации спектра, позволяет изменять масштаб и прокручивать каналы. В этом модуле может быть проведён интерактивный спектральный анализ с ручным

определением положения пиков. Кроме того, пики могут быть найдены по методу второй производной. Результаты отображают в формате электронных таблиц и могут быть сохранены в файл.

Партии спектров анализируют с помощью модуля автоматического анализа. Экспериментатор должен выбрать из списка те спектры, которые предполагает обработать. После анализа файл с результатами создают без вмешательства экспериментатора.

Обе программы Quantu-INAA и Quantu-MCA были созданы с помощью среды MS Visual Basic. Благодаря простоте, доступности и полной совместимости с Visual Basic, для создания базы данных была использована система управления базами данных MS Access.

Программное обеспечение ERON (ERror propagatiON), созданное в Институте Йозефа Стефана (Любляна, Словения) описано в работе [50]. Программа ERON предназначена для расчётов погрешностей при k_0 -НАА. Для расчётов используют экспериментальные данные, а также ядерные константы из международной базы данных International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC) [51]. Результаты работы программы были экспериментально проверены методом k_0 -НАА на реакторе TRIGA Mark II в Институте Йозефа Стефана. Сравнивали известные концентрации элементов в стандартных образцах и экспериментально определенные величины с расчётными погрешностями. Сравнение показало, что погрешности зависят от конкретных условий облучения и измерения.

Сравнение с другими программами расчёта погрешностей даёт сопоставимые результаты для простых наборов данных. Однако имеющееся в продаже программное обеспечение не допускает включения некоторых дополнительных параметров.

Результаты расчетов могут быть распечатаны и экспортированы в текстовый формат или в формат электронных таблиц MS Excel для дальнейшего анализа. Программа ERON была разработана с учетом

возможности её включения в один из существующих пакетов программного обеспечения для k_0 -НАА.

4. Заключение

Как показывает обзор работ по автоматизации НАА, комплексный подход с одновременным использованием и нового оборудования, и созданного программного обеспечения характерен лишь для единичных случаев. Причем, некоторые рассмотренные примеры комплексной автоматизации далеки от совершенства.

Во многих случаях программное обеспечение лишь частично решает локальные проблемы или позволяет автоматизировать ту или иную часть процесса анализа в зависимости от требований отдельных лабораторий. В большинстве рассмотренных работ отсутствуют примеры использования базы данных и ее широких возможностей для комплексной автоматизации НАА.

Пределом программной автоматизации в обработке спектрометрической информации для многих НАА-лабораторий на сегодняшний день является использование электронных таблиц типа MS Excel. Поэтому значительная нагрузка в процессе получения окончательных результатов анализа ложится на персонал.

Все это ограничивает использование НАА для рутинного многоэлементного анализа больших партий образцов, что особенно существенно для реакторного НАА.

Таким образом, обзор современных исследований в области автоматизации НАА показывает актуальность задачи автоматизации процесса массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2, поставленной с учетом возможностей современных устройств и компьютерных технологий. Полученный опыт работы, созданное оборудование и разработанный программный комплекс могут быть использованы для автоматизации НАА на исследовательских реакторах, как в России, так и в других странах.

Основная часть

1. Методические проблемы автоматизации массового многоэлементного НАА.

Комплекс методов для автоматизации массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ

1.1. Варианты НАА, используемые при рутинных массовых измерениях

1.1.1. Абсолютный метод

При использовании абсолютного метода массу элемента m , g , определяют по измеренной абсолютной активности A с помощью формул (1) и (2),

$$A = \varphi_{th} \sigma_{eff} \frac{m}{M} N_A \theta (1 - e^{-\lambda \cdot t_{ir}}) e^{-\lambda \cdot t_d} (1 - e^{-\lambda \cdot t_m}) \quad (1)$$

$$A = \frac{S}{\varepsilon \gamma}, \quad (2)$$

где φ_{th} – плотность потока тепловых нейтронов; σ_{eff} – эффективное сечение активации; M – молярная масса элемента, $g/моль$; N_A – число Авогадро, $моль^{-1}$; θ – распространенность (доля) активируемого изотопа в естественной смеси изотопов; λ – постоянная распада, c^{-1} ; $\lambda = 0,693/T_{1/2}$, $T_{1/2}$ – период полураспада изотопа, образующегося в процессе активации; t_{ir} , t_d и t_m – время облучения, распада и измерения, соответственно; S – площадь пика; ε – эффективность спектрометра; γ – квантовый выход [52].

Конечный результат определения концентрации элементов при использовании абсолютного метода существенно зависит от точности определения величин, входящих в формулы, а также от параметров спектрометрической аппаратуры.

1.1.2. Относительный метод

1.1.2.1. Метод одного компаратора

В методе одного компаратора для многоэлементного НАА используют k -фактор – коэффициент пропорциональности некоторых параметров

определяемого элемента и элемента из компаратора. k -фактор определяют по формуле:

$$k = \frac{M_a \gamma_c \varepsilon_c \theta_c \sigma_{\text{eff},c}}{M_c \gamma_a \varepsilon_a \theta_a \sigma_{\text{eff},a}};$$

где индексом a обозначены параметры определяемого элемента в образце, а индексом c – параметры элемента в компараторе.

Концентрацию ρ , г г⁻¹, рассчитывают с использованием k -фактора:

$$\rho = \frac{\left(\frac{A}{SDCw} \right)_a k}{\left(\frac{A}{SDCw} \right)_c};$$

где: A – площадь пика; $S = \left(-e^{-\lambda t_{ir}} \right)$; $D = e^{-\lambda t_d}$; $C = \left(-e^{-\lambda t_m} \right)$; w – масса, г. [53].

Экспериментально определяемые k -факторы часто являются более точными, чем значения, рассчитанные на основе табличных данных в абсолютном методе. Однако, k -факторы действительны только для конкретных детекторов, геометрии измерения и облучения и только когда параметры нейтронного потока стабильны.

1.1.2.2. k_0 -метод

Появление так называемого k_0 -метода в практике НАА связано с возможностью определения k -факторов таким образом, чтобы они были независимы от параметров нейтронного потока, а также от характеристик спектрометра. Тогда k_0 -фактор определяют следующим образом:

$$k_0 = \frac{M_c \theta_a \sigma_{0,a} \gamma_a}{M_a \theta_c \sigma_{0,c} \gamma_c},$$

где σ_0 – сечение активации тепловых нейтронов, м², при 0,025 эВ;

Концентрацию ρ определяют из выражения:

$$\rho = \frac{1 + \frac{Q_{0,c}(\alpha)}{f} \varepsilon_c \left(\frac{A}{SDCW} \right)_a}{1 + \frac{Q_{0,a}(\alpha)}{f} \varepsilon_a \left(\frac{A}{SDCW} \right)_c} \frac{1}{k_0},$$

где $\sigma_{eff} = \sigma_0 \left(1 + \frac{Q_0(\alpha)}{f} \right)$ – эффективное сечение активации; $Q_0(\alpha) = \frac{I_0(\alpha)}{\sigma_0}$ –

отношение резонансного интеграла к сечению активации для тепловых

нейтронов; α – эпитепловой спектральный форм-фактор; $f = \frac{\varphi_{th}}{\varphi_{epi}}$ – отношение

поток тепловых и эпитепловых нейтронов [53].

Таким образом, k_0 -фактор становится чисто ядерным параметром, характеризующим спектр тепловых нейтронов. В k_0 -соглашении в качестве элемента-компаратора предпочтительно использовать Au. Параметры f и α должны быть измерены для каждой конкретной установки и даже для каждого облучения и образца. Для определения этих параметров необходимо облучить и измерить, по крайней мере, три изотопа. Обычно используют составной монитор потока, содержащий подходящее количество ^{198}Au , ^{95}Zr и ^{97}Zr . Таким образом, k_0 -метод является методом трёх компараторов.

1.1.2.3. Классический относительный метод

Классический относительный метод предполагает одновременное облучение анализируемого образца и стандарта с точно известным количеством определяемого элемента. После облучения измеряют спектры наведённой активности стандартного и исследуемого образцов и вычисляют активности изотопов. Концентрацию элемента в образце рассчитывают из соотношения:

$$C_{обр.} = C_{ст.наст.} \frac{A_{обр.}}{A_{ст.}} K, \quad (3)$$

где $C_{обр.}$ – рассчитываемая концентрация элемента образца; $C_{ст.наст.}$ – концентрация элемента в стандартном образце; $A_{обр.}$, $A_{ст.}$ – рассчитанные активности изотопов исследуемых и стандартных образцов, соответственно; K – коэффициент, учитывающий изменение потока нейтронов в случае облучения

исследуемого и стандартного образцов в разное время и/или в разных местах канала облучения.

Относительный метод облегчает проведение НАА и повышает точность определения концентрации элементов в исследуемых образцах. Некоторые погрешности, существенные при использовании абсолютного метода, не оказывают влияния на конечные результаты.

1.1.2.4. Метод группового стандарта

Метод группового стандарта, используемый в практике массового многоэлементного НАА в ЛНФ ОИЯИ (автор С.С. Павлов), является оригинальным усовершенствованным вариантом классического относительного метода.

В связи с тем, что многоэлементный НАА предполагает качественное и количественное определение нескольких десятков элементов, приходится, как правило, одновременно использовать несколько стандартов, содержащих, иногда, одинаковые элементы. При определении концентраций приходится повторять расчёты столько раз, сколько было взято стандартов. Окончательную таблицу с концентрациями составляют вручную из полученного набора таблиц для разных стандартов.

Метод группового стандарта служит для оптимизации работы со стандартами. Он позволяет выбрать для каждого элемента наилучший из облученных стандартов, уменьшить количество проводимых расчетов и операций по составлению общего результата анализа, уменьшить погрешности определения концентраций, а также получить результат сразу для всех определяемых элементов.

Перед составлением группового стандарта, при необходимости, осуществляют учёт флуктуации потока нейтронов при облучении стандартов в разное время и/или в разных местах канала облучения. Для этого одновременно со стандартным образцом облучают монитор потока нейтронов. Один из мониторов потока нейтронов выбирают как базовый. Значения активностей

изотопов стандартов, соответствующие остальным мониторам, пересчитывают к базовому потоку нейтронов по формуле (4):

$$A_{ст.кор.} = A_{ст.} \frac{A_{баз.мон.ст.}}{A_{мон.ст.}}, \quad (4)$$

где $A_{ст.кор.}$ – скорректированная активность изотопа стандарта; $A_{баз.мон.ст.}$ – активность базового монитора стандарта; $A_{мон.ст.}$ – активность монитора стандарта.

Для составления группового стандарта на основе базовых и пересчитанных активностей изотопов отдельных стандартов создают сводную таблицу активностей изотопов стандартных образцов. Погрешность определения активности изотопа стандарта рассчитывают по формуле (5):

$$\sigma_{Аст.расч.} = 100 \cdot \frac{\Delta_{Аст.}}{A_{ст.}}, \quad (5)$$

где $\sigma_{Аст.расч.}$ – погрешность активности изотопа стандарта, %; $\Delta_{Аст.}$ – погрешность активности изотопа стандарта.

Кроме того, в таблицу добавляют паспортные значения концентрации соответствующего элемента и погрешности, а также среднеквадратичную погрешность (%), которую рассчитывают по формуле (6):

$$\sigma_{ср.квдр.} = \sqrt{\left(100 \cdot \frac{\Delta_{Аст.}}{A_{ст.}}\right)^2 + \sigma_{Сст.пасп.}^2}, \quad (6)$$

где $\sigma_{ср.квдр.}$ – среднеквадратичная погрешность; $\sigma_{Сст.пасп.}$ – паспортная погрешность концентрации элемента стандарта.

Сводная таблица содержит строки с повторяющимися изотопами, из этих строк оставляют те, где паспортное значение концентрации является сертифицированным. Из оставленных строк с сертифицированными значениями выбирают ту, где суммарная погрешность определения активности изотопа и паспортного значения концентрации соответствующего элемента являются наименьшими. Остальные строки удаляют. Оставшиеся изотопы составляют оптимальный групповой стандарт.

После создания группового стандарта проводят проверку правильности его создания. Для этого по формулам (7) и (8) производят расчёт концентраций элементов и погрешностей их определения в каждом из облученных стандартов с использованием составленного группового стандарта:

$$C_{ст.наГРС} = C_{ст.наст.} \frac{A_{ст.кор.}}{A_{ГРС}}, \quad (7)$$

где $C_{ст.наГРС}$ – рассчитываемая концентрация элемента стандарта с использованием группового стандарта; $C_{ст.наст.}$ – сертифицированная (паспортная) концентрация элемента стандарта; $A_{ГРС}$ – активность изотопа группового стандарта.

$$\sigma_{C_{ГРСрасч.}} = 100 \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta_{A_{ст.}}}{A_{ст.}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_{A_{ГРС}}}{A_{ГРС}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{ст.наст.}}}{100}\right)^2}, \quad (8)$$

где $\sigma_{C_{ГРСрасч.}}$ – погрешность определения концентрации элемента стандарта с использованием группового стандарта; $\Delta_{A_{ГРС}}$ – погрешность активности изотопа группового стандарта.

Созданный групповой стандарт считают правильным, если рассчитанные значения концентраций элементов с погрешностью $\pm 2\sigma_{C_{ГРСрасч.}}$ совпадают с паспортными значениями. В противном случае экспериментатору рекомендуют повторить обработку спектров и расчёт концентраций с целью устранения причины увеличенной погрешности.

После составления группового стандарта и проверки его правильности рассчитывают концентрации по формуле (3) для классического относительного метода.

1.2. Определение концентраций элементов на основе спектрометрической информации

Обработку измеренных спектров наведённой активности осуществляют в два этапа. На первом этапе вычисляют активности изотопов с использованием программы «Genie-2000».

Перед обработкой спектров партии образцов проверяют калибровку спектров по энергии и эффективности. Для калибровки по энергии используют спектр Eu (или Eu и Ba), измеренный в этот же день, что и анализируемые спектры. В спектре находят и выделяют пики ^{152}Eu 121.8 кэВ и 1408 кэВ. Сравнивают энергии этих пиков с табличными значениями. Энергетическая калибровка удовлетворительна, если разница между текущим и табличным значениями энергии меньше 1 кэВ для каждого из пиков. В противном случае заново проводят калибровку.

Правильность загруженной в спектр калибровки по эффективности проверяют каждый раз перед обработкой нового спектра. Для этого сравнивают номер детектора, на котором проводили измерения, и высоту образца над детектором с номером детектора и значением высоты из загруженной в спектр калибровки.

Далее убеждаются в наличии в спектре информации о весе, единице измерения веса, а также о датах и времени начала и окончания облучения. При отсутствии ошибок приступают к анализу спектров. Возможны два различных режима обработки – шаговый и пакетный.

В режиме шаговой обработки спектров последовательно осуществляют следующие операции:

1. Поиск пиков в спектре с неизвестным набором пиков проводят с использованием метода второй производной.
2. Площадь синглетных пиков рассчитывают путём суммирования содержимого каналов в пике. Площадь мультиплетных пиков рассчитывают с помощью нелинейного метода наименьших квадратов. Обычно, используют одни и те же методы поиска пиков

и расчета их площадей при обработке спектров как измеряемых, так и стандартных образцов. При интерактивной обработке проводят фитирование пиков с тем, чтобы погрешность подгонки не превышала $\pm 2\sigma$.

3. С целью коррекции площадей пиков при обработке спектров ДЖИ, выполняют вычитание фона с использованием фонового спектра, измеряемого раз в месяц на каждом из детекторов.
4. Осуществляют учет эффективности детектора при расчёте активности.
5. Выполняют предварительную идентификацию изотопов. Допустимое различие между энергиями пиков спектра и библиотечными значениями принимается, обычно, равным 1 кэВ. При больших систематических расхождениях энергетическая калибровка детектора проводится заново.
6. Осуществляют идентификацию изотопов с коррекцией на интерференцию.
7. Вычисляют минимально детектируемую активность.
8. Составляют финальный отчет.

Пакетный режим позволяет предварительно настроить и собрать в одну последовательность все необходимые команды обработки спектров.

На втором этапе вычисляют концентрации элементов (мкг/г), минимально детектируемые концентрации (МДК) и погрешности (%) по формулам (9), (10) и (11) соответственно:

$$C_{обр} = C_{ст.насп} \frac{A_{обр}}{A_{ГРС}} \frac{A_{монст.}}{A_{монобр}}, \quad (9)$$

где $C_{обр}$ – концентрация элемента образца; $A_{мон.обр.}$ – активность монитора исследуемого образца.

$$C_{обрМДК} = C_{ст.насп} \frac{A_{обрМДА}}{A_{ГРС}} \frac{A_{монст.}}{A_{монобр}}, \quad (10)$$

где $C_{обр.МДК}$ – рассчитываемая МДК элемента образца; $A_{обр.МДА}$ – минимально детектируемая активность (МДА) изотопа исследуемого образца (мкКи/г).

$$\sigma_{C_{обр.}} = 100 \cdot \sqrt{\left(\frac{\Delta_{A_{обр.}}}{A_{обр.}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Аст.расч.}}{100}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Сст.наст.}}{100}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{СИ}}{100}\right)^2}, \quad (11)$$

где $\sigma_{C_{обр.}}$ – погрешность определения концентрации элемента образца, %; $\Delta_{A_{обр.}}$ – погрешность определения активности изотопа образца, абсолютная величина; $\sigma_{СИ}$ – систематическая погрешность, %.

1.3. Комплекс методов для автоматизации массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ

Работы по автоматизации массового многоэлементного НАА в ЛНФ ОИЯИ ведутся в рамках исследовательского проекта МАГАТЭ CRP 1888 «Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis». Проект свидетельствует об актуальности этих исследований на современном этапе развития методов НАА и отражает научно-техническое значение полученных результатов для широкого применения при решении прикладных задач.

Массовый многоэлементный НАА на реакторе ИБР-2 [54] ЛНФ ОИЯИ с использованием пневмотранспортной установки РЕГАТА [55] до внедрения комплекса методов автоматизации представлял собой трудоемкий процесс, где многие операции выполнялись вручную. Использовались бумажные журналы со сведениями об облучении и об измерениях спектров наведённой активности. Данные из них о датах и времени начала и окончания облучения образцов, а также значения веса измеряемых образцов и необходимые калибровки заносили в файл со спектром вручную. Групповые стандарты составляли и проверяли вручную. Особенно трудоёмким был процесс измерения спектров наведённой активности при определении ДЖИ-1 и ДЖИ-2, сопряжённый со сменой образцов на детекторах. Имена файлов с измеренными спектрами записывали в

журналы вручную. Все перечисленные процедуры могли служить источниками субъективных ошибок.

Исследования в области наук о жизни, выполняемые коллективом СНААПИ в рамках целого ряда масштабных международных проектов, как правило, связаны с проведением многоэлементного НАА больших партий образцов. Особо большие партии образцов мхов-биомониторов из разных стран поступают для проведения исследований по оценке атмосферных выпадений тяжелых металлов, как в рамках Европейской программы биомониторинга, так и в рамках аналогичных программ других регионов мира. При этом необходимо проведение круглосуточных измерений спектров наведённой активности со сменой образцов на детекторах, регистрацией в журналах и последующей кропотливой работой по обработке спектров. Помимо сложностей с обслуживающим персоналом соответствующей квалификации, такая работа связана с риском субъективных ошибок и потерей информации.

С учетом всех вышеперечисленных особенностей, для автоматизации проведения массового многоэлементного НАА в условиях ЛНФ ОИЯИ был разработан целый комплекс методов. Комплекс методов автоматизации предусматривает широкое использование современного оборудования, компьютерной техники, программных средств и современной системы управления базами данных (СУБД). Комплекс методов охватывает большинство операций НАА в ЛНФ ОИЯИ.

Новая схема массового многоэлементного НАА на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ представлена на рис. 1.

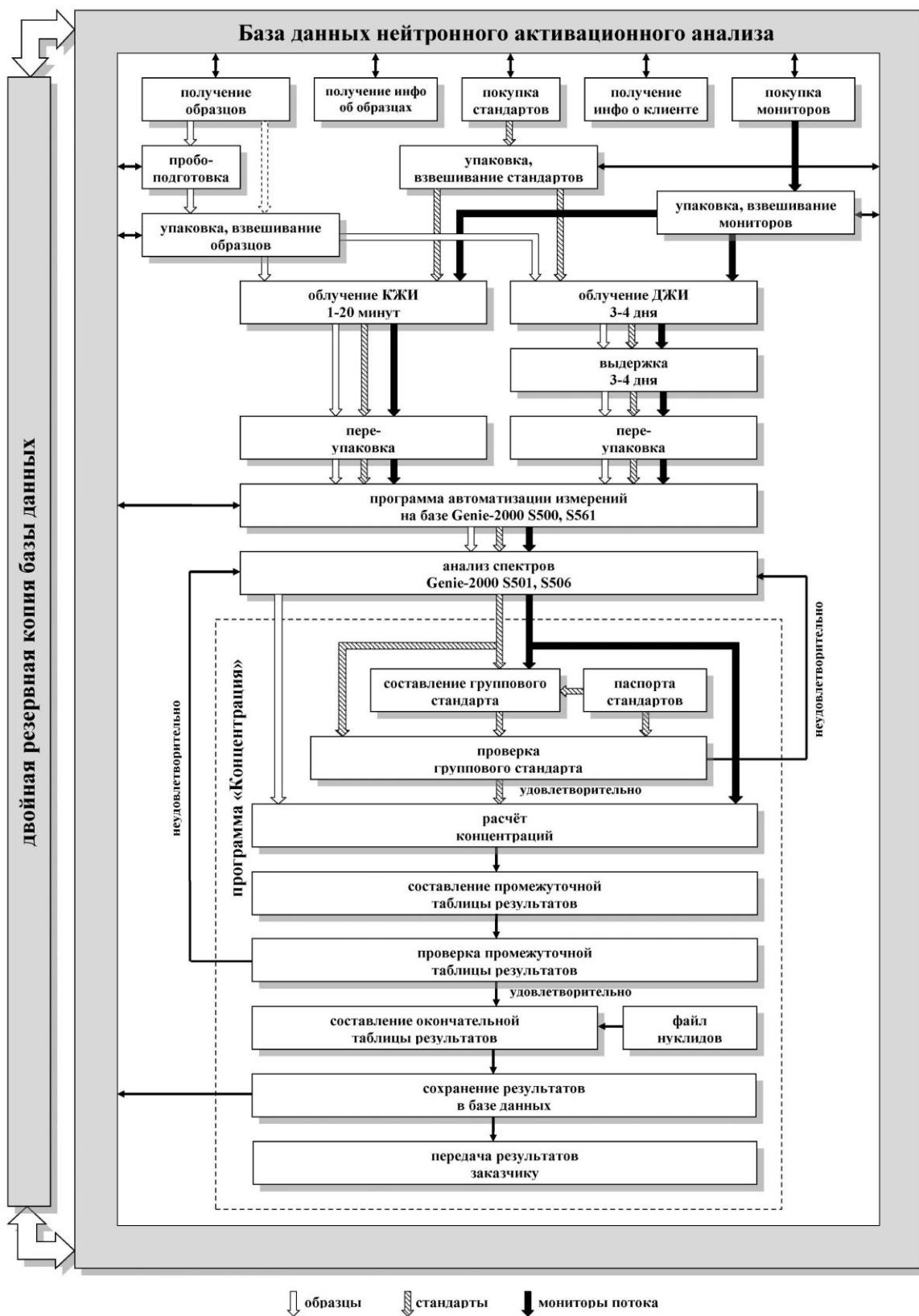


Рисунок 1. Схема проведения массового многоэлементного НАА в ЛНФ ОИЯИ

База данных. Работа с огромным количеством образцов (свыше шести с половиной тысяч образцов на момент написания работы, без учета стандартных

образцов и мониторов потока) требует наличия универсального средства, позволяющего оперативно сохранять и беспрепятственно использовать большие объёмы данных (более трёхсот двадцати параметров для одного образца). Причём возможность сохранять и использовать данные должна быть предоставлена как сотрудникам сектора, так и программному обеспечению. Без сомнения, только должным образом организованная база данных может в максимальной степени отвечать перечисленным требованиям. Лишь совершенная база данных может служить надёжной основой автоматизации процесса НАА.

Несмотря на очевидную необходимость использования базы данных при проведении массового многоэлементного НАА, в мировой практике крайне редки случаи наличия базы данных в исследовательских лабораториях. Кроме того, как правило, лаборатории, имеющие в своём арсенале базы данных, не в полной мере используют их возможности. Обзор работ в области автоматизации НАА показывает, насколько актуальна задача создания адекватной базы данных, учитывающей как можно больше требований массового многоэлементного НАА.

Комплекс методов требует сохранения информации обо всех этапах НАА в сетевой базе данных. Информация из базы данных доступна программному обеспечению и сотрудникам сектора. Программные средства, создаваемые в рамках комплекса методов, взаимодействуют с базой данных с помощью автоматически создаваемых SQL запросов. Для работы с базой данных сотрудники СНААПИ используют специальный интерфейс. Интерфейс обеспечивает удобную для экспериментаторов визуализацию информации. Интерфейс предусматривает широкое использование программных возможностей для сохранения информации в базе данных в автоматическом режиме с использованием файлов утверждённого формата. При сохранении информации в полуавтоматическом режиме интерфейс обеспечивает использование средств контроля за правильностью вводимой информации, а также средств для ускорения ввода информации. Интерфейс обеспечивает

сохранение информации из базы данных в формате файлов электронных таблиц MS Excel. СУБД периодически дублирует базу данных на разные персональные компьютеры СНААПИ. СУБД также обеспечивает различные уровни доступа экспериментаторов к данным в зависимости от выполняемых задач.

Приём образцов для анализа. Начальным этапом НАА является прием и регистрация образцов. Образцы, переданные клиентом одновременно, составляют партию образцов. Каждой партии образцов присваивают уникальный код. Объем партии – не более 99 образцов. При приеме для каждого образца сохраняют примерно 90 параметров, включая координаты места сбора, интересующие заказчика элементы, а также информацию о месте хранения принятого образца в секторе НААПИ. Информацию о клиенте, передавшем образцы для анализа (около 20 параметров) также сохраняют в базе данных. Этап приёма новой партии позволяет осуществить идентификацию как самой партии, так и всех составляющих её образцов. Эту идентификацию используют на последующих этапах НАА. Для обмена информацией об образцах и клиенте комплексом методов предусмотрено применение специального программного обеспечения, используемого клиентом для создания информационных текстовых файлов. Формат этих файлов позволяет автоматически сохранять информацию в базе данных.

Стандартные образцы и мониторы потока. Приобретение некоторого количества стандартного образца или монитора потока отражают в базе данных в виде создания новой партии стандартных образцов или мониторов потока, соответственно. При использовании стандартных образцов и мониторов потока из любой партии в базе данных фиксируют вес взятых проб, а также осуществляют контроль баланса веса партии. Для сохранения информации о весе в базе данных используют файл утверждённого формата.

Подготовка образцов к облучению. Следующий этап анализа – подготовка образцов к облучению. Как правило, каждый образец очищают от посторонних примесей, сушат до постоянного веса и перемалывают. Из общего количества отбирают и взвешивают две пробы. Одну из них используют для

определения КЖИ, вторую – ДЖИ. Информацию обо всех проведённых процедурах пробоподготовки сохраняют в базе данных. Важный этап пробоподготовки – взвешивание анализируемых образцов, стандартных образцов и мониторов потока. В рамках комплекса методов используют аналитические весы с возможностью программного считывания измеренных величин и автоматически создают так называемый весовой файл. Весовой файл предназначен для сохранения в базе данных. В будущем предполагается обеспечение возможности сохранения измеренных значений непосредственно в базе данных, минуя промежуточный весовой файл.

Фиксируют также и параметры окружающей среды (температуру и влажность) при проведении пробоподготовки.

Облучение образцов. Пробы для определения КЖИ упаковывают в полиэтиленовые контейнеры, а для определения ДЖИ – в алюминиевые. Информацию об облучениях – так называемые журналы облучений КЖИ и ДЖИ, включающую в сумме более пятидесяти параметров, сохраняют в базе данных. При составлении журналов КЖИ и ДЖИ используют программные возможности, позволяющие ускорить ввод информации, исключить ввод некорректной информации, проконтролировать целостность вводимой информации и максимально удобно ее визуализировать. Информацию об облучении стандартных образцов и мониторов потока также сохраняют в базе данных. Для стандартных образцов применяют контроль кратности использования. Допускают использование каждого стандартного образца при определении КЖИ не более десяти раз.

Измерения спектров наведённой активности производят автоматически с использованием трёх одновременно работающих УСО ёмкостью 45 контейнеров каждое, обслуживающих три HPGe детектора. Файлы со списками образцов для измерений создают автоматически программными средствами. Перед началом измерений экспериментатор размещает контейнеры с образцами на УСО в соответствии со списками из файлов. Необходимую для обработки спектров информацию, сохранённую в базе данных на предыдущих этапах

анализа, и необходимые калибровки считывают из базы данных и соответствующих файлов и записывают в файл со спектром автоматически. Во время измерений автоматически визуализируют окно спектрометрической программы «Genie-2000». Зоны интересов (графические границы пиков) в окне программы «Genie-2000» отображают автоматически в зависимости от выбранного типа измерений. По окончании измерений номера файлов со спектрами и дату измерений записывают в соответствующий журнал базы данных автоматически. На следующем шаге обеспечивают автоматическую смену образцов на трёх детекторах с использованием трёх УСО. Процесс измерения спектров циклически повторяют необходимое количество раз.

Комплекс методов предусматривает измерение спектров в **полуавтоматическом** режиме. Выбирают одно из шести типов измерений. Измерение спектров в этом режиме аналогично описанному выше, за исключением смены образцов, которую экспериментатор осуществляет вручную.

В будущем развитие комплекса методов предполагает реализацию возможности автоматического подбора высоты образца над детектором в зависимости от предварительно измеренного мёртвого времени. Программные возможности предусматривают увеличение количества детекторов и УСО в соответствии с необходимостью.

Обработку спектров наведённой активности осуществляют в два этапа. На первом этапе вычисляют активности изотопов с использованием программы «Genie-2000». Последовательность действий описана в разделе 1.2. На втором этапе вычисляют концентрации элементов и подготавливают итоговые таблицы результатов, для чего применяют программное средство автоматизации. Программное средство для автоматизации количественного определения содержания элементов в образцах предусматривает широкое использование групповой обработки файлов. При вычислениях учитывают разницу в потоках нейтронов при облучении образцов и стандартов в разное время и/или в разных местах канала облучения. Особенностью программного средства является

использование метода группового стандарта (раздел 1.1.2.4), позволяющего повысить точность и радикально сократить количество вычислений. Программные возможности позволяют максимально облегчить создание группового стандарта путём упорядочивания одинаковых нуклидов из разных стандартов в порядке возрастания среднеквадратичной погрешности. Проводят контроль правильности создания группового стандарта. Также проводят контроль правильности расчетов концентраций элементов с помощью создания промежуточной таблицы результатов. Для этого в промежуточной таблице сравнивают концентрации одних и тех же элементов, полученные по данным разных измерений. Как правило, в образцах одного типа наблюдают корреляционную зависимость концентраций некоторых элементов друг от друга. С этой целью строят графики линейной регрессии с коэффициентами корреляции. Эти зависимости проверяют для того, чтобы обнаружить грубые ошибки. При нахождении ошибок повторяют процесс обработки спектрометрической информации на предыдущих этапах (вычисление активностей или создание группового стандарта). При отсутствии ошибок создают окончательную сводную таблицу концентраций элементов, найденных в образце. В окончательную таблицу включают концентрации элементов из измерений, предоставляющих наиболее достоверные данные. Помимо значений концентраций элементов, в окончательной таблице предусмотрено построение корреляционной матрицы. Программные возможности обеспечивают сохранение обеих таблиц концентраций в формате файлов электронных таблиц MS Excel.

Результаты анализа (около 200 параметров для каждого образца) сохраняют в базе данных автоматически. Эти результаты доступны для сортировки, сохранения в формате файлов электронных таблиц MS Excel и последующего анализа.

Дополнительные возможности. В рамках комплекса методов предусмотрено использование компьютерных средств для подбора подходящих стандартных образцов на основе списка необходимых элементов и требуемого

значения погрешности; для создания журнала измерений с целью поиска нужных спектров и выявления ошибочных спектров; для автоматического запуска актуальных версий программных средств автоматизации НАА; для организации электронного документооборота и др.

2. Автоматизированный комплекс

Реализация комплекса методов автоматизации привела к созданию аппаратурно-программного комплекса, который включает:

- автоматическую систему измерения спектров наведённой активности для проведения массового многоэлементного НАА образцов на основе трёх одновременно используемых оригинальных УСО и универсального программного обеспечения для автоматического управления, контроля и оптимизации процесса измерения спектров;
- базу данных НАА;
- а также аппаратурно-программное и программное обеспечение для получения, передачи, обработки, учёта и анализа аналитической информации обо всех этапах НАА.

2.1. Автоматическая система измерения спектров наведённой активности с использованием устройств смены образцов

Автоматическая система измерения спектров наведённой активности, работающая с одновременным использованием трёх оригинальных устройств смены образцов, обслуживающих три высокочистых германиевых детектора соответственно, была впервые создана и введена в эксплуатацию для массового многоэлементного НАА в ЛНФ ОИЯИ [11, 12]. Система может быть задействована и для большего числа детекторов.

Схема автоматической системы измерения спектров с используемыми аппаратурными и программными средствами показана на рис. 2.

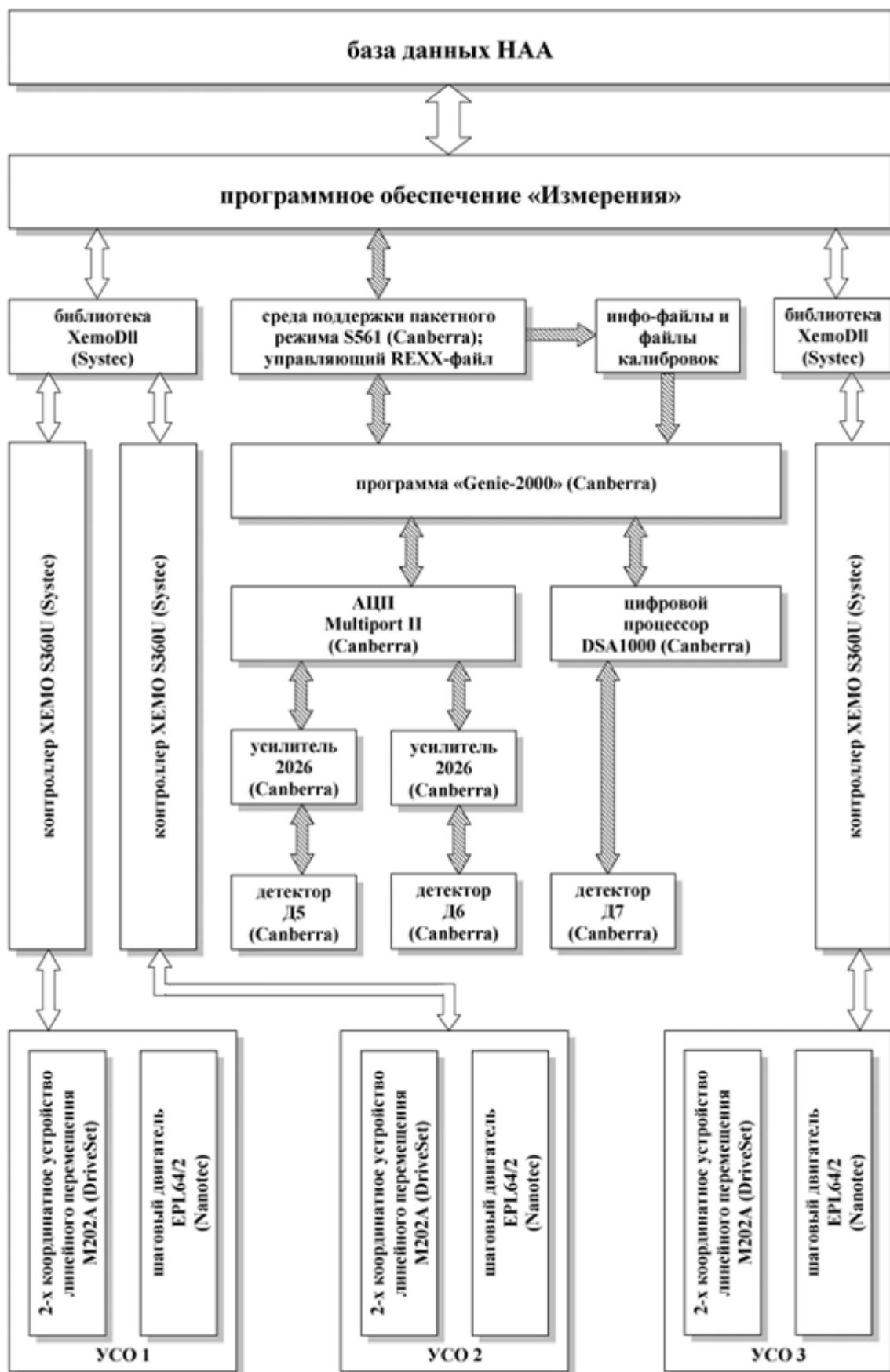


Рисунок 2. Схема автоматической системы измерения спектров

На рис. 3 показан схематический чертёж УСО.

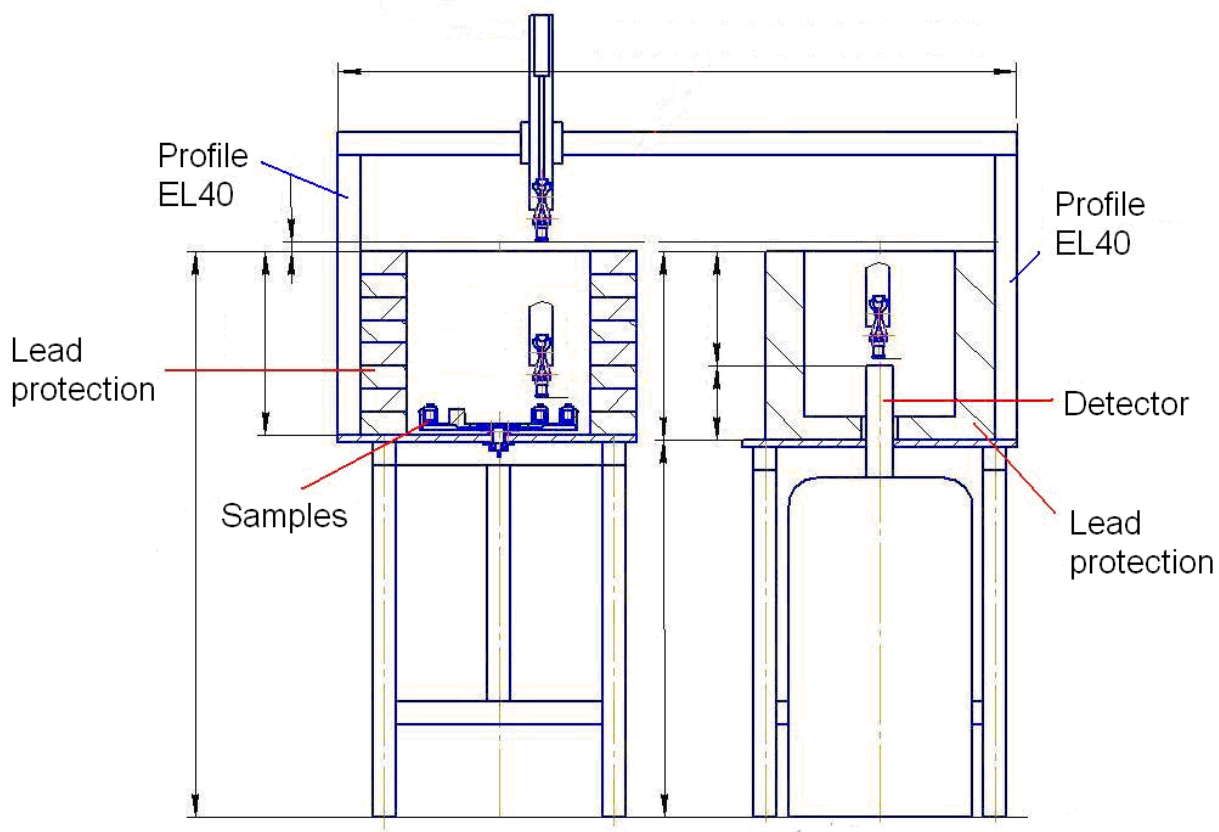


Рисунок 3. Схематический чертёж УСО

Каждое УСО состоит из двух-координатного модуля линейного перемещения и диска с 45-ю ячейками для контейнеров с образцами (рис. 4, 5).



Рисунок 4. Общий вид устройств автоматической смены образцов



Рисунок 5. Общий вид устройства автоматической смены образцов

Модуль линейного перемещения закреплён с помощью алюминиевых профилей над двумя металлическими столами с регулируемыми по высоте опорами. На одном из столов установлен вращающийся диск с образцами (рис. б), под другим – сосуд Дьюара с детектором.



Рисунок 6. Диск для размещения образцов и датчик первой ячейки

Головка детектора проходит через отверстие в столешнице и находится выше поверхности стола. На поверхностях обеих столов размещены колодцы из свинцовых блоков, предназначенные для обеспечения биологической защиты.

Диск с образцами приводят во вращение шаговым двигателем. С одной стороны от двигателя вал, закрепленный в подшипнике, связан с валом диска с помощью переходной муфты. С другой стороны на нём установлен инкрементный энкодер, с помощью которого контролируют выбор ячейки с образцом. Начальную ячейку диска фиксируют с помощью электромагнитного датчика.

Перемещение контейнеров от диска к детектору и обратно по горизонтальной и вертикальной осям осуществляют с помощью модуля линейного перемещения. Каждая ось изготовлена из высокопрочного

алюминиевого профиля со встроенными закалёнными стальными стержнями. По профилям движется каретка с прецизионными направляющими роликами. Каретку перемещают с помощью винтов с трапецеидальной резьбой. Винт приводят во вращение шаговым двигателем. Благодаря самоторможению трапецеидальной резьбы отсутствует необходимость в тормозе, удерживающем каретку от произвольного перемещения по вертикальной оси. Каждая ось линейного перемещения снабжена инкрементным энкодером, позволяющим определять положение каретки, а также двумя концевыми и одним референсным датчиками. Концевые датчики исключают возможность поломки устройства при перемещении подвижных деталей модуля за физические границы осей, референсный датчик позволяет задать начальное положение каретки. Точность позиционирования может достигать 0,1 мм. Максимальная скорость перемещения по обеим осям – до 0,08 м/сек, ускорение до 1 м/сек². Максимальная нагрузка – 1кг. Максимальное перемещение по вертикали для данного модуля равно 400мм, по горизонтали – 800мм. Жгуты проводов помещены в подвижные кабельные каналы.

Захват контейнеров осуществляют с помощью пружинного механического приспособления (рис. 7).



Рисунок 7. Приспособление для захвата контейнеров

Вилка захвата удерживает контейнер с помощью выступа на его крышке.

Обмен информацией между управляющим программным обеспечением «Измерения» и модулями линейного перемещения и/или электродвигателями

диска с образцами осуществляют с помощью контроллеров. Подробное описание программного обеспечения приведено ниже.

Контейнер, выбранный из диска с образцами, перемещают к детектору и удерживают над ним в течение времени измерения спектра. Измерения спектров производят на одной из четырёх фиксированных высот положения контейнера над детектором, для которых измерены кривые эффективности детекторов. Контроль положения контейнера при измерении спектра производят с помощью инкрементных энкодеров. После окончания измерения контейнер возвращают в ту же ячейку диска. Затем диск с образцами поворачивают для выбора следующего образца.

При одновременной работе трёх УСО общее число автоматически измеряемых образцов составляет 135 штук. Таким образом, разработанная автоматическая система позволяет осуществлять долговременные сеансы рутинных массовых измерений спектров наведённой активности при минимальном участии персонала и создает условия проведения многоэлементного анализа больших партий образцов. При этом обеспечивают уменьшение вероятности субъективных ошибок.

Управляющее программное обеспечение «Измерения» предназначено для автоматизации процесса измерений спектров наведённой активности посредством:

- одновременного комплексного управления тремя УСО с использованием контроллеров, а также программой накопления спектров «Genie-2000» и соответствующей спектрометрической аппаратурой, связанной с тремя полупроводниковыми детекторами;
- обмена информацией с базой данных НАА.

Программное обеспечение «Измерения» взаимодействует с детекторами гамма-излучения с помощью динамически создаваемой REXX-программы, работающей в среде поддержки пакетного режима S561 для «Genie-2000». Для управления контроллерами УСО программное обеспечение «Измерения» использует библиотеку XemoDll. Программа «Измерения» имеет два режима –

полностью автоматический с использованием УСО и полуавтоматический, в котором осуществляют ручную смену контейнеров с образцами. Программа «Измерения» позволяет минимизировать участие человека в рутинных долговременных измерениях спектров наведённой активности.

Для перехода в **автоматический режим** экспериментатор должен отключить режим «без УСО» в группе элементов «режим работы». В результате окно программы «Измерения» примет вид, показанный на рис. 8.

Далее в группе элементов «тип измерений» экспериментатор должен выбрать тип измерений: ДЖИ-1 или ДЖИ-2. После запуска процесса измерения спектров данные о типе измерений будут автоматически записаны в файл спектра.

Выбор типа измерений приводит к заполнению группы элементов «время измерений». В этой группе автоматически предлагают типичное время измерений. Значения типичных интервалов времени измерений сведены в таблицу 1:

Таблица 1. Типичное время измерений.

	КЖИ-1	КЖИ-2	ДЖИ-1	ДЖИ-2
типичное время измерений, мин.	3	15	30	90

В случае необходимости экспериментатор может ввести любое значение времени измерения взамен предложенного.

На следующем этапе в группе элементов «детекторы» экспериментатор выбирает детекторы для измерений.

Как только выбор в группах элементов «тип измерений» и «детекторы» совершён, в группе элементов «свободные файлы» автоматически записывают незанятые номера файлов. Экспериментатор может согласиться с предложенными номерами или ввести необходимые номера.

Далее экспериментатор должен указать номер бумажного журнала с дублирующей информацией, а также в выпадающем списке выбрать свою фамилию. После запуска процесса измерения спектров данные о дублирующем

бумажном журнале и экспериментаторе будут автоматически записаны в файл спектра.

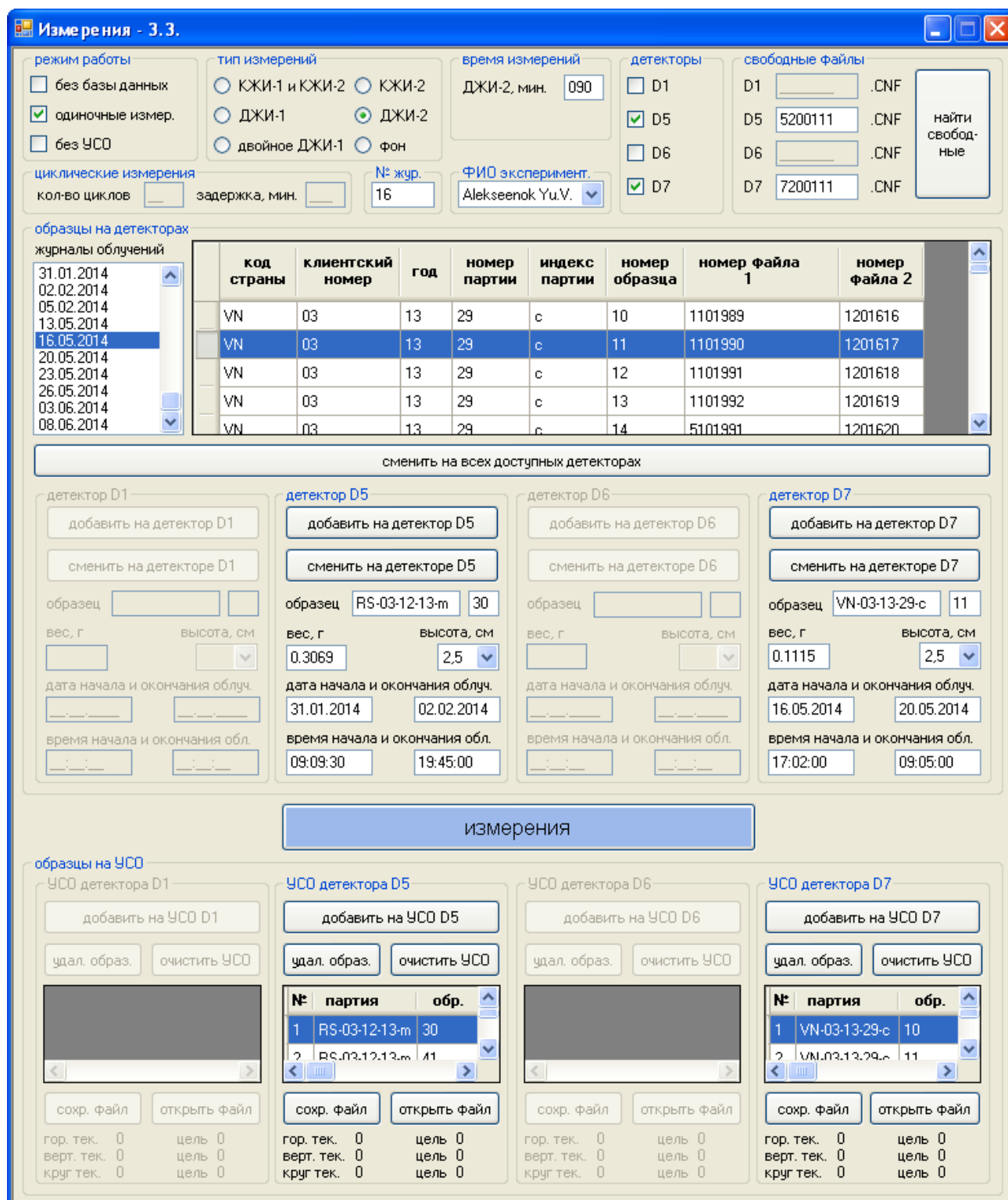


Рисунок 8. Программа «Измерения». Автоматический режим

Затем необходимо указать путь к ранее созданным файлам со списками измеряемых образцов (см. соответствующий параграф о журнале ДЖИ в

разделе 2.2.3.1) или составить эти списки, используя программные возможности. Также необходимо убедиться в наличии измеряемых образцов на дисках УСО и соответствии образцов составленным спискам. После нажатия кнопки «измерения» последовательно производят:

- автоматическую установку образцов в выбранные позиции по высоте над детектором;
- измерение спектров наведённой активности;
- считывание из базы данных НАА, из полей программы и соответствующих калибровочных файлов и запись в спектры аналитической информации, а именно: кода партии и номера измеряемого образца; типа измерений; дат и времени начала и окончания облучения; веса образца и единицы измерения веса; высоты образца над детектором; номера бумажного журнала; фамилии экспериментатора; калибровки по энергии и калибровки по эффективности для выбранной позиции образца над детектором;
- сохранение спектров на диске компьютера;
- сохранение номеров файлов измеренных спектров и другой информации в базе данных НАА;
- автоматическую смену образцов.

При этом экспериментатор избавлен от необходимости ручного ввода многочисленной информации, без которой невозможна дальнейшая обработка измеренного спектра наведённой активности.

Во время работы программа «Измерения» создаёт программу M.REX, которая выполняется в среде поддержки пакетного режима S561 для «Genie-2000». Программа M.REX последовательно для каждого детектора запускает измерения, автоматически визуализирует окно программы «GENIE-2000», которое отображает спектр, регистрируемый одним из детекторов. Просмотреть другой спектр в случае измерений на нескольких детекторах можно в этом же окне, нажав кнопку «Предыдущий» или «Следующий». Аналитические данные об измеряемых образцах автоматически попадают в окно «Информация об

образце» и другие окна программы «Genie-2000» и, соответственно, в файл со спектром.

В зависимости от номера детектора, используемого для измерений, программа M.REX автоматически находит необходимый файл с данными калибровки по энергии и файл калибровки по эффективности для выбранной позиции образца над детектором и сохраняет данные калибровок в спектр. Для удобства визуализации информации, в зависимости от типа измерений, программа также автоматически находит файл с зонами интересов и отображает эти зоны в окне программы «Genie-2000». Зоны интересов представляют собой графические границы пиков.

По окончании установленного времени измерений на каждом из детекторов раздаётся звуковой сигнал. Когда заканчиваются измерения на всех выбранных детекторах, спектры автоматически записывают на диск с именами, указанными при запуске программы.

После завершения работы программа M.REX передаёт управление программе «Измерения». Программа «Измерения» автоматически записывает номера файлов со спектрами и сопутствующую информацию (дата измерений, фамилия экспериментатора) в соответствующий журнал измерений в базе данных НАА, осуществляет управление автоматической сменой образцов на всех выбранных детекторах, а затем подготавливает и запускает следующий цикл измерений. Процесс измерений повторяют необходимое число раз.

В следующую версию программы «Измерения» планируется включить возможность автоматического подбора высоты образца над детектором в зависимости от измеренного мёртвого времени.

Для включения **полуавтоматического режима** экспериментатор должен выделить элемент «без УСО» в группе элементов «режим работы». В результате этого действия окно программы примет вид, показанный на рисунке 9.

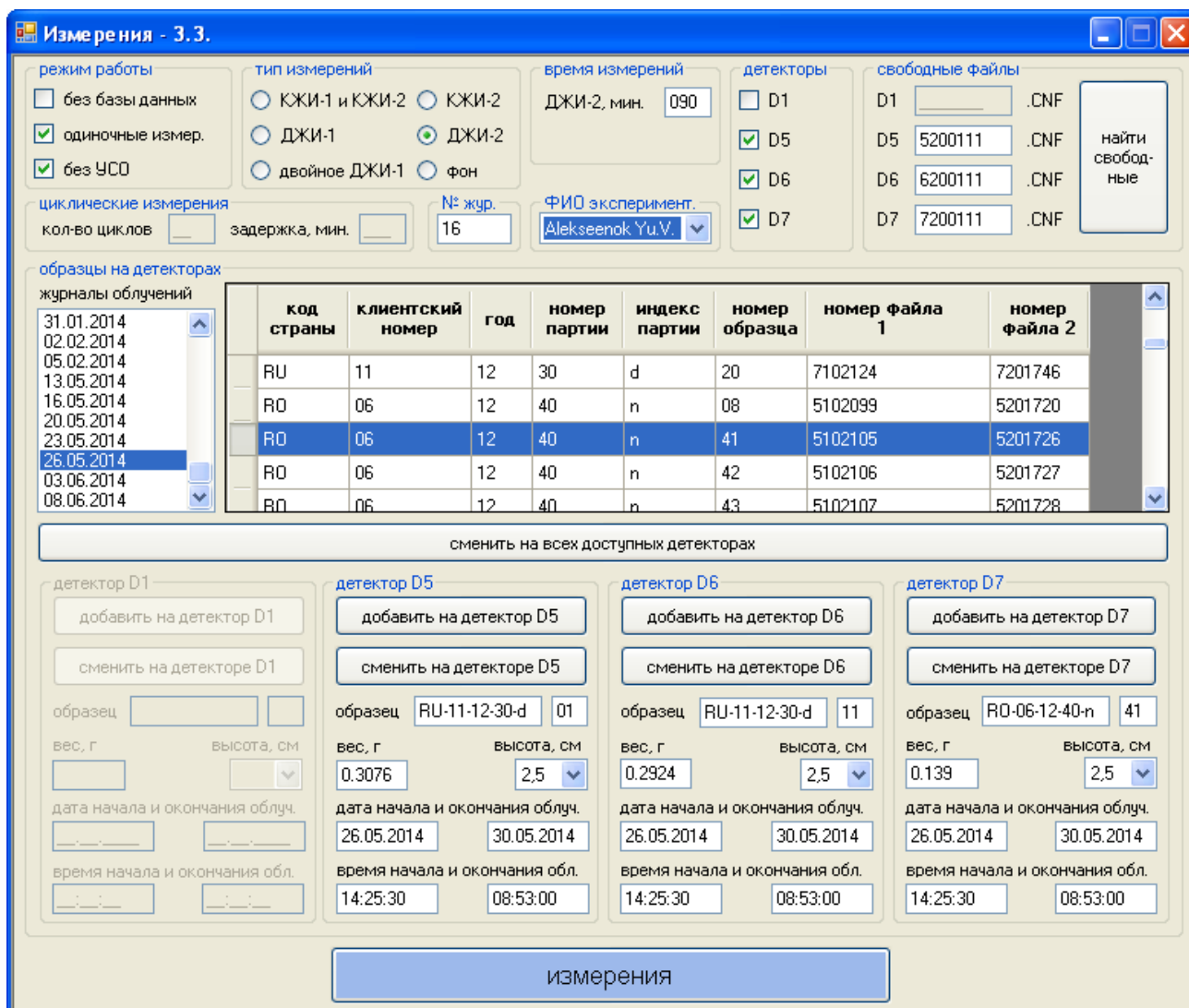


Рисунок 9. Программа «Измерения». Полуавтоматический режим

Работа с программой в полуавтоматическом режиме аналогична описанной выше работе в автоматическом режиме до этапа выбора файлов со списками образцов для УСО. Вместо этого экспериментатор должен конкретизировать информацию об образцах, стандартных образцах и мониторах, спектры которых необходимо измерить. Выбор типа измерений приводит к считыванию информации из базы данных и автоматическому заполнению списка журналов облучений в группе элементов «образцы на детекторах». Экспериментатор должен выбрать журнал, в котором находится запись об измеряемом образце. Выбор журнала приводит к его визуализации в соответствующей таблице. В открывшемся журнале облучений экспериментатор должен отметить образец, стандартный образец или монитор, размещённый на одном из детекторов. При

нажатии кнопки «добавить на детектор» всю необходимую информацию о выбранном образце (вес, дата и время начала и окончания облучения) считывают из базы данных и записывают в соответствующие информационные поля. После запуска процесса измерения спектров данные из полей программы автоматически попадут в файл спектра. Описанные выше действия необходимо повторить для всех используемых детекторов.

Далее экспериментатор указывает значения высот выбранных образцов над детекторами. После запуска процесса измерения спектров данные о высотах образцов над детекторами и данные соответствующих калибровочных файлов также автоматически попадут в файл спектра.

Следующий шаг – запуск процесса измерений. Перед нажатием кнопки «измерения» экспериментатор должен установить образцы на все выбранные детекторы.

Дальнейшие шаги аналогичны описанным выше, за исключением смены образцов, осуществляемой в полуавтоматическом режиме вручную.

Измерения для всех детекторов или для любого из них можно остановить раньше заданного времени.

Перед началом следующего цикла измерений экспериментатор должен конкретизировать информацию об очередных образцах. Если это следующие по порядковому номеру образцы из партий, достаточно нажать кнопку «сменить на всех доступных детекторах» или кнопки «сменить на детекторе». Программа автоматически считывает из базы данных сведения о следующих по порядку образцах, заполняет соответствующие информационные поля, а также предлагает следующие свободные номера файлов для всех задействованных детекторов. Перед повторным нажатием кнопки «измерения» для запуска нового цикла экспериментатор должен установить образцы на все выбранные детекторы.

Помимо описанных выше измерений, программу «Измерения» используют для проведения фоновых и циклических измерений.

2.2. Автоматизация на основе программного обеспечения

Схема программного обеспечения для автоматизации НАА в ЛНФ ОИЯИ [9, 10] показана на рисунке 10.

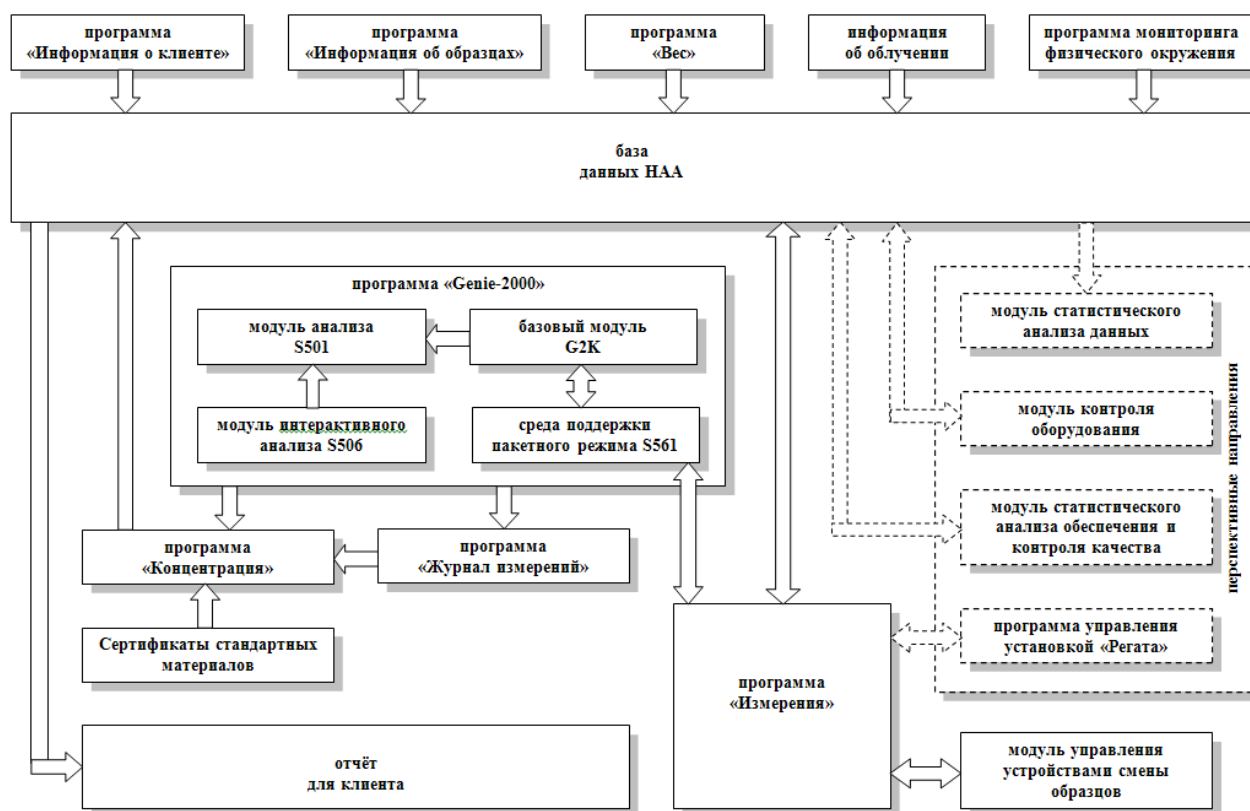


Рисунок 10. Схема программного обеспечения для автоматизации НАА в ЛНФ ОИЯИ

Прямоугольниками из сплошных линий отмечены уже существующие программные средства. Прямоугольниками из прерывистых линий – программные средства и, в соответствующих случаях, аппаратные средства, которые планируется создать.

2.2.1. Параметры программ автоматизации

Параметры разработанных программ автоматизации НАА сведены в таблицу 2.

Таблица 2. Параметры программ

	«Измерения»	«Концентрация»	«Информация о клиенте»	«Информация об образцах»	«Поиск стандартов»	«Вес»	«Журнал измерений»	«Среда НАА»
Среда программирования	Visual Basic и REXX	Visual Basic	Delphi	Delphi	Visual Basic	Delphi	Visual Basic и REXX	Visual Basic
необходимость установки	MS.NET Framework, «Genie-2000», S561 для «Genie-2000», библиотека XemoDll	MS.NET Framework	нет	нет	MS.NET Framework	нет	MS.NET Framework, «Genie-2000» и S561 для «Genie-2000»	MS.NET Framework
возможность скачивания в сети	нет	нет	да	да	нет	нет	нет	нет
языки интерфейса	английский, русский	английский, русский	английский, русский	английский, русский	русский	русский	русский	русский
тип создаваемого файла	бинарный	MS Excel	текстовый	текстовый	MS Excel	текстовый	текстовый	—
расширение файла	CNF	XLSX	TXT	NAS	XLSX	VES	TXT	—
возможность редактирования файла	нет	нет	да	да	нет	да	нет	—
возможность занесения содержимого файла в базу данных	да, после расчёта концентраций	да	да	да	нет	да	нет	—

2.2.2. Автоматизация количественного определения содержания элементов в образцах. Программа «Концентрация»

Программа «Концентрация» (рис. 11) предназначена для количественного определения содержания элементов в образцах относительным методом НАА с использованием группового стандарта.

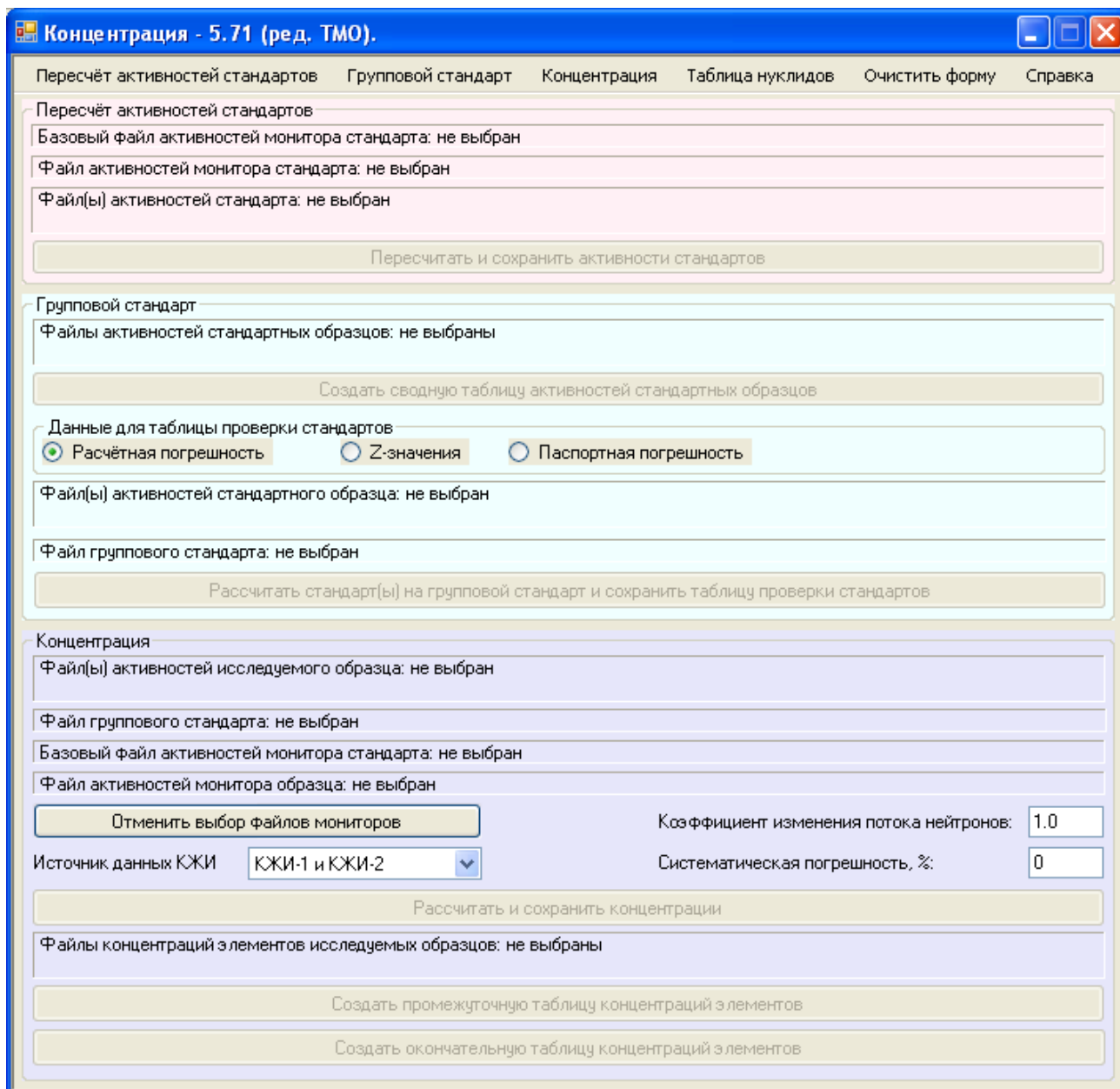


Рисунок 11. Главное окно программы «Концентрация»

Конечный результат НАА – концентрацию элементов в образце – рассчитывают путём пропорционального сравнения активностей одинаковых изотопов в образце и в групповом стандарте, а также известных концентраций элементов в групповом стандарте. Программа позволяет провести анализ

полученных результатов для выявления возможных случайных ошибок. Программой предусмотрено широкое использование групповой обработки файлов.

Количественное определение содержания элементов в образцах включает три основных этапа:

- пересчёт активностей стандартов. На данном этапе пересчитывают значения активностей изотопов в стандартных образцах, облучавшихся в разное время и/или в разных местах канала облучения, к единой величине потока нейтронов, принятой за базовую;
- составление группового стандарта и его проверка. Этот этап предназначен для создания группового стандартного образца из нескольких стандартных образцов и его последующей проверки. Созданный групповой стандарт считают правильным, если рассчитанные при проверке значения концентраций элементов (формула 7) с погрешностью $\pm 2\sigma_{C_{ГРСрасч}}$ (формула 8) совпадают с паспортными значениями. Полученный групповой стандарт затем используют для расчета концентраций элементов в образцах;
- вычисление концентраций и составление промежуточной и окончательной таблиц результатов. На этом этапе рассчитывают концентрации элементов в исследуемых образцах с учетом флуктуаций потока нейтронов для образцов, облучённых в разное время и/или в разных местах канала облучения, а также создают сводные таблицы результатов для образцов исследуемой партии.

Схема работы программы показана на рисунке 12.

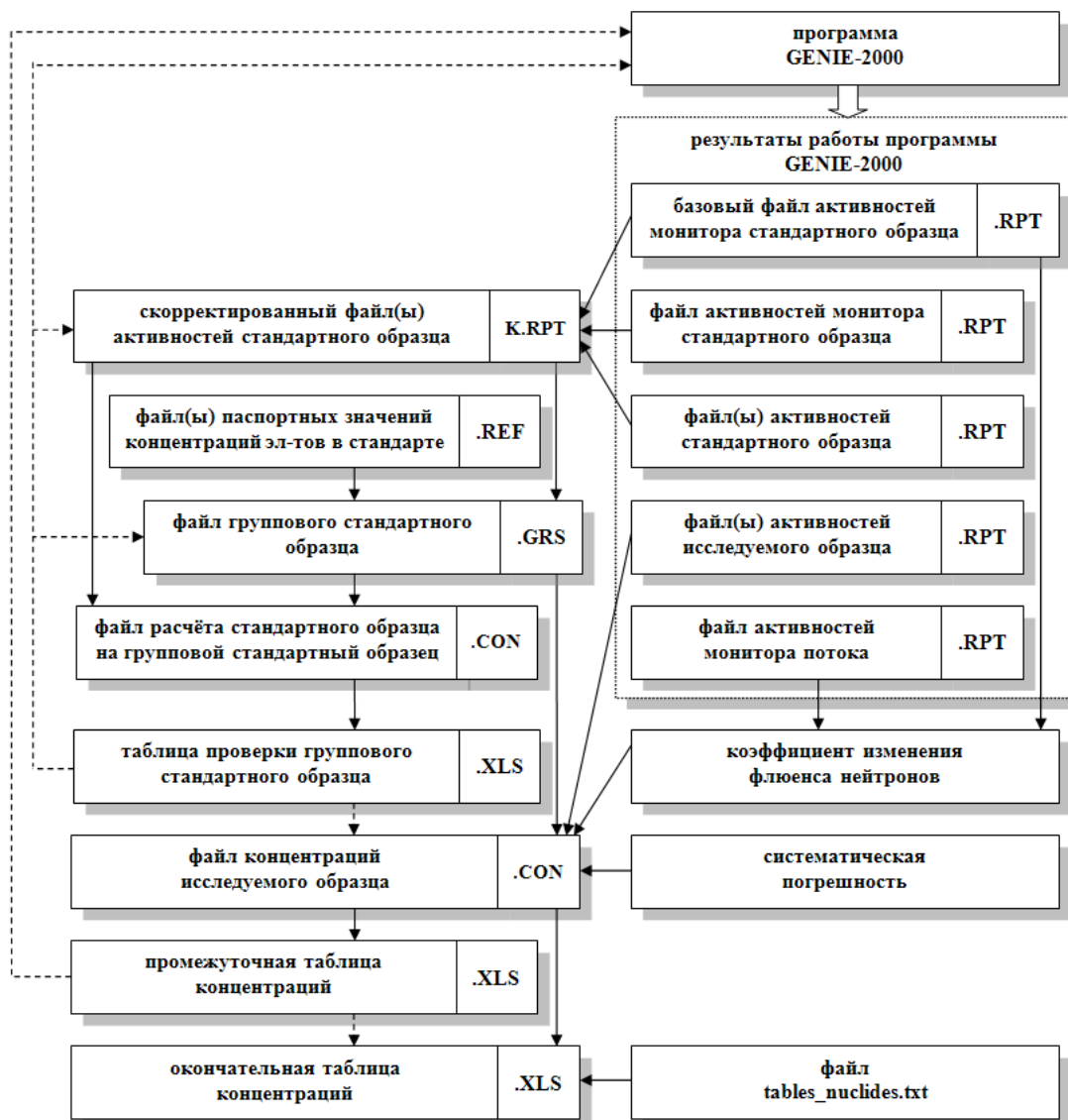


Рисунок 12. Схема работы программы «Концентрация»

На рис. 12 представлены названия используемых файлов и их расширения. В прямоугольнике из точечной линии объединены названия файлов, которые являются результатом работы программы «Genie-2000». Прерывистыми линиями со стрелками на схеме показаны пути возможного возврата к предыдущим шагам для повторной обработки данных при обнаружении ошибок.

В программе «Концентрация» реализованы возможности коррекции активностей стандартных образцов; создания и проверки правильности создания группового стандартного образца, подробно описанные в методическом разделе 1.1.2.4 данной работы; а также расчёта концентраций

элементов в образцах относительным методом с использованием группового стандарта (разделы 1.1.2.3 и 1.2).

Программные возможности позволяют максимально облегчить создание группового стандарта путём автоматического формирования упорядоченной сводной таблицы нуклидов. Для этого используют так называемый «Редактор ГРС (группового стандарта)» (рис. 13). В окне редактора ГРС одинаковые нуклиды из разных стандартов выделены одним цветом и отсортированы в порядке возрастания среднеквадратичной погрешности (формула 6). Экспериментатор, как правило, оставляет для каждого нуклида строку с наименьшей среднеквадратичной погрешностью, а все остальные удаляет. В редких случаях возникает ситуация, когда сильно различаются значения концентрации нуклида, а погрешности практически одинаковые. В этом случае оставляют нуклид с большей концентрацией.

Имя образца	Нуклид	Достоверность идентификации	Средне-взвешенная активность, uCi/gram	Погрешность, %	Паспортная концентрация, ugram/gram	паспортная погрешность, %	Средне-квадратичная погрешность, %
2709	BA-131	0.973	9.24E+00	1.88	9.68E+02	4.10	4.51
1632c	BA-131	0.975	4.33E-01	3.32	4.11E+01	3.90	5.12
433	BA-131	0.978	2.87E+00	2.31	2.68E+02	7.10	7.47
1632c	CE-141	0.996	3.48E-01	3.71	1.19E+01	1.70	4.08
433	CE-141	0.996	1.74E+00	1.65	6.45E+01	30.00	30.05
2709	CE-141	0.996	1.12E+00	3.49	4.20E+01	30.00	30.20
433	CO-58	0.999	7.20E-01	4.01	3.94E+01	1.00	4.13
2709	CO-58	0.997	1.32E+00	2.64	8.80E+01	5.70	6.28
1632c	CO-58	0.999	1.94E-01	7.68	9.32E+00	5.50	9.45
433	CO-60	0.999	1.13E+02	0.92	1.29E+01	1.20	1.51
2709	CO-60	1.000	1.04E+02	1.02	1.34E+01	5.20	5.30
1632c	CO-60	0.999	3.20E+01	1.60	3.48E+00	5.70	5.92
433	CR-51	0.977	6.39E+00	3.87	1.36E+02	1.00	3.99
2709	CR-51	0.971	5.56E+00	5.07	1.30E+02	3.10	5.94
1632c	CR-51	0.974	7.25E-01	7.56	1.37E+01	1.50	7.71
1632c	CS-134	0.925	1.36E+01	2.00	5.94E-01	1.70	2.62
433	CS-134	0.988	1.40E+02	0.80	6.40E+00	4.10	4.18
2709	CS-134	0.923	1.09E+02	0.59	5.30E+00	30.00	30.01
1632c	FU-152	0.993	1.53E+01	16.37	1.24E-01	2.70	16.59

Рисунок 13. Окно редактора ГРС

После расчета концентраций элементов для всех образцов данной партии автоматически составляют промежуточную и окончательную таблицу результатов.

В промежуточной таблице приводят имена образцов, имена файлов с результатами и концентрации элементов в мкг/г с их погрешностями. На каждый нуклид отводят четыре комплекта столбцов: два – для результатов расчета короткоживущих изотопов (КЖИ-1, КЖИ-2) и два – для результатов расчета долгоживущих изотопов (ДЖИ-1, ДЖИ-2). Концентрации некоторых элементов рассчитывают из разных измерений. Сравнение полученных значений показывает, есть ли в рассчитанных результатах грубые ошибки. Автоматически строят графики линейной регрессии с коэффициентами корреляции.

Окончательную таблицу создают на основе так называемой «таблицы нуклидов». Таблица нуклидов содержит список всех определяемых нуклидов и тип файлов измерений, которые используют для определения нуклидов. Т.к. нуклиды могут быть определены по данным разных измерений, в таблице перечислены типы измерений, обеспечивающие наиболее качественное определение (меньшая погрешность, большая чувствительность). В соответствии с данными окончательной таблицы автоматически строят два графика линейной регрессии с коэффициентами корреляции.

Для построения графиков линейной регрессии в окончательной и промежуточной таблицах используют зависимость (12) [56]:

$$y = a + b \cdot x, \quad (12)$$

$$\text{где } b = \frac{\sum_{k=1}^n (x_k - \bar{x}) \cdot (y_k - \bar{y})}{\sum_{k=1}^n (x_k - \bar{x})^2},$$

$$a = \bar{y} - b \cdot \bar{x},$$

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{k=1}^n x_k,$$

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \cdot \sum_{k=1}^n y_k.$$

Коэффициент корреляции R_{yx} рассчитывают по формуле 13:

$$R_{yx} = \frac{\sum_{k=1}^n (x_k - \bar{x}) \cdot (y_k - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{k=1}^n (x_k - \bar{x})^2 \cdot \sum_{k=1}^n (y_k - \bar{y})^2}} \quad (13)$$

Окна первых графиков в обеих таблицах интерактивные. В этих окнах возможно построить нужный корреляционный график. Обе таблицы доступны для сохранения в виде файлов электронных таблиц MS Excel (рис. 14 и 15).

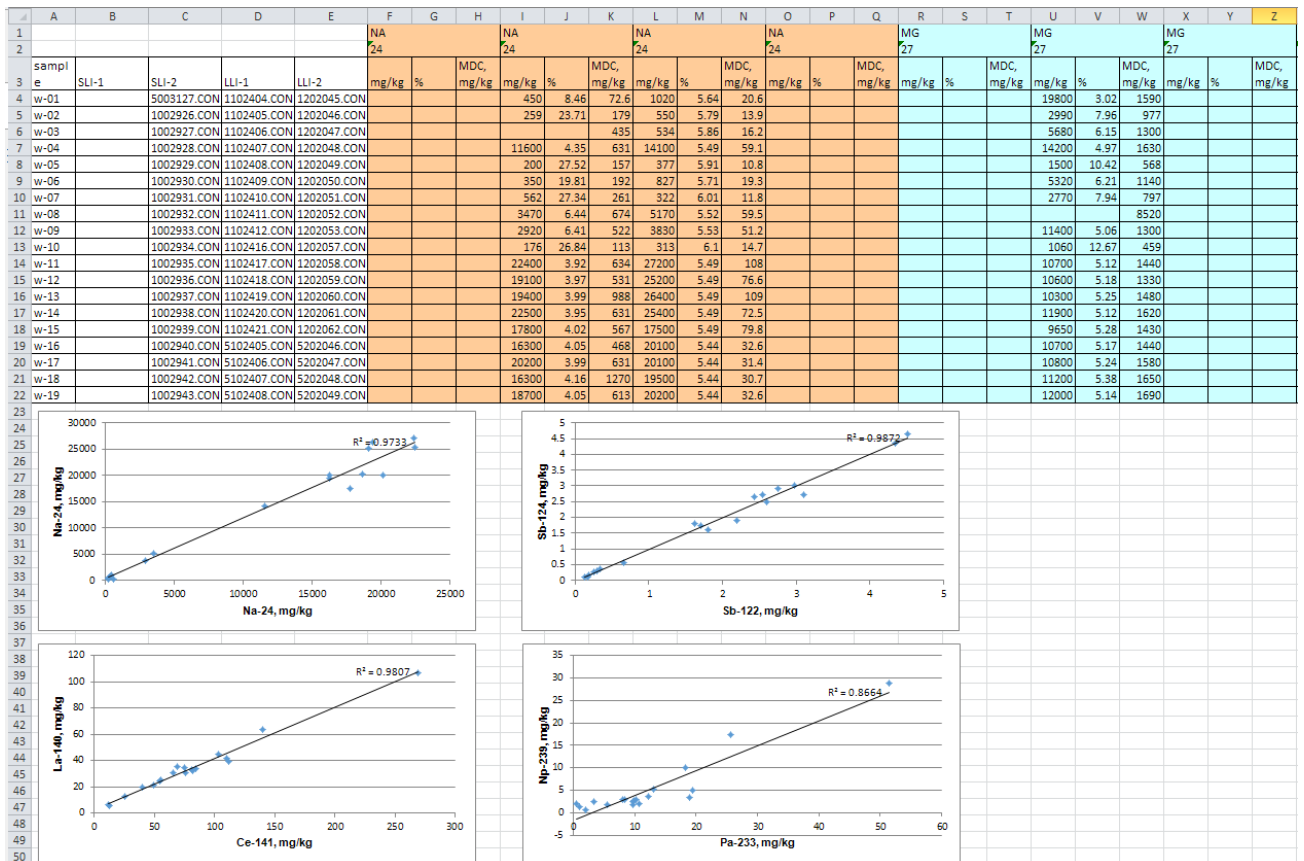


Рисунок 14. Промежуточная таблица концентраций

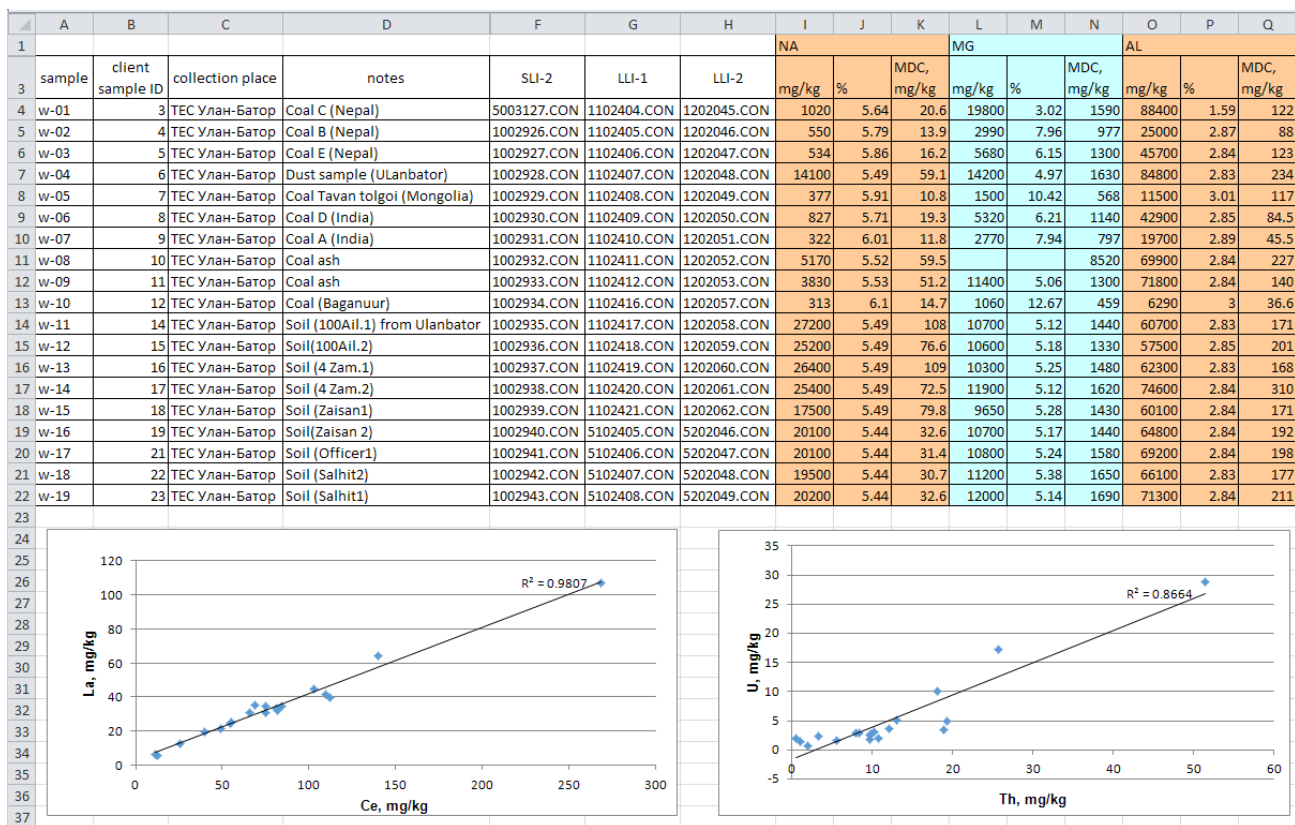


Рисунок 15. Окончательная таблица концентраций

Программа позволяет сохранить в файлах как табличную, так и графическую информацию. Кроме этого, в файле с окончательной таблицей автоматически строят корреляционную матрицу, в которой красным цветом выделяют ячейки со значениями $>0,7$. Таким образом, в программу включены элементы предварительной статистической обработки полученных результатов.

2.2.3. Менеджмент проведения массового многоэлементного НАА.

База данных НАА

Реализация комплекса методов в области менеджмента организации и управления процессом проведения массового многоэлементного анализа образцов различной природы и происхождения привела к созданию базы данных НАА. В работе нового аппаратурно-программного комплекса оригинальная база данных НАА играет основополагающую, связующую роль. Она предназначена для хранения всего спектра информации, связанной с проведением НАА в ЛНФ ОИЯИ [10].

На рисунке 16 представлена схема универсальной базы данных НАА, созданной и используемой на радиоаналитическом комплексе РЕГАТА реактора ИБР-2.

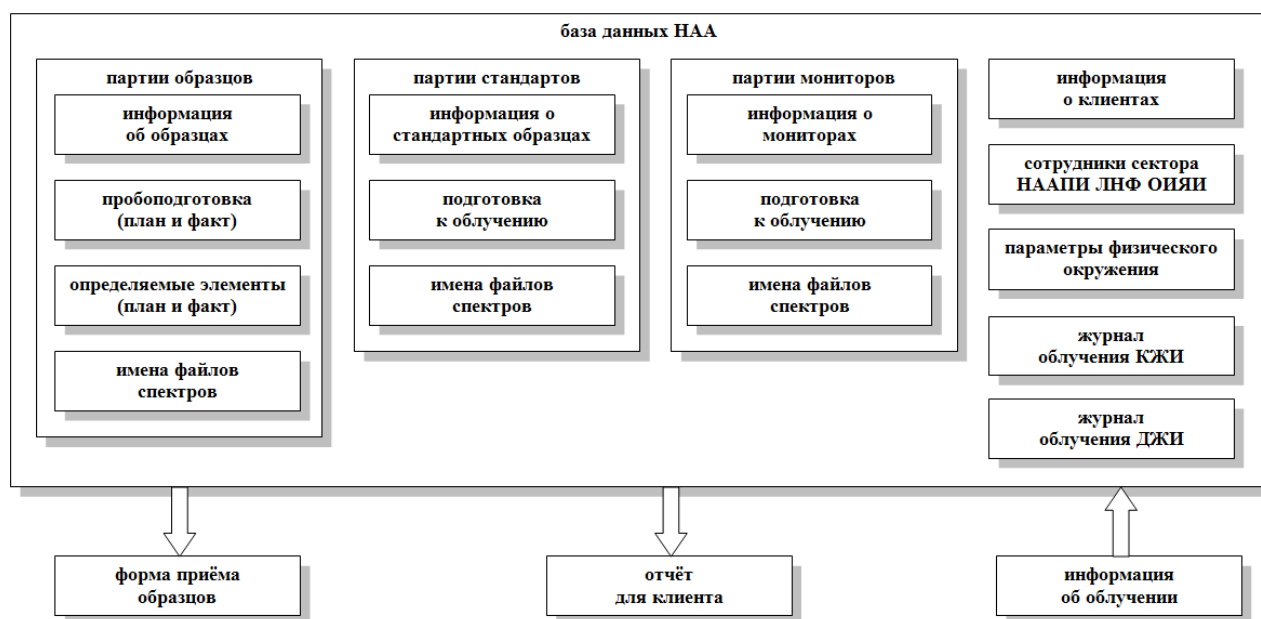


Рисунок 16. Схема базы данных НАА

Для создания базы данных НАА использовали СУБД MS SQL Server. База данных НАА содержит: информацию о клиентах, передающих образцы для проведения НАА; сведения об образцах, стандартных образцах и мониторах потока нейтронов; сведения о подготовке образцов, стандартных образцов и мониторов к облучению; журналы облучений КЖИ и ДЖИ; результаты НАА; параметры окружающей среды при проведении подготовки образцов к облучению.

База данных НАА является сетевой. Доступ к базе НАА данных возможен с любого компьютера СНААПИ. На разных этапах НАА в базу данных поступают запросы, как со стороны программного обеспечения, так и со стороны сотрудников сектора. С помощью специального интерфейса каждый сотрудник может просматривать любую информацию, хранящуюся в базе данных НАА, однако права доступа на изменение данных у всех сотрудников разные, в зависимости от выполняемых задач. Интерфейс базы данных НАА работает на двух языках – русском и английском.

Интерфейс обеспечивает как автоматический ввод информации с использованием файлов утверждённого формата, так и полуавтоматическое занесение данных. Интерфейс обеспечивает соблюдение строгих логических связей при полуавтоматическом занесении данных, что позволяет минимизировать шанс неправильного ввода. В интерфейсе реализованы средства для быстрого ввода данных, а также проверка на целостность и непротиворечивость данных.

База данных НАА с интерфейсом обеспечивает широкие возможности поиска и сортировки необходимой информации, а также анализа результатов НАА. Возможности интерфейса по сохранению результатов из базы данных в формате файлов электронных таблиц отлично подходят для пост-обработки данных с использованием MS Excel. Использование базы данных НАА позволило перейти к электронному документообороту, имеющему особенно важное значение при массовых анализах больших партий образцов. База данных способствует обеспечению достоверности и надёжности результатов НАА. СУБД обеспечивает независимое хранение всей информации об НАА на разных компьютерах.

2.2.3.1. Интерфейс базы данных НАА

Для работы с базой данных в среде Visual Basic была разработана интерфейсная программа, главное окно которой представлено на рис. 17.

В главном окне программы отображают: счётчик общего количества образцов в базе данных; список партий образцов; основные данные о клиенте, передавшем для анализа выделенную партию образцов; количество образцов и список журналов облучений для выделенной партии образцов; список партий стандартных образцов; список партий мониторов потока; списки журналов облучений КЖИ и ДЖИ и кнопки управления. В интерфейсе используют большое количество программных возможностей, позволяющих облегчить работу экспериментаторов. Например, партии образцов в списке автоматически отмечают различными цветами в зависимости от текущего этапа анализа

образцов из этой партии. Если партия образцов выделена розовым цветом, это говорит о том, что партия была только принята и никаких действий с ней не проводили. В процессе анализа цвет выделения автоматически меняют до тёмно-зелёного, это говорит о том, что результаты анализа для КЖИ и ДЖИ сохранены в базе данных. Другой пример: если в соответствующем списке выбрать фамилию сотрудника сектора, в списке партий образцов останутся только те партии, которые закреплены за выбранным сотрудником и т.п.

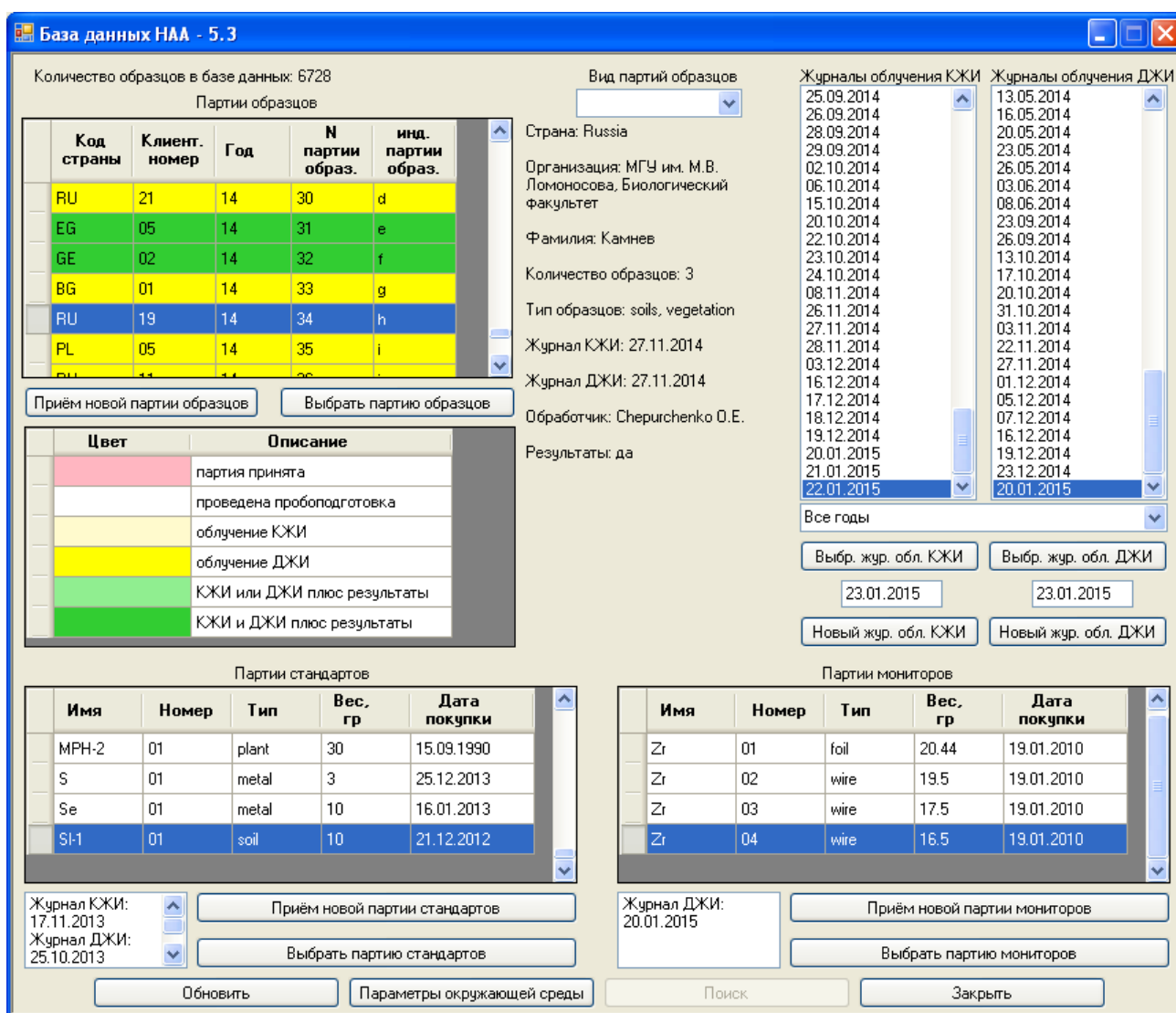


Рисунок 17. Главное окно интерфейса базы данных

Для добавления новой партии образцов используют окно «Приём новой партии образцов», показанное на рис. 18.

Приём новой партии образцов

Страна: Russia | Номер клиента: 20

Код страны: RU | Пол: m
 Индекс: 141986 | Фамилия: Mr. Вергель
 Республика: | Имя: Константин
 Область: Московская | Телефон 1: +7 496 2163563
 Район: | Телефон 2: +7
 Город: Дубна | Факс 1: +7
 Улица: проспект Боголюбова | Моб. тел. 1: +7 926 2798159
 Дом: 16а | e-mail 1: verkn@mail.ru
 Строение: | e-mail 2: @.ru
 Организация: ОИЯИ | Примечания:

Добавить нового клиента | Изменить информацию о клиенте

Список партий образцов

Год	Номер партии образцов	Индекс партии образцов
11	01	a
11	02	b

Номер новой партии: 05 | Дата приёма партии образцов: 23.01.2015
 Индекс новой партии: e | Дата возврата партии образцов: _____

Примечания 1
 Sample type: vegetation; sample subtype: moss; quantity: 99; determined elements: all elements; F, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, K, Ca, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Cu, Zn, Ga, As, Se, Br, Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Mo, Ru, Ag, Cd, In, Sn, Sb, I, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Er, Tm, Yb, Lu, Hf, Ta, W, Re, Ir, Pt, Au, Hg, Th, U.

Быстро заполнить примечания 1

Примечания 2

Быстро заполнить примечания 2

Примечания 3

Быстро заполнить примечания 3

Принято

Страна-Клиент-Год-№ парт.-Ин. п.
 RU 20 15 05 e

Сохранить новую партию | Форма для печати | Закрыть

Рисунок 18. Окно приёма новой партии образцов

Верхняя часть окна предназначена для отображения информации о клиенте, передающем образцы для проведения НАА. Если сведения о клиенте уже занесены в базу данных, достаточно выбрать нужную страну и номер

записи о клиенте. В противном случае в базу данных заносят сведения о новом клиенте.

Нижняя половина окна предназначена для ввода информации о новой партии образцов. Каждой партии образцов присваивают уникальный код, включающий код страны, откуда поступили образцы, код клиента, передавшего образцы, текущий год, идентификационный номер и индекс партии образцов. Программа автоматически предлагает следующие по порядку свободные номер и индекс партии. Поля «Примечания 1, 2, 3» предназначены для описания образцов в новой партии в общем виде (количество, тип, интересующие элементы и т.п.). Поля можно заполнять вручную или с помощью программных средств автоматизации.

Кнопка «Форма для печати» открывает окно приёма новой партии в виде **документа для печати**. Документ печатают, клиент, передавший образцы, должен подписать этот документ.

Данные о новом клиенте вводят в окне «Информация о клиенте», показанном на рис. 19.

Поля можно заполнять вручную или используя файл, созданный с помощью программы «Информация о клиенте» (раздел 2.2.4). Возможности интерфейса базы данных НАА позволяют отредактировать информацию о добавленном ранее клиенте.

После создания новой партии необходимо добавить образцы в эту партию. Выбрав нужную партию, экспериментатор увидит окно со списком образцов из этой партии (рис. 20).

Информация о клиенте

Страна: Russia

Номер клиента: []

Номер нового клиента: 20

Индекс: 141986

Республика: []

Область: Московская

Район: []

Город: Дубна

Улица: проспект Боголю

Дом: 16а

Строение: []

Организация: ОИЯИ

Обр.: Mr.

Пол: m

Фамилия: Вергель

Имя: Константин

Отчество: Николаевич

Тел КС: +7

Код: 496

Телефон 1: 2163563

Тел КС: +7

Код: []

Телефон 2: []

Тел КС: +7

Код: []

Факс 1: []

Тел КС: +7

Код: 926

Моб. тел. 1: 2798159

e-mail 1: verkn@mail.ru

e-mail 2: @.ru

Примечания: []

Сохранить информацию о []

Заполнить из файла []

Закреть []

Рисунок 19. Окно с информацией о клиенте

Список образцов

Страна-Клиент-Год-№ парт.-Ин. п. Новый № обр. № образ.

RU 07 13 41 о 92

Вставить все образцы в партию образцов

Вставить новый образец в партию образцов

Изменить информацию об образце

Пробоподготовка

Результаты НАА

Закреть

78

79

80

81

82

83

84

85

86

87

88

89

90

91

Рисунок 20. Окно со списком образцов

Образцы в новую партию можно добавлять поштучно, с использованием окна, показанного на рис. 21 или автоматически – все образцы, составляющие партию.

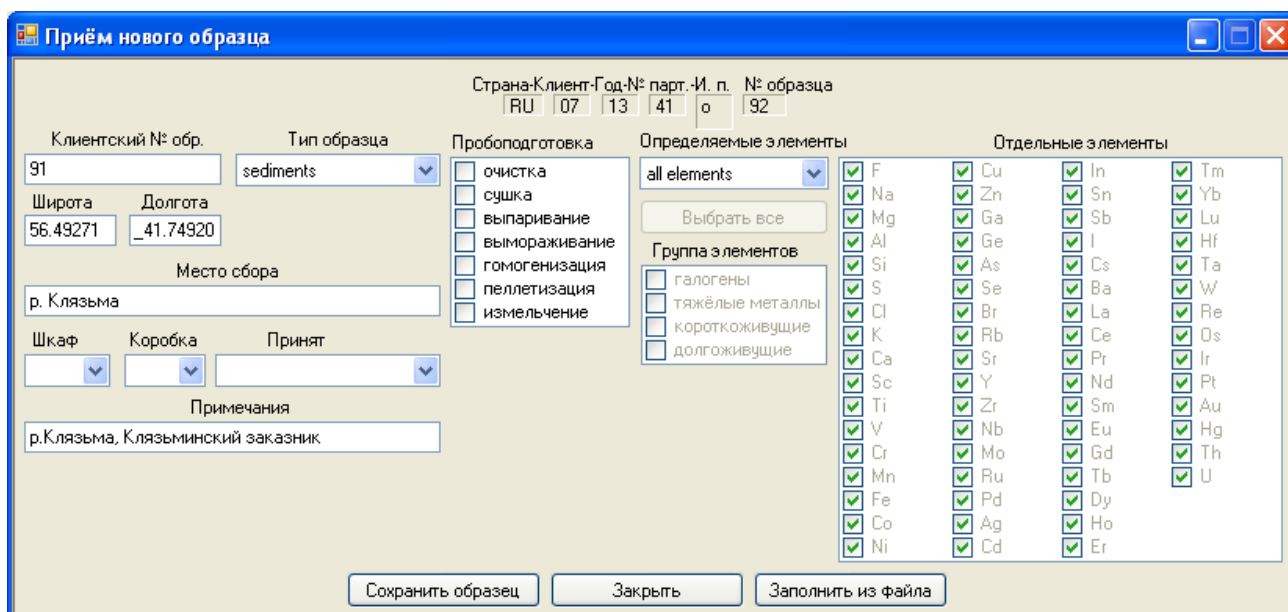


Рисунок 21. Окно приёма нового образца

Первый вариант используют очень редко, если есть необходимость установить строгое соответствие между номерами образцов, присвоенными клиентом и внутренними номерами образцов, которые используют в СНААПИ. Экспериментатор может заполнить поля вручную или с использованием файла, который создаёт заказчик с помощью программы «Информация об образцах» (раздел 2.2.5). Чаще всего используют более удобный и быстрый второй вариант. В этом случае необходим файл, созданный программой «Информация об образцах». Введённую ранее информацию об образцах можно отредактировать.

Сведения о **подготовке проб** к облучению сохраняют с помощью окна, представленного на рис. 22. В нем перечислены все образцы из выбранной партии и все возможные операции подготовки, которым могут быть подвергнуты образцы.

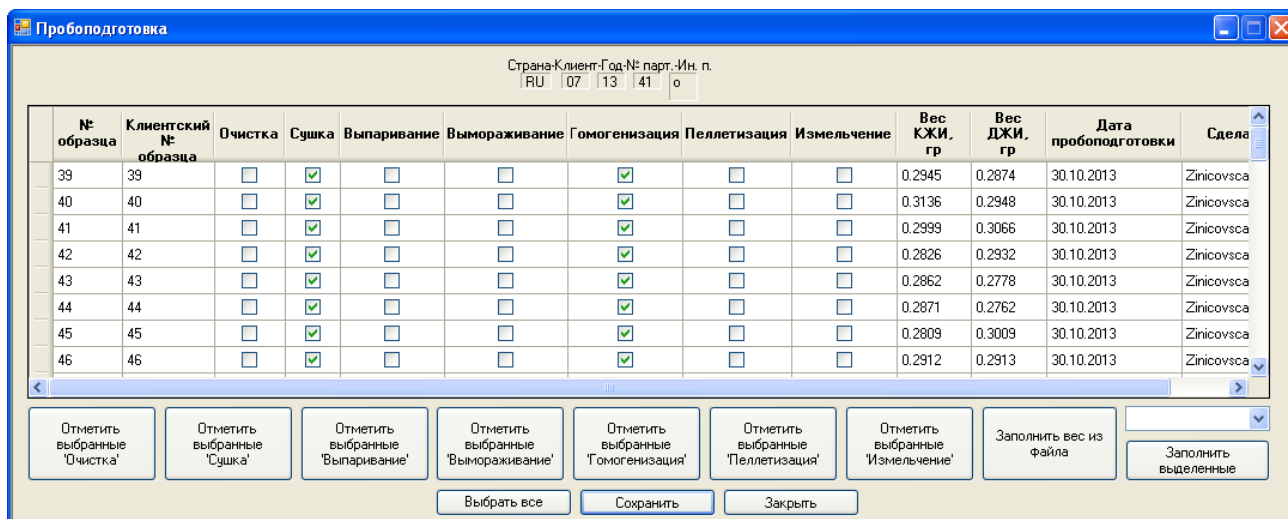


Рисунок 22. Окно с информацией о подготовке образцов к облучению

Экспериментатор может заполнять ячейки таблицы вручную или использовать кнопки автоматизации. Для автоматического заполнения информации о весе образцов используют весовой файл, созданный с помощью аппаратно-программного средства «Вес» (раздел 2.3.1)

Одной из важнейших функций базы данных является **хранение результатов анализа** (рис. 23). Результаты используют для последующей обработки, факторного анализа данных и построения карт пространственного распределения элементов с помощью ГИС-технологий.

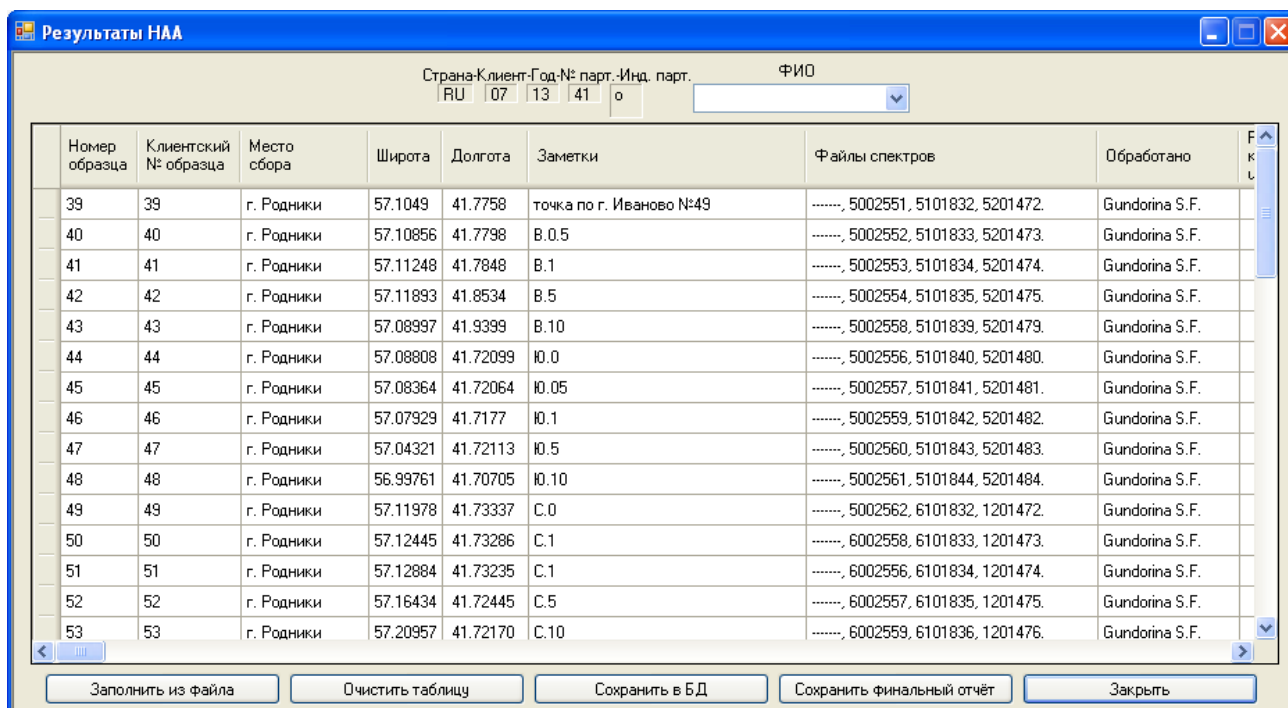


Рисунок 23. Окно результатов НАА

Для автоматического занесения результатов НАА в базу данных используют файл с окончательной таблицей концентраций, созданный программой «Концентрация» (раздел 2.2.2). Программные возможности интерфейса позволяют сохранить финальный отчёт из базы данных в виде файла электронных таблиц MS Excel.

В базе данных сохраняют информацию о действиях, совершённых со **стандартными образцами и мониторами потока**. Единоновременно приобретённое количество стандартного образца или монитора потока рассматривают как партию. При использовании образцов из партий стандартных образцов и мониторов потока осуществляют контроль баланса веса партии и веса взятых проб (рис. 24).

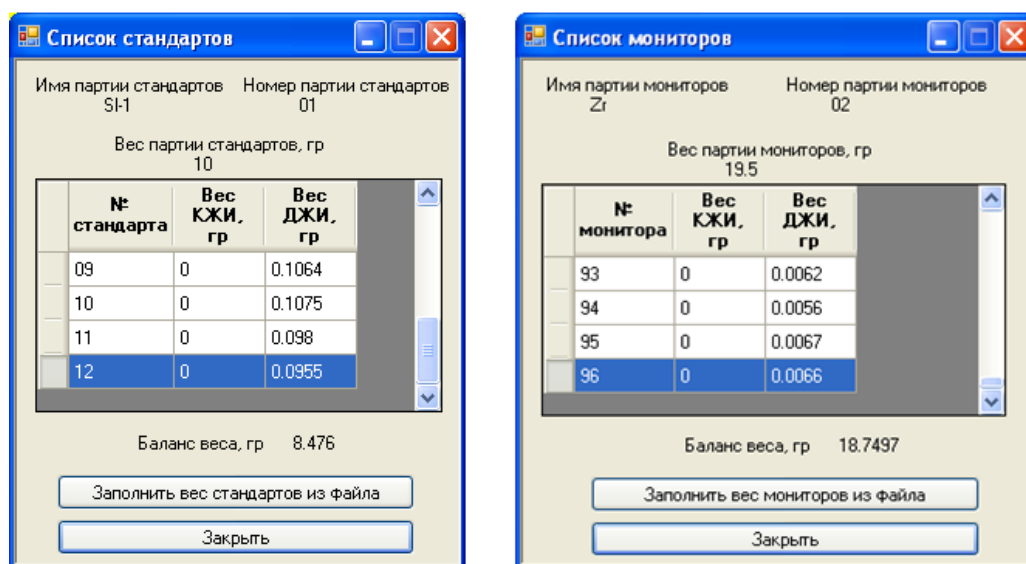


Рисунок 24. Данные о партии стандартов и партии мониторов

Для сохранения значений веса взятых проб используют весовой файл, созданный аппаратно-программным средством «Вес» (раздел 2.3.1).

Важным этапом НАА является облучение образцов, стандартных образцов и мониторов потока. Информацию об облучении сохраняют в базе данных в так называемых журналах КЖИ и ДЖИ.

Журнал облучения КЖИ (рис. 25) содержит все необходимые сведения об облучении образцов и об измерении спектров для определения короткоживущих изотопов: список облученных образцов, стандартных

образцов и мониторов потока; дата облучения; время начала и длительность облучения; номер канала облучения; имя файла со спектром наведённой активности; ФИО ответственного экспериментатора.

Рисунок 25. Окно журнала КЖИ

Каждому дню облучения соответствует свой журнал. Созданный журнал КЖИ представляет из себя таблицу, которую надо заполнить. Делают это следующим образом: сначала экспериментатор заносит в журнал облучавшиеся в выбранный день образцы, стандарты и мониторы, а после этого детализирует информацию об облучении. Добавленный в журнал КЖИ образец удаляют из списка доступных образцов партии. Детализацию информации осуществляют вручную или с помощью кнопок автоматизации. Кнопки автоматизации предназначены для группового заполнения соответствующих полей

предварительно выделенных строк повторяющейся информацией. Для удобства работы можно использовать выпадающий список «Вид партий образцов». При выборе из списка строки «Все партии образцов» в таблице «Партии образцов» отображаются все сохранённые в базе данных партии, а при выборе строки «Партии образцов из журнала» отображаются только те партии, которые есть в журнале. Данные в журнале сортируют по времени начала облучения. Содержимое журнала КЖИ из базы данных можно сохранить в файл электронных таблиц MS Excel. Возможно редактировать ранее созданный журнал КЖИ.

В журнале ДЖИ (рис. 26) сохраняют следующую информацию, связанную с облучением и измерениями ДЖИ: список облученных образцов, стандартных образцов и мониторов потока; даты и время начала и окончания облучения; номер канала облучения; номер контейнера; номер позиции образца, стандартного образца или монитора потока в контейнере; ФИО ответственного экспериментатора и сотрудника, переупаковавшего образец; информация об измерениях ДЖИ-1 и ДЖИ-2: даты измерений и имена файлов со спектрами наведённой активности.

Максимальное количество одновременно облучаемых контейнеров – шесть штук. Для удобства визуального восприятия каждый контейнер выделяют разным цветом. Работу с журналом ДЖИ проводят аналогично описанной выше работе с журналом КЖИ. Данные в журнале сортируют по возрастанию номера контейнера и номера позиции образца в контейнере. Важной особенностью окна журнала ДЖИ является возможность автоматического создания файлов со списками образцов для УСО. В отношении стандартных образцов осуществляют контроль кратности их использования. Допускают использование каждого стандартного образца при определении КЖИ не более десяти раз. Как только стандарт стал негодным, его исключают из списка доступных стандартов.

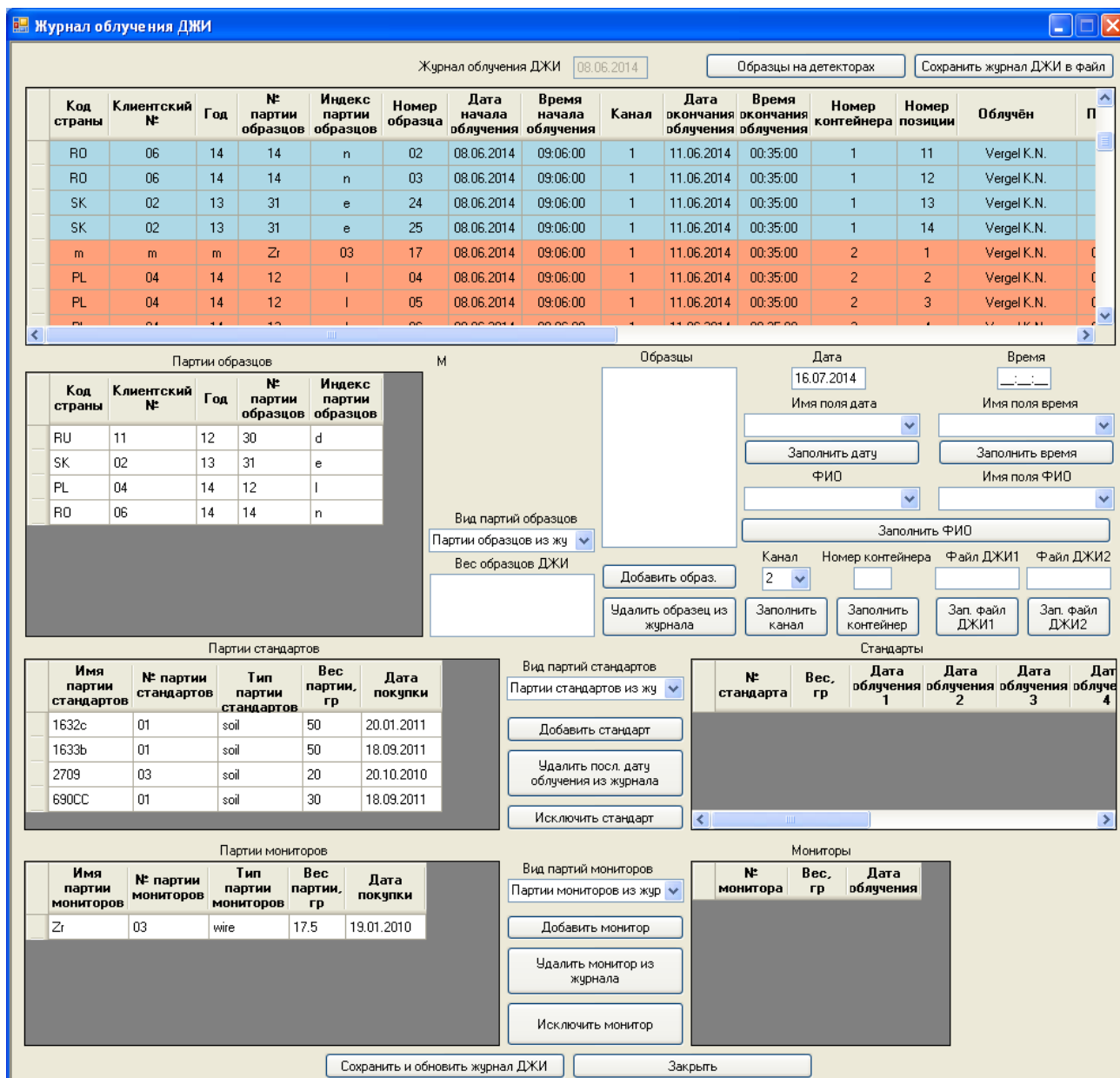


Рисунок 26. Окно журнала ДЖИ

Параметры окружающей среды в химической комнате, где осуществляют подготовку образцов к облучению (влажность, температура, дата и время измерений), контролируют специальным прибором. Результаты измерений сохраняют в файл, а затем в базу данных.

2.2.4. Программа для клиентов «Информация о клиенте»

По соображениям компьютерной безопасности доступ к базе данных НАА был ограничен только сотрудниками СНААПИ, обмен информацией с базой данных НАА разрешён только с использованием компьютеров, включённых в

локальную сеть ОИЯИ. Поэтому для автоматизации обмена информации с клиентами было создано специальное программное обеспечение, интерфейсы которого похожи на соответствующие окна базы данных НАА.

Программа «Информация о клиенте» (рис. 27) предназначена для автоматизации сбора информации о клиентах, предоставляющих свои образцы для проведения НАА, и занесения этой информации в базу данных.

The screenshot shows a software window titled "Client info" with a menu bar containing "File", "Language", and "Help". The form is organized into several sections:

- Country:** A dropdown menu showing "Vietnam".
- Address:** Fields for "Postal code", "Republic", "Region", "District" (containing "BaDinh"), "City" (containing "Hanoi"), "Street" (containing "Daotan"), "House" (containing "10"), and "Building".
- Organization:** A text field containing "Institute of Physics, Vietnam Academy of Science and Technology".
- Personal Information:** Fields for "Title" (dropdown menu with "Mr."), "Gender" (dropdown menu with "m"), "Last name" (containing "Nguyen"), "First name" (containing "Huy"), and "Middle name" (containing "Quoc").
- Phone Numbers:** Two sets of fields for "Country code" (dropdown menu with "+84"), "Code", and "Phone 1" or "Phone 2".
- Fax and Mobile:** Fields for "Country code" (dropdown menu with "+84"), "Code" (containing "043"), "Fax" (containing "7669050"), "Country code" (dropdown menu with "+84"), "Code", and "Mobile phone".
- E-mail:** Fields for "E-mail 1" (containing "qhnguye@iop.vast.a") and "E-mail 2" (containing "lhkhiem@iop.vast.ac").
- Notes:** A large empty text area.
- Buttons:** "Save" and "Close" buttons at the bottom.

Рисунок 27. Программа «Информация о клиенте»

Клиент загружает программу из сети с использованием указанной гиперссылки. С помощью программы клиент создаёт текстовый файл с данными, который передаёт в ЛНФ ОИЯИ. Созданный файл можно отредактировать. Файл готов для автоматического занесения в базу данных НАА.

2.2.5. Программа для клиентов «Информация об образцах»

Программа «Информация об образцах» (рис. 28) предназначена для автоматизации сбора информации об образцах, передаваемых для проведения НАА, и занесения этой информации в базу данных.

Клиент загружает программу с использованием указанной гиперссылки в сети. С помощью программы клиент создаёт текстовый файл, содержащий данные о предоставляемых образцах и требования к анализу, и передаёт этот файл в ЛНФ ОИЯИ. Созданный файл можно отредактировать. Файл готов для автоматического занесения в базу данных НАА.

Информация об образцах-1.2

Файл Помощь

Номер образца: 21р Тип образца: растительность Растительность: другая растительность

Широта (дес. град.): Долгота (дес. град.): Место сбора: Кош-Агач

Определяемые элементы

все элементы

Select all

Группа элементов

- Галогены
- Тяжёлые металлы
- Короткоживущие
- Долгоживущие

<input checked="" type="checkbox"/>	F	<input checked="" type="checkbox"/>	Co	<input checked="" type="checkbox"/>	Cd	<input checked="" type="checkbox"/>	Er
<input checked="" type="checkbox"/>	Na	<input checked="" type="checkbox"/>	Cu	<input checked="" type="checkbox"/>	In	<input checked="" type="checkbox"/>	Tm
<input checked="" type="checkbox"/>	Mg	<input checked="" type="checkbox"/>	Zn	<input checked="" type="checkbox"/>	Sn	<input checked="" type="checkbox"/>	Yb
<input checked="" type="checkbox"/>	Al	<input checked="" type="checkbox"/>	Ga	<input checked="" type="checkbox"/>	Sb	<input checked="" type="checkbox"/>	Lu
<input checked="" type="checkbox"/>	Si	<input checked="" type="checkbox"/>	As	<input checked="" type="checkbox"/>	I	<input checked="" type="checkbox"/>	Hf
<input checked="" type="checkbox"/>	S	<input checked="" type="checkbox"/>	Se	<input checked="" type="checkbox"/>	Cs	<input checked="" type="checkbox"/>	Ta
<input checked="" type="checkbox"/>	Cl	<input checked="" type="checkbox"/>	Br	<input checked="" type="checkbox"/>	Ba	<input checked="" type="checkbox"/>	W
<input checked="" type="checkbox"/>	K	<input checked="" type="checkbox"/>	Rb	<input checked="" type="checkbox"/>	La	<input checked="" type="checkbox"/>	Re
<input checked="" type="checkbox"/>	Ca	<input checked="" type="checkbox"/>	Sr	<input checked="" type="checkbox"/>	Ce	<input checked="" type="checkbox"/>	Ir
<input checked="" type="checkbox"/>	Sc	<input checked="" type="checkbox"/>	Y	<input checked="" type="checkbox"/>	Nd	<input checked="" type="checkbox"/>	Pt
<input checked="" type="checkbox"/>	Ti	<input checked="" type="checkbox"/>	Zr	<input checked="" type="checkbox"/>	Sm	<input checked="" type="checkbox"/>	Au
<input checked="" type="checkbox"/>	V	<input checked="" type="checkbox"/>	Nb	<input checked="" type="checkbox"/>	Eu	<input checked="" type="checkbox"/>	Hg
<input checked="" type="checkbox"/>	Cr	<input checked="" type="checkbox"/>	Mo	<input checked="" type="checkbox"/>	Gd	<input checked="" type="checkbox"/>	Th
<input checked="" type="checkbox"/>	Mn	<input checked="" type="checkbox"/>	Ru	<input checked="" type="checkbox"/>	Tb	<input checked="" type="checkbox"/>	U
<input checked="" type="checkbox"/>	Fe	<input checked="" type="checkbox"/>	Ag	<input checked="" type="checkbox"/>	Dy		

Примечания (например, наиболее важные элементы)

№	Номер образца	Тип образца	Подтип образца	Широта	Дол.
93	21р	растительность	другая растительность		
94	22р	растительность	другая растительность		
95	23р	растительность	другая растительность		
96	24р	растительность	другая растительность		
97	25р	растительность	другая растительность		
98	26р	растительность	другая растительность		
99	27р	растительность	другая растительность		
100	28р	растительность	другая растительность		

Заменить Добавить Удалить Закреть Сохранить

Рисунок 28. Программа «Информация об образцах»

Работа с программой, в сущности, сводится к заполнению сводной таблицы и созданию на основе этой таблицы нового или редактированию уже существующего файла с информацией об образцах.

2.2.6. Программа подбора стандартов «Поиск стандартов»

Программа «Поиск стандартов» (рис. 29) предназначена для подбора стандартных материалов, удовлетворяющих условиям, заданным экспериментатором.

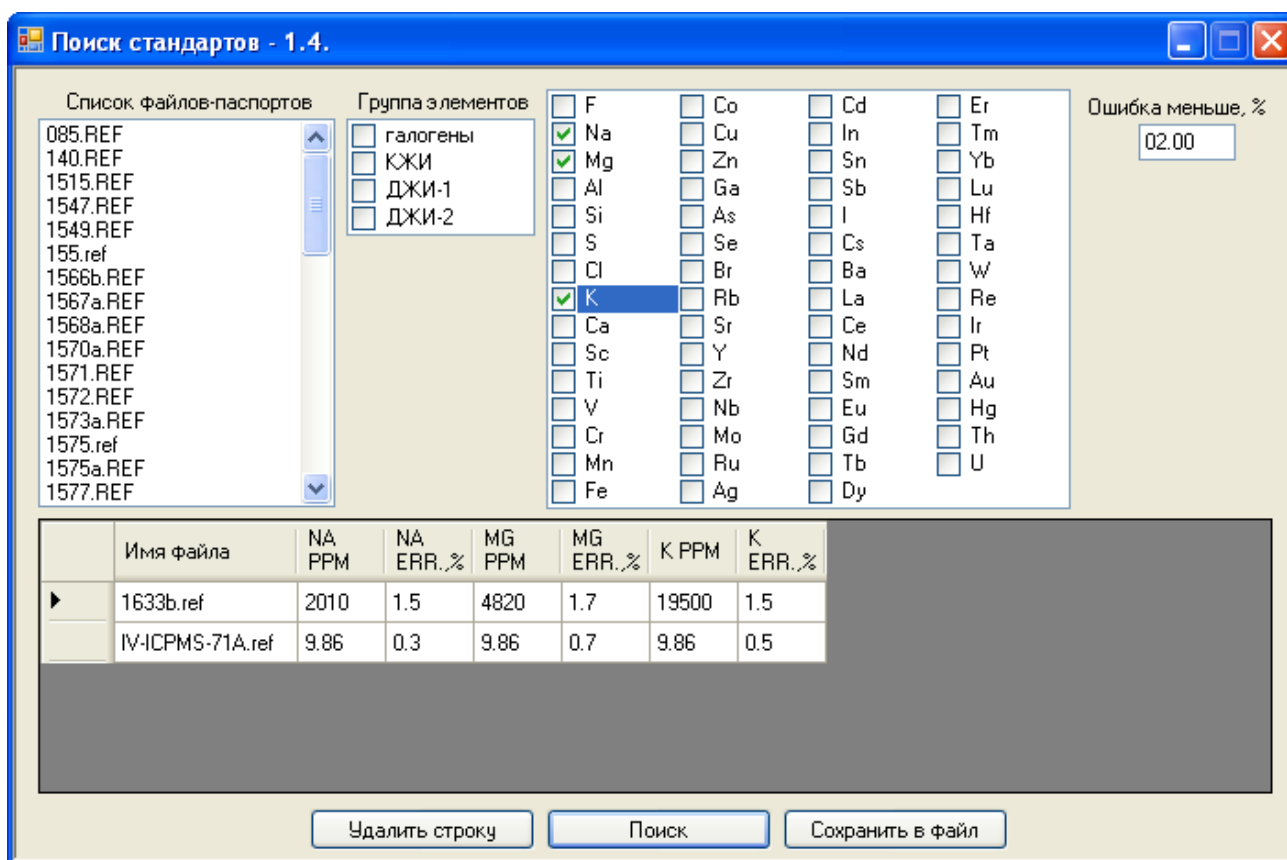


Рисунок 29. Программа «Поиск стандартов»

Программу обычно используют для формирования набора стандартных материалов, которые содержат все необходимые элементы с подходящими погрешностями определения концентраций. Экспериментатор отмечает необходимые элементы и задаёт погрешность, которую не должны превышать концентрации нужных элементов. Таблицу с результатами поиска можно сохранить в файл электронных таблиц MS Excel.

Программа «Поиск стандартов» также обеспечивает возможность группового просмотра содержимого файлов с паспортными параметрами стандартных образцов. Результирующую таблицу также можно сохранить в файл электронных таблиц MS Excel.

2.3. Методы автоматизации для решения вспомогательных задач

2.3.1. Автоматизация взвешивания образцов с использованием аппаратно-программного средства «Вес»

Аппаратурно-программное средство «Вес» (рис. 30) предназначено для автоматизации процесса взвешивания образцов, стандартных образцов и мониторов потока, а также создания весового файла.

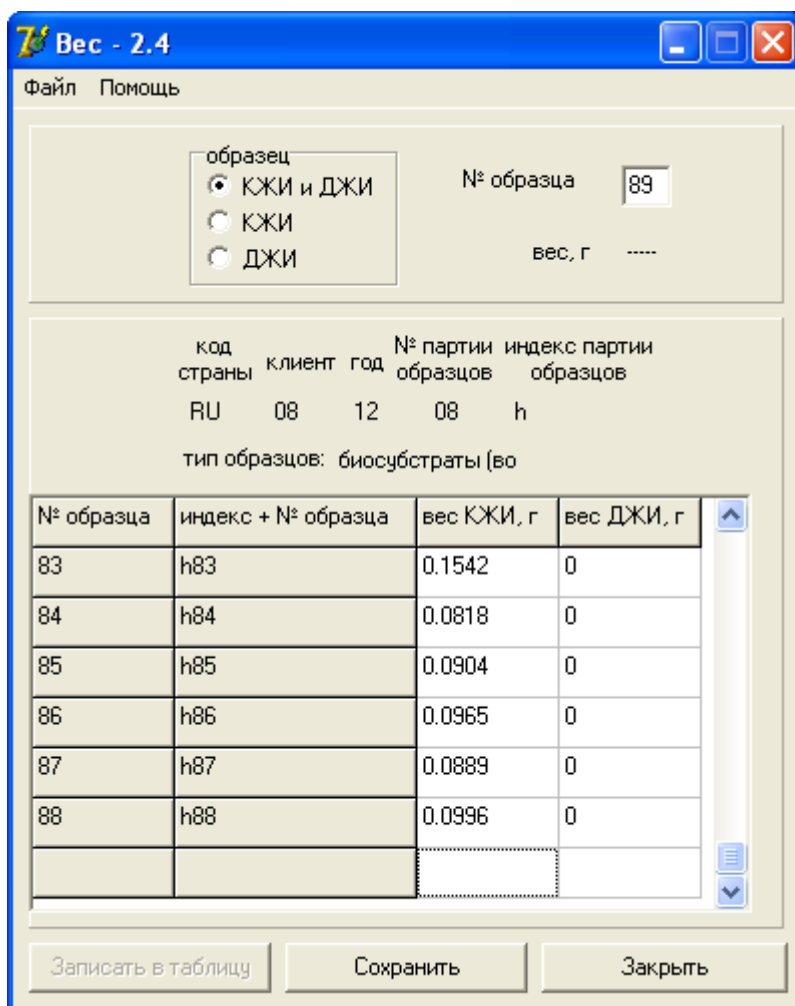


Рисунок 30. Основное окно программы «Вес»

Для взвешивания используют аналитические весы, подключенные к персональному компьютеру по интерфейсу RS-232. Результатом работы

является весовой файл, готовый для автоматического занесения в базу данных НАА.

Алгоритм взвешивания следующий: экспериментатор выбирает тип взвешиваемых образцов, кладёт взвешиваемый образец на аналитические весы, дожидается стабильных показаний на дисплее весов, после чего нажимает кнопку для автоматического считывания значения веса в окно программы.

В будущем планируется создать версию аппаратно-программного средства «Вес», которая сможет осуществлять обмен информацией непосредственно с базой данных НАА, минуя весовой файл.

2.3.2. Вспомогательная программа «Журнал измерений»

Результатами измерения гамма-спектров программой «Genie-2000» являются бинарные файлы с расширением CNF. Программа «Журнал измерений» (рис. 31) извлекает из этих файлов и сводит в текстовый файл все необходимые сведения, касающиеся измерений спектров наведённой активности. Доступна возможность группового выбора файлов со спектрами.

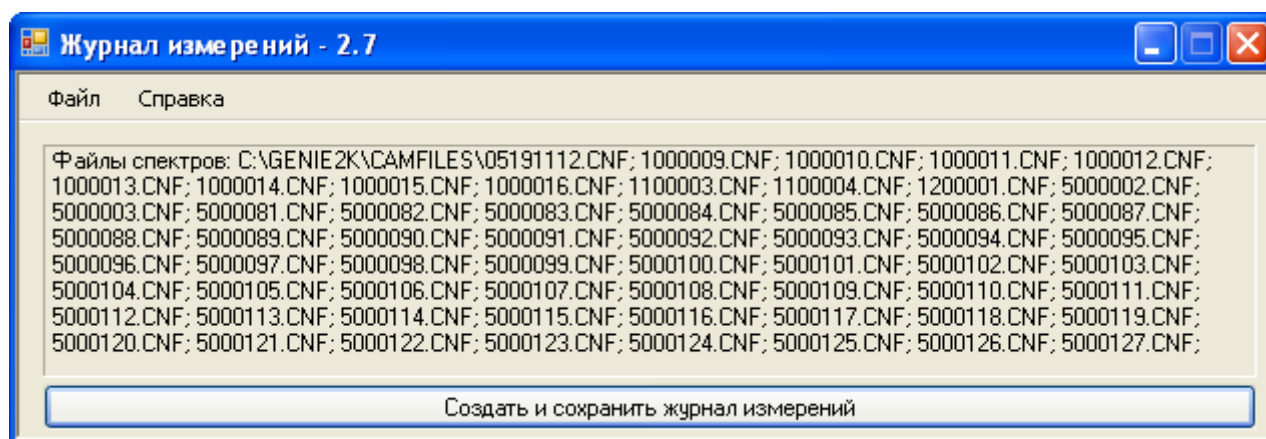


Рисунок 31. Программа «Журнал измерений»

Текстовый файл представляет собой электронную версию журнала измерений. Анализ журнала позволяет отсеять ошибочные файлы измерений и быстро найти спектр нужного образца.

2.3.3. Вспомогательная программа «Среда НАА»

Программа «Среда НАА» (рис. 32) предназначена для запуска последних версий наиболее часто используемых программ для автоматизации НАА.

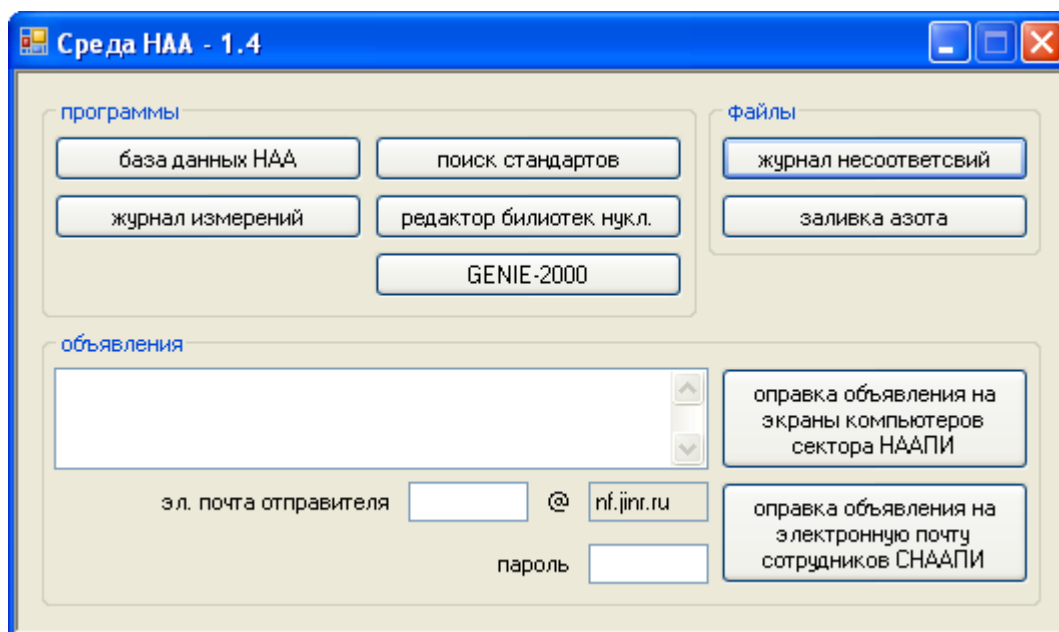


Рисунок 32. Программа «Среда НАА»

Использование программы позволяет освободить сотрудников сектора от необходимости выяснения, являются ли имеющиеся на их компьютерах версии программ актуальными. Программа «Среда НАА» загружает с ftp сервера и запускает необходимые версии программ автоматически.

Также программа обеспечивает доступ для просмотра и редактирования сетевых электронных журналов несоответствий и заливки азота. В журнале несоответствий сохраняют сведения о всевозможных проблемах при проведении НАА, требующих внимания сотрудников сектора. Журнал заливки азота позволяет контролировать своевременность пополнения объёма жидкого азота в сосудах Дьюара на соответствующих полупроводниковых детекторах. Таким образом, возможности программы позволяют перейти к электронному документообороту.

Наконец, программа позволяет осуществлять групповую рассылку сообщений на экраны компьютеров и по адресам электронной почты сотрудников сектора НААПИ.

Заключение

Разработана новая методика массового многоэлементного НАА, обеспечивающая высокое качество аналитических результатов и их надежность при высокой производительности, необходимой в условиях проведения многоэлементного анализа больших партий образцов различного происхождения с использованием радиоаналитического комплекса РЕГАТА на реакторе ИБР-2.

Разработан и создан аппаратурно-программный комплекс для автоматизации НАА в ЛНФ ОИЯИ, включающий в себя автоматическую систему измерения спектров наведённой активности, базу данных НАА с интерфейсом, а также аппаратурно-программные и программные средства.

Аппаратурно-программный комплекс обеспечивает условия проведения научно-исследовательских и прикладных работ в секторе НААПИ ЛНФ ОИЯИ на более высоком научно-техническом уровне, а также большую производительность анализа.

Достигнута более высокая степень автоматизации как в процессе выполнения операций НАА, так и в обработке аналитических результатов.

Использование оригинальных автоматических устройств смены образцов позволило полностью автоматизировать процесс измерения облученных образцов (до 135 образцов за один цикл измерений).

Созданная база данных НАА предоставляет широкие возможности хранения, сортировки и использования информации, необходимой для проведения НАА. База данных позволяет осуществлять учет массовых партий образцов, менеджмент проведения НАА, а также электронный оборот документации.

Созданное оборудование и программные средства используют в повседневной практике в ЛНФ ОИЯИ для проведения массовых многоэлементных исследований методом НАА. Разработанные методы обеспечивают надежную организацию многоэлементного НАА образцов при

проведении массовых экологических исследований в рамках масштабных международных проектов.

Эксплуатация разработанного аппаратурно-программного комплекса в повседневной аналитической практике СНААПИ показала его высокую эффективность и возможности обеспечения качества аналитических результатов. При этом обеспечена привязка к сертифицированным стандартам («traceability») результатов НАА.

Предложенный аппаратурно-программный комплекс может служить примером для использования на всех передовых ядерных реакторах мира, где развит метод НАА.

Сертификат МАГАТЭ, полученный в декабре 2013 года (приложение 3) является подтверждением актуальности и значения выполненных работ.

Приложения

1. Участие в межлабораторном тесте WEPAL

В 2013 году СНААПИ принимал участие межлабораторном тесте [57], который регулярно организует МАГАТЭ в сотрудничестве с Wageningen Evaluating programs for Analytical Laboratories – WEPAL (Вагенингенский университет, Нидерланды) [58] в рамках программ профессионального тестирования исследований в области анализа растений, почв, донных отложений и органических отходов.

Анализ образцов, полученных для тестирования, был проведен с использованием разработанного аппаратурно-программного комплекса. Результаты оценивались на основе значений z-показателя, который рассчитывают по формуле (14) и относительного отклонения от среднего значения измеряемой величины.

$$z = \frac{C_x - C_r}{\sqrt{S_x^2 + S_r^2}}, \quad (14)$$

где $C_{x,r}$ и $S_{x,r}$ – концентрация элемента в образце и погрешность, рассчитанные и взятые из сертификата, соответственно.

Результаты признают удовлетворительными, если $|z|$ -показателя ≤ 3 и относительное отклонение от среднего значения измеряемой величины $\leq 20\%$.

По оценке эксперта из Нидерландов проф. Питера Боде, показатели результативности сектора НААПИ в тестах WEPAL International plant-analytical exchange program – IPE – были отличными (рис. 33).

Сектор НААПИ также показал удовлетворительные результаты в тестах WEPAL International soil-analytical exchange program – ISE – (рис. 34).

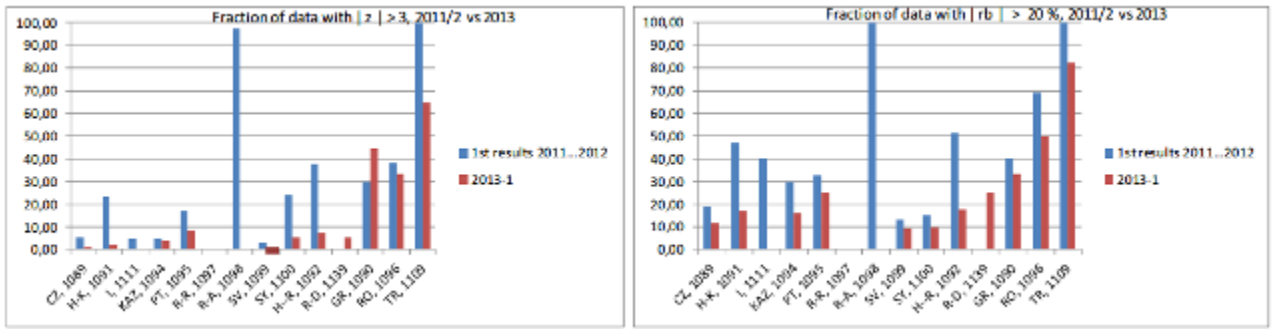


Рисунок 33. Показатели результативности z-показатель и относительное отклонение от среднего значения измеряемой величины в тестах WEPAL IPE.

Номер СНААПИ 1139

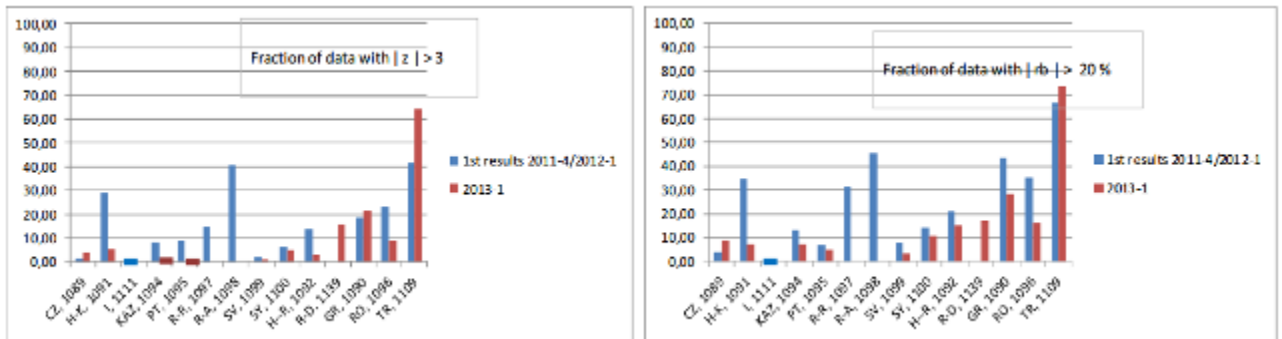


Рисунок 34. Показатели результативности z-показатель и относительное отклонение от среднего значения измеряемой величины в тестах WEPAL ISE.

Номер СНААПИ 1139

2. Благодарности

Автор выражает глубокую благодарность своему научному руководителю – кандидату физико-математических наук, доценту, начальнику СНААПИ ЛНФ ОИЯИ

Марине Владимировне Фронтасевой

за неоценимую помощь при выполнении работы и постоянное внимание;
ведущему инженеру СНААПИ ЛНФ ОИЯИ

Сергею Сергеевичу Павлову

за полезные консультации и сотрудничество;
а также всем сотрудникам сектора НААПИ ЛНФ ОИЯИ и лично

Светлане Фёдоровне Гундориной и

Татьяне Михайловне Островной

за содействие во время разработки и на этапе внедрения аппаратурно-программного комплекса на реакторе ИБР-2.

Автор особо благодарит

Елену Ивановну Киркесали

за возможность постоянного обсуждения и серьёзную помощь при подготовке рукописи работы.

Автор благодарен МАГАТЭ за поддержку работ в рамках проекта IAEA Coordinated Research Project 1888 – «Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis» (2012-2015).

3. Сертификат МАГАТЭ



IAEA

International Atomic Energy Agency

Atoms For Peace

This is to certify that
Mr Andrey Dmitriev
is an active member of
the **IAEA Coordinated Research Project 1888**
on **Development of an Integrated Approach to**
Routine Automation of Neutron Activation Analysis
(2012-2015)

In the frame of the above project, **Mr Andrey Dmitriev** has successfully developed and presented a number of specific tools for automation of neutron activation analysis (NAA): both the hardware (the design of a sample changer) and the software (the NAA database, including integrated interface of the database and additional software programmes). The work and results reported by **Mr Andrey Dmitriev** were highly appreciated by the CRP partners representing 19 countries as well as the IAEA Secretariat. It was suggested that implementation of such an advanced system could be taken as a reference example by other NAA laboratories world-wide, interested in increasing their measurement capacity through large scale automation.

.....
Danas Ridikas
Technical Officer of the Project
IAEA-NAPC Physics Section

Vienna, 10 December 2013

4. Список использованных сокращений

ANSTO – Australian nuclear science and technology organisation.

API – application programming interface.

CARR – China advance research reactor.

CENA – Nuclear energy center for agriculture.

CIAE – China institute of atomic energy.

ERON – error propagation.

HANARO – High-flux advanced neutron application reactor.

HPGe – high-purity germanium detector

IPE – International plant-analytical exchange programme.

ISE – International soil-analytical exchange programme.

ISINN – International seminar on interaction of neutrons with nuclei,

Международный семинар по взаимодействию нейтронов с ядрами.

IUPAC – International union of pure and applied chemistry.

LRi – Radioisotopes laboratory.

OPAL – open pool Australian lightwater reactor.

PGAA – prompt gamma activation analysis, быстрый гамма нейтронный активационный анализ.

PSBR – Pennsylvania state breazeale reactor.

PT – proficiency testing.

QC/QA – quality control/quality assurance, контроль качества/оценка достоверности, надёжности результатов.

RSEC – Radiation science and engineering center.

REXX – restructured extended executor, реструктурированный расширенный исполнитель.

SQL – structured query language.

WERPAL – Wageningen evaluating programs for analytical laboratories.

ААС – атомно-абсорбционная спектроскопия.

ГРС – групповой стандарт.

ДЖИ – долгоживущие изотопы.

ИБР–2 – импульсный быстрый реактор ИБР–2.

ИНАА – инструментальный нейтронный активационный анализ.

ИСП-АЭС – атомная-эмиссионная спектрометрия с индуктивно связанной плазмой.

ИСП-МС – масс-спектрометрия с индуктивно связанной плазмой.

КЖИ – короткоживущие изотопы.

ЛНФ – Лаборатория нейтронной физики.

МАГАТЭ – Международное Агентство по Атомной Энергии.

МДА – минимально-детектируемая активность.

МДК – минимально-детектируемая концентрация.

НАА – нейтронный активационный анализ.

ОИЯИ – Объединённый институт ядерных исследований.

ПТУ – пневмотранспортная установка.

РФА – рентгено-флуоресцентный анализ.

СНААПИ – сектор нейтронного активационного анализа и прикладных исследований.

СУБД – система управления базами данных.

УСО – устройство смены образцов.

ЭР – эталонная реализация.

5. Список рисунков

Рисунок 1. Схема проведения массового многоэлементного НАА в ЛНФ ОИЯИ	41
Рисунок 2. Схема автоматической системы измерения спектров	48
Рисунок 3. Схематический чертёж УСО	49
Рисунок 4. Общий вид устройств автоматической смены образцов	50
Рисунок 5. Общий вид устройства автоматической смены образцов	51
Рисунок 6. Диск для размещения образцов и датчик первой ячейки	52
Рисунок 7. Приспособление для захвата контейнеров	53
Рисунок 8. Программа «Измерения». Автоматический режим	56
Рисунок 9. Программа «Измерения». Полуавтоматический режим	59
Рисунок 10. Схема программного обеспечения для автоматизации НАА в ЛНФ ОИЯИ	61
Рисунок 11. Главное окно программы «Концентрация»	63
Рисунок 12. Схема работы программы «Концентрация»	65
Рисунок 13. Окно редактора ГРС	66
Рисунок 14. Промежуточная таблица концентраций	68
Рисунок 15. Окончательная таблица концентраций	69
Рисунок 16. Схема базы данных НАА	70
Рисунок 17. Главное окно интерфейса базы данных	72
Рисунок 18. Окно приёма новой партии образцов	73
Рисунок 19. Окно с информацией о клиенте	75
Рисунок 20. Окно со списком образцов	75
Рисунок 21. Окно приёма нового образца	76
Рисунок 22. Окно с информацией о подготовке образцов к облучению	77
Рисунок 23. Окно результатов НАА	77
Рисунок 24. Данные о партии стандартов и партии мониторов	78
Рисунок 25. Окно журнала КЖИ	79
Рисунок 26. Окно журнала ДЖИ	81
Рисунок 27. Программа «Информация о клиенте»	82
Рисунок 28. Программа «Информация об образцах»	83
Рисунок 29. Программа «Поиск стандартов»	84
Рисунок 30. Основное окно программы «Вес»	85
Рисунок 31. Программа «Журнал измерений»	86
Рисунок 32. Программа «Среда НАА»	87
Рисунок 33. Показатели результативности z-показатель и относительное отклонение от среднего значения измеряемой величины в тестах WEPAL IPE. Номер СНААПИ 1139	91
Рисунок 34. Показатели результативности z-показатель и относительное отклонение от среднего значения измеряемой величины в тестах WEPAL ISE. Номер СНААПИ 1139	91

6. Список литературы

1. М.В. Фронтасьева. Нейтронный активационный анализ в науках о жизни. Физика элементарных частиц и атомного ядра. 2011, т. 42, вып. 2, стр. 636-701.
2. Р.А. Кузнецов. Активационный анализ, М., Изд-е 2-е. М., Атомиздат, 1974.
3. F. De Corte, A. De Wispelaere. The performance of k_0 -INAA in recent exercises on the certification of rare earth elements in bio-environmental materials. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2004) 259, 3, 401-408.
4. S. Landsberger, S. Peshev. Compton suppression neutron activation analysis: Past, present and future. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (1996) 202, 201-224.
5. P. Bode, R.R. Greenberg, E.A. De Nadai Fernandes. Neutron Activation Analysis: A Primary (Ratio) Method to Determine SI-Traceable Values of Element Content in Complex Samples. CHIMIA, 2009, V. 63, No. 10. p. 678-680.
6. D. Ridikas, D. Adelfang, K. Aldred, M. Ferrari. New opportunities for the enhanced NAA services through the reactor coalition and networks. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2012) 291, 329-334.
7. M.V. Frontasyeva, S.S. Pavlov, V.N. Shvetsov. NAA for applied investigations at FLNP JINR: present and future. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2010) 286, 2, 519-524.
8. M. Frontasyeva, E Kirkesali. Epithermal neutron activation analysis in applied microbiology. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2012) 291, 2, 421-426.
9. А.Ю. Дмитриев, С.С. Павлов. Автоматизация количественного определения содержания элементов в образцах методом нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР 2 в ЛНФ ОИЯИ. Письма в ЭЧАЯ. 2013. Т 10, №1(178). С. 58-64. Работа удостоена премии журнала за 2013 год.
10. А.Ю. Дмитриев, С.С. Павлов. Программное обеспечение для автоматизации нейтронного активационного анализа на реакторе ИБР-2 в ЛНФ ОИЯИ. Ядерные измерительно-информационные технологии. 2012. №4. С. 54-66.
11. S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev, M.V. Frontasyeva. Automation of reactor neutron activation analysis. Communications of JINR, D18-2013-87, Dubna, 2013.
12. S.S. Pavlov, A.Yu. Dmitriev, I.A. Chepurchenko, M.V. Frontasyeva. Automation system for measurement of gamma-ray spectra of induced activity for multi-element high volume neutron activation analysis at the reactor IBR-2 of Frank Laboratory of Neutron Physics at the Joint Institute for Nuclear Research. Physics of Particles and Nuclei Letters. 2014. Vol. 11, No 6(190), pp. 1143-1149.
13. Национальный стандарт Российской Федерации. ГОСТ Р ИСО/МЭК 17025-2006.
14. Report of the Consultants' Meeting on «Preparation of Guidelines on Implementation of Routine Automation in Advanced Neutron Activation Analysis Laboratories», 2-4 December 2009, IAEA.
15. P. Bode. Automation and quality assurance in the NAA facilities in Delft, Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2000) 245, 1, 127-132.
16. P. Bode, M. Blaauw. Performance and robustness of a multi-user, multi-spectrometer system for NAA. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (2012) 291, 299-305.
17. P. Bode, M. De Bruin, P.J.M. Korthoven. A study of short-lived isotopes for use in non-destructive activation analysis. Journ. Radioanal. Nucl. Chem. (1975) 26, 1, 209-213.
18. M. Blaauw. The holistic analysis of gamma-ray spectra in instrumental neutron activation analysis Nucl. Instr. Meth., A353 (1994) 269-271.

-
19. M. Blaauw. The k_0 -Consistent IRI gamma-ray catalogue for INAA. Interfaculty Reactor Institute, TU Delft, Delft, 1996, ISBN 90-73861-32-2, 141 p.
 20. P. Bode, C.P. Van Dijk. Operational management of results in INAA utilizing a versatile system of control charts. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (1997) 215, 1, 87-94.
 21. M.J.J. Ammerlaan, P. Bode. Modern performance control of gamma-ray spectrometers for INAA. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.*, (1997) 215, 2, 253-256.
 22. M. Blaauw. The use of sources emitting coincident γ -rays for determination of absolute efficiency curves of highly efficient Ge detectors. *Nucl. Instr. Meth.*, A332 (1993) 493-500.
 23. B. Ni, C. Xiao, D. Huang, H. Sun, G. Zang, C. Liu, P. Wang, H. Zang, W. Tian. A brief introduction to NAA facilities of China advance research reactor at CIAE. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2012) 291, 313-319.
 24. S.S. Ismail. A new automated sample transfer system for instrumental neutron activation analysis. *Journ. of Automated Methods and Management in Chemistry*, (2010) 1-9.
 25. S.S. Ismail, K. Brezovits, W. Klikovich. Dynamic irradiation counting systems for fast, short-time activation analysis using a fully automatic moveable counting chamber and a digital spectrometer. *Instrumentation Science & Technology*. (2001) vol. 29, no. 4, 255–266.
 26. S.S. Ismail, W. Klikovich. Low cost fully-automatic counting system for INAA. *Egyptian Journal of Chemistry*. (2008) vol. 51, no. 1, 29–42.
 27. D. Sahin. «Tracing footprints of environmental events in tree ring chemistry using neutron activation analysis», PhD Dissertation, Department of Mechanical and Nuclear Engineering, Pennsylvania State University, University Park, PA, USA, 2012.
 28. J.W. Bennett. Commissioning of NAA at the new OPAL reactor in Australia. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2008) 278, 671–673
 29. Y.S. Chung, S.H. Kim, J.H. Moon, S.Y. Baek, Y.J. Kim, H.R. Kim, I.J. Park, K.S. Min. New pneumatic transfer system for neutron activation analysis at HANARO research reactor. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2008) 278, 3, 707-712.
 30. J.A. Preston, C.N. Grant. A software architectural framework specification for neutron activation analysis. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2013), 297, 3, 331-336.
 31. OpenNAA (2012). A software architectural framework specification for neutron activation analysis. <http://www.opennaa.org/index.html>. Accessed 23 January 2015.
 32. Open Source, «Open standards requirement for software» (2012) <http://opensource.org/osr>. Accessed 23 January 2015.
 33. M.F. Maduar, B.R.S. Pecequilo. Open-source implementation of an algorithm for photopeaks search and analysis in gamma-ray spectrometry with semiconductor detectors. International Nuclear Atlantic Conference-INAC 2009, In: Rio de Janeiro RJ, Brazil, Associacao Brasileira de Energia Nuclear–ABEN, ISBN: 978-85-99141-03-8.
 34. The OpenGammaX project. <http://opengammax.sourceforge.net>. Accessed 23 January 2015.
 35. M. Galassi, J. Davies, J. Theiler, B. Gough, G. Jungman, M. Booth, F. Rossi. «GNU scientific library reference manual, 2nd edn.» (2007), <http://www.gnu.org/software/gsl>. Accessed 23 January 2015.

-
36. SQLite DBMS, <http://www.sqlite.org/>. Accessed 23 January 2015.
37. M. Owens. Embedding an SQL database with SQLite. *Linux J* 2003 (110):1–3.
38. M.B. Chadwick, P. Oblozinsky, M. Herman, N.M. Greene, R.D. McKnight, D.L. Smith, P.G. Young, R.E. MacFarlane, G.M. Hale, S.C. Frankle, A.C. Kahler, T. Kawano, R.C. Little, D.G. Madland, P. Moller, R.D. Mosteller, P.R. Page, P. Talou, H. Trellue, M.C. White, W.B. Wilson, R. Arcilla, C.L. Dunford, S.F. Mughabghab, B. Pritychenko, D. Rochman, A.A. Sonzogni, C.R. Lubitz, T.H. Trumbull, J.P. Weinman, D.A. Brown, D.E. Cullen, D.P. Heinrichs, D.P. McNabb, H. Derrien, M.E. Dunn, N.M. Larson, L.C. Leal, A.D. Carlson, R.C. Block, J.B. Briggs, E.T. Cheng, H.C. Huria, M.L. Zerkle, K.S. Koziar, A. Courcelle, V. Pronyaev, S.C. van der Marck. ENDF/B-VII.0: next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. *Nucl Data Sheets* 107(12):2931–3060. doi: 10.1016/j.nds.2006.11.001ISSN 0090-3752.
39. C.S. Park, H.D. Choi, G.M. Sun, J.H. Whang. Status of developing HPGeg-ray spectrum analysis code HYPERGAM. *Prog. Nucl. Energ.* (2008) 50, 389-393.
40. G.W. Phillips, K.W. Marlow. Automatic analysis of gamma-ray spectra from germanium detectors. *Nucl. Instr. Meth.* (1976) B 137, 525-536
41. Zs. Revay, T. Belgya, P.P. Ember, G.L. Molnar. Recent developments in HYPERMET PC. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2001) 248, 2, 401-405.
42. B. Fazekas, T. Belgya, L. Dabolczi, G. Molnár, A. Simonits. Hypermet-Pc: Program for Automatic Analysis of Complex Gamma- Ray Spectra. *J. Trace and Microprobe Techniques* (1996) 14, 167-172.
43. K. Debertin, R.G. Helmer. *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. North Holland, Amsterdam, 1988.
44. HyperLab 2013 product information.
<http://www.hlabsoft.com/web/hl2013/productinfo.php>. Сайт доступен 23.01.2015.
45. HyperLab 2013 Reference Guide (2013). HyperLab Software. Budapest, Hungary.
46. J.W. Bennett and A.J. Stopic. First Report of Activities by ANSTO relating to the Development of an Integrated Approach to Routine Automation of Neutron Activation Analysis. September 2013.
47. HyperLab 2005 Reference Guide (2005). HyperLab Software. Budapest, Hungary.
48. M. Wasim. GammaLab: a suite of programs for k_0 -NAA and gamma-ray spectrum analysis. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2010) 285, 2, 337-342.
49. M.A. Bacchi, E.A.N. Fernandes. Quantu-design and development of a software package dedicated to k_0 -standardized NAA. *Journ. Radioanal. Nucl. Chem.* (2003) 257, 3, 577-582.
50. T. Bucar, B. Smodis. Computer-assisted uncertainty assessment of k_0 -NAA measurement results. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* (2008) A, 595, 3, 647-652.
51. V.P. Kolotov, F. De Corte. Compilation of k_0 and related data for neutron-activation analysis (NAA) in the form of an electronic database. *Pure Appl. Chem.* (2004) 76, 10, 1921–1925.
52. М.В. Фронтасьева. Нейтронный активационный анализа на реакторе ИБР-2 ЛНФ ОИЯИ - Дубна: ОИЯИ, 2009. - 40 с. - (Учебно-методические пособия Учебно-научного центра ОИЯИ. УНЦ; 2009-38).

-
53. P. Bode. Instrumental and organizational aspects of a neutron activation analysis laboratory. Delft University of Technology, 1996
54. Параметры реактора ИБР-2. <http://flnp.jinr.ru/559/>. Сайт доступен 23.01.2015.
55. M.V. Frontasyeva, S.S. Pavlov. REGATA Experimental Setup for Air Pollution Studies. In «Problems of Modern Physics». Editors: A.N. Sissakian, D.I. Trubetskov. Dubna, JINR, 1999, p. 152-158.
56. И.И. Елисеева, М.М. Юзбашев. Общая теория статистики: Учебник / Под ред. И.И. Елисеевой. – 5-е издание, переработанное и дополненное. – Москва: Финансы и Статистика, 2004. – 630 с.
57. P. Bode. Evaluation of results of an Interlaboratory Comparison in 2013 by participants in IAEA/AFRA project RAF 4/022, IAEA ARCAL RLA 0037 and IAEA RER 4/032 - RER 1/007.
58. WEPAL. <http://www.wepal.nl>. Сайт доступен 23.01.2015.