

Utvikling og implementering av en fjernstyrt ^{234m}Pa -nuklidegenerator

– Et læringsverktøy for bruk i undervisning av kjernekjemi

Olga Nikolaevna Salina

Kjernekjemi

60 studiepoeng

Kjemisk institutt

Det matematisk-naturvitenskapelige fakultet

Oktober 2022



© Olga Nikolaevna Salina

Oktober 2022

Utvikling og implementering av en fjernstyrt ^{234m}Pa -nuklidegenerator: Et læringsverktøy for bruk i undervisning av kjernekjemi.

Olga Nikolaevna Salina

<http://www.duo.uio.no/>

Trykk: Reprosentralen, Universitetet i Oslo

Forord

Arbeidet med denne masteroppgaven har vært en del CINCH-prosjektene MEET-CINCH og A-CINCH og har derfor mottatt finansiell støtte gjennom EURATOM Research and Training Programme (No. 945301) og fra Forskningsrådet (No. 313053).

Høsten 2017, da jeg var en forvirret student på siste året, kontaktet jeg professor Jon Petter Omtvedt for å høre om han hadde en bachelorprosjektoppgave til meg. På dette tidspunktet kunne jeg ikke engang forestille meg at denne veien ville føre meg dit jeg er i dag. Takket være professor Omtvedt har min interesse for kjernekjemi utviklet seg til å bli en ekte lidenskap – og det er jeg evig takknemlig for.

Veien hit har derimot vært lang. Før pandemien gikk masteroppgaven min ut på utvinning av sjeldne jordarter ved bruk av elektrokjemi og væske-væske ekstraksjon, og jeg var avhengig av å kunne bruke fasilitetene i Řež i Tsjekkia. Da landegrensene stengte, ble jeg nødt til å vurdere andre alternativer. På vei inn til studentområdet på en vanlig tirsdag så jeg at Jon Petter hadde hengt opp en stillingsannonse med den fengende tittelen «Er du interessert i en 9-måneders fulltidsjobb?», der han ønsket å ansette noen som kunne programmere fjernstyrte øvelser for bruk i kjernekjemiundervisning. Dette ble starten på et nytt kapittel.

Gjennom arbeidet med RoboLab, og som en del av CINCH-teamet, møtte jeg fantastiske mennesker, fikk sett nye steder, deltatt i å forbedre fagfeltet, lært meg et nytt programmeringsspråk, og mye mer. Jeg fikk rett og slett muligheten til å forelske meg i min fremtidige masteroppgave.

Det er riktignok en god del folk som vært med på å bidra til realisering av den nyeste RoboLab-øvelsen, også indirekte. Jeg vil derfor benytte anledningen til å takke Hans Borg, Jonas Skara Ringnes, og andre ved I-Lab som har alltid kommet med gode innspill og laget mange av delene som oppsettet i dag består av. Videre vil jeg takke Tone Charlotte Gadmar som har vært utrolig tålmodig og besvart mine spørsmål om oppgaveskriving. Til slutt ønsker jeg å takke alle mine kollegaer for å ha vært gode diskusjonspartnere og støttespillere. En spesiell takk går til Deniz Avsar og min familie for å ha holdt motet mitt oppe da jeg trengte det aller mest. Takk skal alle dere ha!

Olga N. Salina

Oslo, oktober 2022

Sammendrag

Med nye teknologier som stadig forbedres og gjøres tilgjengelig åpnes det utallige muligheter for utvikling av nye læringsressurser. «RoboLab» startet i 2006 som et pilotprosjekt ved Universitetet i Oslo, og ble brukt som et komplementerende undervisningsverktøy for å lære studentene om nøytronaktivering og effekten av gammaabsorpsjon. Basert på fjernstyrt utstyr i et ekte kjernekjemisk laboratorium, kan RoboLab-forsøkene utføres uten den vanlige HMS-opplæringen som kreves før man går inn i slike laboratorier. Dermed kan institusjoner uten laboratorier klassifisert for radioaktivt arbeid, eller som kun har laboratorier med begrenset utstyr og radioaktive kilder, få tilgang til eksperimenter de ellers ikke ville vært i stand til å utføre. Selv om praktisk opplæring ikke kan erstattes med denne typen eksperimenter, kan RoboLab i høy grad øke bevisstheten og kunnskapen til kjernekjemistudentene, samt øke læringsutbyttet av den svært ressurskrevende laboratorietiden.

Oppgavens hovedhensikt har vært å konstruere, programmere og implementere en fjernstyrt RoboLab-øvelse for generering av ^{234m}Pa via kationbyttning. En generell programmeringsmal for RoboLab ble utviklet i LabVIEW, og deretter brukt for å skrive serverprogrammet for nuklidegeneratorøvelsen. Malen legger opp for enkel etablering av kommunikasjon til utstyret gjennom en skytjeneste levert av National Instruments, og er ment å brukes i fremtidige oppgraderinger av eksisterende, samt utvikling av nye RoboLab.

Den eksisterende forsøksprosedyren som blir brukt i nuklidegeneratorøvelsen i radiokjemikurset KJM5912 – *Radiokjemi* ble optimalisert og anvendt på det ferdigstilte oppsettet. Funksjonstesten av det fjernstyrte oppsettet viste svært tilfredsstillende resultater, der gjennomsnittet av totalt 26 bestemte halveringstider til ^{234m}Pa er en verdi som tilsvarer kun 0,5% avvik fra litteraturverdien. I en serie av 5 parallelle målinger ble det vist at den bestemte halveringstiden kunne avvike fra litteraturverdien med 0,0% og opptil 1,6%.

Dette prosjektet demonstrerer tydelig fleksibiliteten som tilbys ved å legge til digitale undervisningsmetoder i den eksisterende verktøykassen og understreker fordelene med RoboLab som en ny tilnærming til utdanning, samt viktigheten av å implementere slike virtuelle instrumenter for å fremme radio- og kjernekjemi.

Innholdsfortegnelse

Forord.....	V
Sammendrag.....	VII
Forkortelser	1
1 Introduksjon	3
1.1 Bakgrunn for oppgaven.....	3
1.1.1 CINCH-samarbeidet.....	4
1.1.2 Tidligere RoboLab-øvelser.....	6
1.1.3 Digital læringsressurs	12
1.2 Mål og hensikt med oppgaven.....	13
1.3 Oppgavens struktur.....	14
2 LabVIEW og instrumentstyring	16
2.1 LabVIEW-miljøet.....	16
2.1.1 Generell oppbygging av et LabVIEW-program	18
2.1.2 State machine	20
2.2 Instrumentstyring.....	21
2.3 Et TTL-system.....	22
2.4 Digital I/O	22
3 Det radiokjemiske grunnlaget for øvelsen.....	27
3.1 Nuklidegenerator	27
3.1.1 Generelle aspekter av radioaktivitet	27
3.1.2 Batemans ligning og mor-datter relasjon	29
3.1.3 Radioaktiv likevekt.....	29
3.1.4 En ideell nuklidegenerator.....	31
3.2 Ionebytting	32
3.2.1 Separasjon med kolonnemetoden.....	34
3.2.2 Gjennomstrømningshastighet.....	37
3.3 Geiger-Müller-teller.....	38
3.3.1 Bruk av Geiger-Müller-teller i denne masteroppgaven	39
4 Utvikling av en generisk RoboLab-mal	40
4.1 Oppgradering av NAA-RoboLab	40
4.1.1 SystemLink Cloud.....	42
4.1.2 Videooverføring	42
4.1.3 Brukeraksepttesting	43
4.2 Videreutvikling av RoboLab-mal.....	44
5 Utvikling av en simulert ^{234m} Pa-nuklidegenerator	47
5.1 Kjemisk bakgrunn for ^{234m} Pa-nuklidegeneratorøvelsen	47

5.2	Fastsetting av studentenes læringsmål.....	50
5.3	Simuleringens brukergrensesnitt	51
5.4	Forsøksinstruksjoner for den simulerte øvelsen	53
5.5	Den simulerte øvelsen som en del av kurset KJM5912.....	54
6	Realisering av nuklidegeneratorsystemet	57
6.1	Utstyr og kjemikalier.....	57
6.1.1	Ventilsystemet	58
6.1.2	Vakuumsystemet	58
6.1.3	Trykksystemet	58
6.1.4	Prøvetransport	59
6.1.5	Deteksjon.....	59
6.1.6	Kjemikaler og materialer.....	59
6.1.7	HMS-vurdering	61
6.2	Manuell test og optimalisering av eksisterende laboratorieprosedyre.....	63
6.2.1	Kalibrering av detektoren	63
6.2.2	Prosedyreoptimalisering	64
6.2.3	Regenerering	70
6.2.4	Optimal prosedyre for kolonnepreparering	74
6.3	Optimalisering av det fjernstyrte oppsettet.....	74
6.3.1	Strategi.....	74
6.3.2	Undersøkelse av flytmønsteret i den øvre delen av systemet	75
6.3.3	Undersøkelse av gjennomstrømningshastighet	76
6.3.4	Installering av ytterligere avfallsbeholdere	78
6.3.5	Detektorskjerming	79
6.4	Utvikling av serverprogrammet basert på RoboLab-mal	80
6.4.1	Initialisering.....	80
6.4.2	Hovedprogrammet.....	80
6.5	Funksjonstest av det fjernstyrte systemet	83
6.5.1	Regenerering i det fjernstyrte systemet	87
6.5.2	Oppsummering av funksjonstesten.....	91
7	Konkluderende bemerkninger og videre arbeid	93
	Referanser.....	95
	Appendiks.....	100

Forkortelser

AC	Vekselstrøm (alternating current)
AR	Utvidet virkelighet (augmented reality)
CINCH	Cooperation in Education in Nuclear Chemistry
DAQ	Data Acquisition (datainnsamling)
DC	Likestrøm (direct current)
DVB	Divinylbenzen
GM	Geiger–Müller (-detektor)
HoT	Hands-on-Training (praktiske kurs)
I/O	Inngang/utgang (input/output)
IEC	Ion exchange chromatography
IRS	Institut für Radioökologie und Strahlenschutz
JS	JavaScript
JSLI	JavaScript Library Interface
MAX	Measurement & Automation Explorer
MCA	Flerkanalsanalysator (multichannel analyser)
MEET(-CINCH)	A Modular European Education and Training Concept
MOOC	Massive Open Online Course
NC	Normally closed
NI	National Instruments
NO	Normally open
NRC	Nuclear and Radiochemistry
NAA	Nøytronaktiveringsanalyse
SAT	Systematic Approach for Training
SCA	Enkanalsanalysator (single-channel analyser)
SubVI	Subrutine i et virtuelt instrument
TTL	Transistor-transistor logikk
UAc	Uranylacetat
UI	Brukergrensesnitt (user interface)
VI	Virtuelt instrument
VR	Virtuell virkelighet (virtual reality)

1 Introduksjon

1.1 Bakgrunn for oppgaven

Ved å bruke moderne datastyrt maskinvare er fjernstyring av et eksperiment i et ekte radiokjemisk laboratorium mulig, selv på et begrenset budsjett. Dette ble demonstrert i et pilotprosjekt ved Universitetet i Oslo (UiO) i perioden 2006-2009, hvor to slike fjernstyrte øvelser ble utviklet og brukt i grunnkurs i radiokjemi. De fjernstyrte øvelsene ble kalt *RoboLab*, en betegnelse som siden den gang har blitt benyttet for slike laboratorieøvelser.

Fjernstyrte øvelser kan enten brukes som frittstående, selvstendige øvelser eller som forberedelsestrening før man går inn i et ekte laboratorium. Den typen øvelser vil spesielt være av verdi for institusjoner uten laboratorier klassifisert for radioaktivt arbeid, eller når laboratoriet har begrenset utstyr og radioaktive kilder. RoboLab kan også være et nyttig supplement for institusjoner med velutstyrte radiokjemilaboratorier ved at det vil variere undervisningen og gi fleksibilitet i gjennomføringen av oppgaver.

I lyset av COVID-19 pandemien har bruken av RoboLab-øvelser tydelig demonstrert fleksibiliteten som tilbys ved å legge til digitale undervisningsmetoder i undervisningsverktøykassen¹. Det bør likevel understrekes at uansett hvor nyttige slike fjernundervisningsmetoder kan anses å være, vil de aldri erstatte praktisk trening i et fysisk laboratorium.

Under CINCH-samarbeidet, beskrevet senere i kapittel 1.1.1, ble det etablert to vertsteder for RoboLab øvelser – et ved Institut für Radioökologie und Strahlenschutz (IRS) i Hannover og et ved UiO – som gir fjerntilgang til totalt fem fjernstyrte øvelser basert på RoboLab-konseptet. En sjette øvelse ble påbegynt ved UiO, men ble ikke brakt frem til operativ status.

Valget av radiokjemiovelser som skulle automatiseres i forbindelse med RoboLab var basert på et ønske om å komplementere innholdet i typiske grunnkurs i radiokjemi, men også på tilgjengelig utstyr og erfaring. De to første øvelsene utviklet i Oslo var instrumentelle (nøytronaktivering og absorpsjon av γ -stråling), og inneholdt ingen kjemi. Det var derfor viktig at den neste øvelsen som skulle utvikles belyste de kjemiske metodene som typisk benyttes i radiokjemi. Samtidig burde øvelsen basere seg på hva som regnes som en attraktiv og samfunnsviktig prosess innen fagfeltet akkurat nå. Det var åpenbart at en øvelse som tar for seg generering av kortlivede nuklider kunne kaste lys på prinsippet bak produksjon av radiotracere² – en metode som er mye brukt i industrien for å blant annet forbedre produktkvaliteten, spare energi, og redusere forurensing (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY 2013).

¹ Øvelsene ble gjennomført med studenter fra Institut für Radioökologie und Strahlenschutz.

² Radioaktive isotoper som brukes til å følge med på fysiske, kjemiske og biologiske prosesser (Holtebekk og Delphin, tracer 2021).

Bruken av kortlivede radionuklider har også vokst betraktelig i helsesektoren fordi større doser av disse kan gis til sykehuspasienter med minimal stråledose og gir utmerket bildekvalitet (Jurisson og Lydon 1999, Holland, Williamson og Lewis 2010).

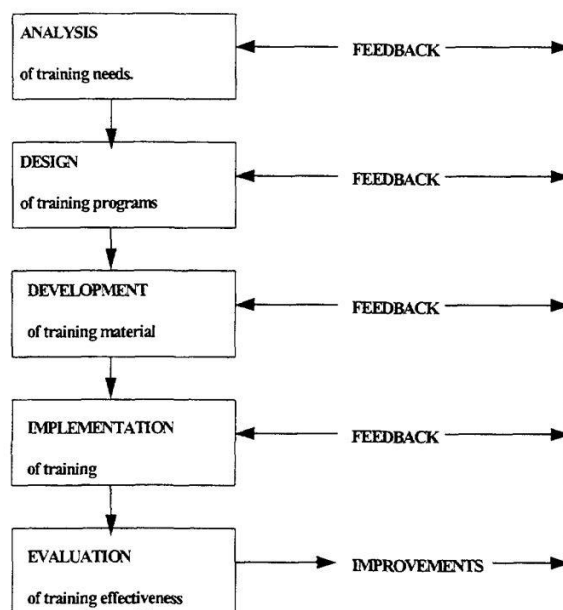
Kortlivede radionuklider må enten produseres direkte i en kjernereaksjon (dette krever enten en nøytronkilde eller en partikkelakselerator), eller separeres fra en langlivet nuklide som har den ønskede nukliden som et datterprodukt. Den siste metoden er svært anvendelig og betydelig billigere enn å ha utstyr som er i stand til å indusere kjernereaksjoner. Kjennskap til hvordan slike radionuklidegeneratorer virker er også en viktig del av grunnutdannelsen i radiokjemi. Det var derfor ønskelig at den tredje øvelsen ved UiO skulle gi studentene muligheten til å både sette opp en radionuklidegenerator og lære hvordan den brukes.

1.1.1 CINCH-samarbeidet

I tidsrommet 2010 til 2016 ble det gitt støtte gjennom Euratom FP7 til to prosjekter for å styrke undervisningen og rekrutteringen til radiokjemi:

- CINCH-I: Cooperation in Education in Nuclear Chemistry,
- CINCH-II: Cooperation and training in Education in Nuclear Chemistry.

Hensikten med prosjektene var å redusere mangel på kompetanse innen kjernekjemi på master- og doktorgradsnivå, og motvirke nedgangen i antall kvalifiserte ansatte i fagfeltet. Prosjektene ble bygget rundt den velprøvde fem-fase Systematic Approach for Training (SAT) utviklet av IAEA (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY 2021) (Figur 1-1).



Figur 1-1: Systematic Approach for Training (SAT). De fem fasene som inngår i denne tilnærmingen er analyse, design, utvikling, implementering og evaluering. Figuren er hentet fra side 2 i IAEA-TECDOC-1057 (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY 1998).

SAT er en fremgangsmåte som går ut på å først identifisere kompetanse som kreves for å utføre en jobb, og deretter utvikle og gjennomføre opplæring for å oppnå denne kompetansen, samt gjøre en påfølgende evaluering av opplæringen. I løpet av CINCH-I ble opplæringsbehovene til de større aktørene i det nukleære fagfeltet identifisert og evaluert, og informasjon om universitetspensum i kjernekjemi ble samlet. Det ble følgelig foreslått optimale læringsplaner for kjernekjemiutdanninger på master- og doktorgradsnivå (John 2013).

Mens CINCH-I tok for seg de tre første fasene av SAT konsentrerte CINCH-II seg om implementering av det som ble oppnådd i det forrige prosjektet (Koran 2013). CINCH-II ble, blant annet, avsluttet med etablering av et europeisk nettverk for opplæring og trening i nukleær- og radiokjemi (forkortet NRC³) – *European Network on Nuclear and Radiochemistry Education and Training*. Hovedformålet med samarbeidet er å bidra til å styrke interessen for NRC-feltet i Europa ved å fremme NRC blant europeiske utdanningsinstitusjoner, organisere kurs og studentutveksling relatert til NRC, samt føre aktive promoteringskampanjer (NRC Network u.d.). Helt siden dette samarbeidet startet, har det årlig blitt arrangert flere Hands on Training (HoT)-kurs og sommerskoler for studenter med interesse for fagfeltet.

For å ta vare på og videreføre arbeidet og resultatene som ble oppnådd i de to forrige CINCH-prosjektene, ble ytterligere et prosjekt i CINCH-serien innvilget i 2017: MEET-CINCH (A Modular European Education and Training Concept in Nuclear and Radiochemistry). MEET-CINCH tok

³ Nuclear and Radiochemistry

imidlertid ikke bare sikte på «vedlikehold» av de forrige resultatene, men skulle også ha som mål å bringe disse til sluttbrukeren, rekruttere nye talenter og øke bevisstheten på NRC blant annet ved å utvikle en MOOC – Massive Open Online Course. Videre ble anvendeligheten til det moderne Flipped Classroom⁴-konseptet utprøvd i NRC-undervisning og opplæring.

Det nyeste tilskuddet til CINCH-prosjektserien er A-CINCH (Augmented CINCH, startet opp i 2020). Konseptet til A-CINCH er å bruke VR (virtuell virkelighet)- og AR (utvidet virkelighet)-teknologi for å utvikle virtuelle NRC-laboratorier kalt *VR-Lab*. VR-Lab skal – sammen med MOOC, Flipped Classroom, RoboLab, HoT, og flere – produsere relevant innhold for lærere og studenter. Materialet skal også kunne brukes for allmenn opplysning om hvor nyttig og viktig radiokjemi er, og for å øke kunnskapsferdighetene og kompetanse hos ansatte i NRC-feltet (Cirillo 2022).

1.1.2 Tidligere RoboLab-øvelser

1.1.2.1 Nøytronaktiveringsanalyse av sølv (UiO)

Det aller første eksempelet av et RoboLab-system som ble utviklet og tatt i bruk ved UiO er en øvelse som går ut på nøytronaktiveringsanalyse (NAA) av sølv. Denne applikasjonen, som ble utviklet i LabVIEW (forkortelse for Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench) (beskrevet i kapittel 2), gir studentene muligheten til å lære de grunnleggende prinsippene for nøytronaktiveringsanalyse ved å utføre et bestrålingseksperiment fra deres lokale datamaskin; en 22 g sølvplate, montert på en holder som glir på en trykkregulert transportskinne, sendes inn til nøytronbestrålingskammeret hvor den blir bombardert med nøytroner i en forhåndsinnstilt tidsperiode. Figur 1-2 viser det fysiske oppsettet.

⁴ Undervisningsmetode der studentene går gjennom forelesningene/pensum hjemme, mens undervisningstiden brukes på interaktiv læring (O'Flaherty og Phillips 2015).



Figur 1-2: Det fysiske oppsettet for NAA-øvelsen. Ventilene som styrer transportskinnen er montert på veggen. Sølvplaten sendes til nøytronaktiveringsposisjon gjennom en passasje i veggen. Brukeren kan se når sølvplaten er tilbake ved detektorposisjon (i blytårnet) ved å blant annet se på refleksjonen i speilet som overvåkningskameraet er rettet mot.

Nøytronene stammer fra en 370 GBq $^{238}\text{Pu}/\text{Be}$ -kilde. Aktivering av de stabile sølvisotopene i sølvplaten resulterer i to kortlivede sølvisotoper i henhold til følgende kjernereaksjoner:



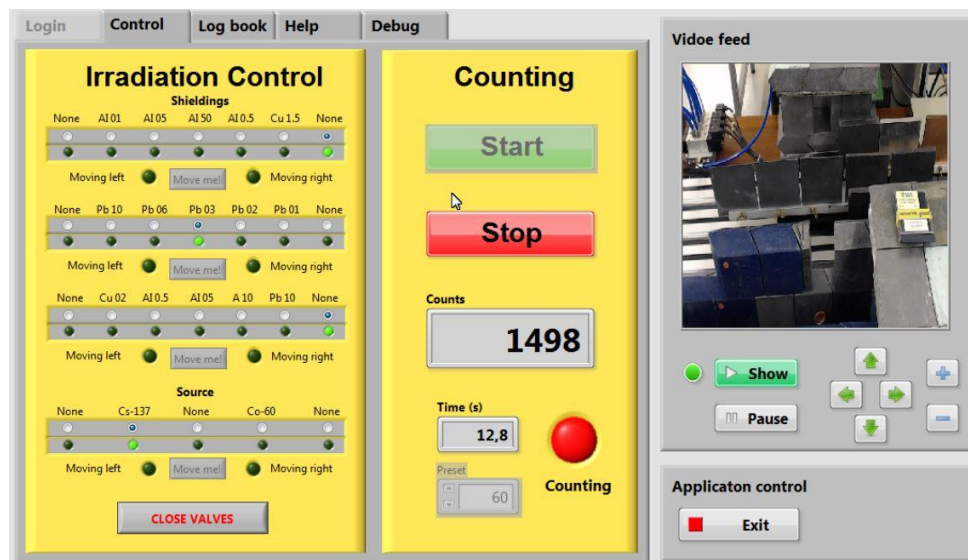
Når den brukerbestemte bestrålingstiden utløper overføres sølvplaten til en 2" natriumjodid (NaI) γ -detektor i den andre enden av skinnen. Detektoren er koblet til en enkanalsanalysator (SCA) (eng.: *single-channel analyser*) som måler γ i 600-700 keV-området fra de produserte sølvisotopene. Det forhåndsinnstilte energiintervallet dekker både 633 keV fra ^{108}Ag og 658 keV fra ^{110}Ag .

Ved å måle emisjon som funksjon av tid i passende (brukerbestemte) tidsintervaller, kan desintegrasjonskurven for de to isotopene måles. Øvelsen gir innsikt i kjernereaksjoner, nøytronaktivering, desintegrasjonsegenskaper, måling av γ -stråling, analyse av desintegrasjonskurver, og

mer. Nettopplikasjonen som brukes av studenten kan tilpasses et ønsket læringsutbytte uten å endre det fysiske RoboLab-oppsettet.

1.1.2.2 Absorpsjon av gammastråling i materie (UiO)

En annen fjernstyrt øvelse som ble utviklet ved UiO tar for seg absorpsjon og deteksjon av gammastråling der brukeren betjener tre parallelle, pneumatisk-opererte skinner med ulike skjermingsmaterialer og tykkelser (Figur 1-3).



Figur 1-3: Brukergrensesnittet til gammaabsorpsjonsøvelsen utviklet ved UiO. Et utsnitt av oppsettet kan sees i videooverføringen til høyre. Skjermingsmaterialene som er tilgjengelige er aluminium, bly, og kobber i ulike tykkelser.

Skjermingsmaterialene er plater som måler 10 cm x 10 cm, som hver har syv forhåndsdefinerte posisjoner. Brukeren velger en av de forhåndsdefinerte posisjonene, og ber systemet (ved å klikke på den tilsvarende «flytt meg»-knappen) om å flytte absorbatoren(e) på plass mellom kilden og detektoren. Siden det er tre parallelle spor, kan brukeren velge hvilken som helst kombinasjon av opptil tre absorbatører (se Figur 1-3 for detaljer om det fysiske oppsettet).

Måling av gammastrålingen utføres av en 3" NaI-detektor, satt opp med en SCA. Variasjon i tellehastigheten for γ fra en ^{137}Cs -kilde som funksjon av absorpsjonsmateriale, og dens tykkelse, kan deretter måles. Systemet er forberedt for utvidelse til å bruke tre forskjellige γ -strålekilder (f.eks. ^{57}Co , ^{137}Cs og ^{60}Co), men dette vil kreve måling av hele γ -strålespekteret med en flerkannelsanalysator (MCA) (eng.: *multichannel analyser*), eller at det brukes en SCA for hver kilde. Dette kan enkelt legges til systemet slik det er bygget i dag, men vil kreve ytterligere investeringer i telleelektronikk og programmering.

LabVIEW-brukergrensesnittet (se Figur 1-3) for adsorpsjonsøvelsen gir en enkel oversikt over posisjonen til sporene som bærer absorbatorplatene. Brukeren får tilbakemelding via magnetiske

sensorer montert langs sporene, som vises som LED-indikatorer i brukergrensesnittet. Sporene presenteres skjematisk i venstre del av web-grensesnittet, sammen med knapper for å kontrollere det. I midten av brukergrensesnittet styres og leses SCA-telleren. Her kan brukeren også stille inn tid for ønsket telleperiode. Tellingene startes ved å klikke på startknappen (som også vil nullstille telleren). Brukeren venter deretter på at den forhåndsinnstilte tiden nås, eller stopper tellingen manuelt. Antall tellinger skal da skrives ned av brukeren. Til venstre på brukergrensesnittet er en videooverføring som gir en visuell tilbakemelding om posisjonen til absorbatorene. Videooverføringen kan panoreres og zoomes digitalt, slik at brukeren kan inspisere detaljer ved det fysiske systemet i laboratoriet.

Slik som andre RoboLab-øvelsene, styres systemet via et program utviklet i LabVIEW. Systemet bruker et PXI⁵-chassis med PXI-type I/O⁶-moduler fra National Instruments (måle- og kontrollkonsol utviklet for industriell bruk). PXI-modulene er imidlertid svært kostbare, men kunne kjøpes inn da National Instruments tilbød dem til en svært rabattert pris til universitets- og høyskolesektoren (Jon Petter Omtvedt, personlig kommunikasjon, 2022). De nyere RoboLab-systemene benytter de billigere og mer brukervennlige USB-baserte modulene fra samme produsent.

De opprinnelige RoboLab-øvelsene benyttet seg av en svært enkel metode bygget inn i LabVIEW til å lage web-baserte brukergrensesnitt av LabVIEW-applikasjoner. Det var imidlertid nødvendig at man på web-brukersiden installerte en programvareutvidelse ⁷ for å kunne bruke oppsettet. Programvareutvidelsen skapte, over tid, problemer for brannmurene til ulike institusjoner. Samtidig var det helt nødvendig at den installerte programvareutvidelsen var av lik versjon som LabVIEW-utviklingsverktøyet som ble brukt til å kompilere applikasjonen. Med opptil flere LabVIEW versjoner hvert år ble det med tiden et problem å sørge for at brukerne hadde korrekt programvareutvidelse for hver enkel oppgave.

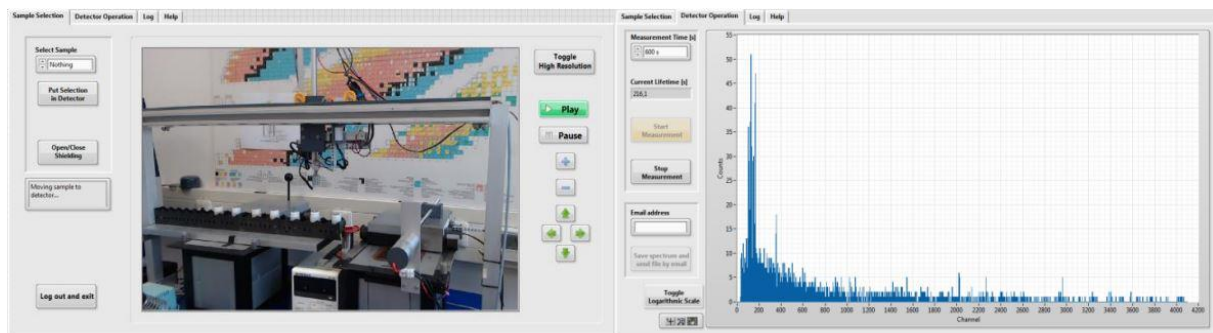
1.1.2.3 GammaLab (IRS)

Det fjernstyrte GammaLab-eksperimentet utviklet ved IRS i Hannover har til hensikt å lære bort gammaspektroskopi, med fokus på måling av «miljøprøver» (Fournier og Omtvedt 2016). Med miljøprøver menes prøver som er tatt fra for eksempel jordsmonn eller andre steder i naturen. Dette illustrerer hvor følsom γ -spektroskopi er for måling av svært små og moderate mengder radionuklider i naturen. For å holde prisene nede ble NXT-motorer fra Lego Mindstorm brukt i eksperimentoppsettet som er vist på bildet til venstre i Figur 1-4. Systemet gjør det mulig, ved bruk av fjernstyring, å plassere forskjellige prøver foran en godt skjermet germaniumdetektor. Blylokket til skjermingen er fjernstyrt, slik at selv svake prøver kan måles.

⁵ Forkortelse for PCI extensions for instrumentation.

⁶ Forkortelse for inngang/utgang (eng.: *input/output*).

⁷ Programvareutvidelse blir ofte forkortet til *plug-in*.



Figur 1-4: Brukergrensesnitt til GammaLab utviklet i LabVIEW ved IRS. Brukeren kan velge, flytte og måle prøver, samt hente ut måleresultatene (høyre) via e-post. Gjennom videooverføringen (venstre) kan eksperimentet følges i sanntid (Fournier og Omtvedt 2016).

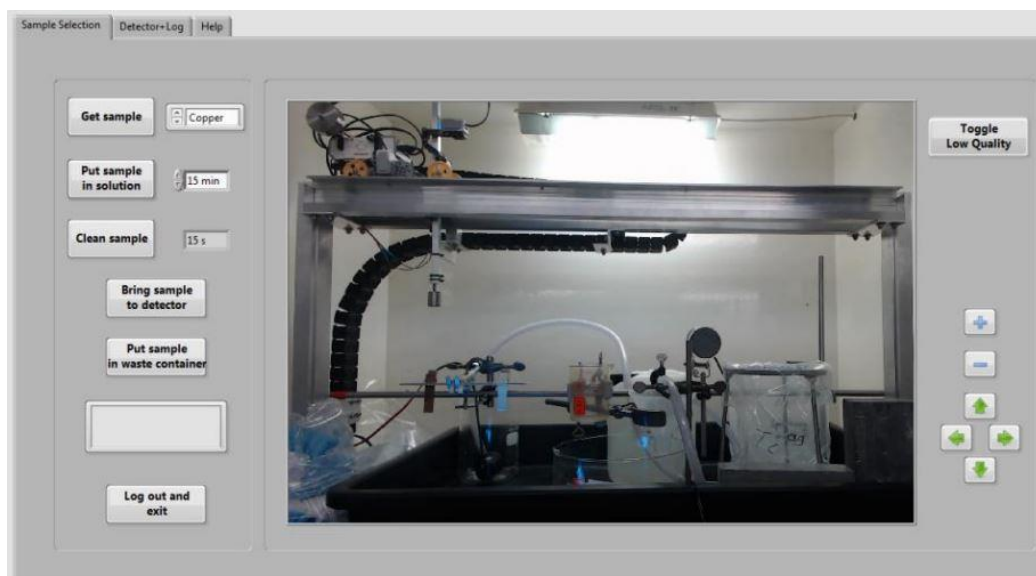
Til forskjell fra RoboLab-oppsettene ved UiO, måler GammaLab-oppsettet γ -energispetra, ved hjelp av en MCA, og ikke kun tellinger fra en SCA. Spektrene overføres til brukeren som selv må analysere dem. Øvelsen gir derfor både innsikt i hvordan svake γ -prøver kan måles og praktisk opplæring i analyse av γ -spektra, samt kalibrering av systemet.

Blant de tilgjengelige prøvene som kan måles finner man:

- En utarmet uranpellet som inneholder nuklider fra ^{238}U - og ^{235}U -desintegrasjon,
- Monazitt-sand som for det meste inneholder radionuklidene fra ^{232}Th -kjeden,
- Forurenset jord fra en IAEA-studie (^{226}Ra -forurensning),
- En prøve hentet fra Fukushima-reaktoren etter ulykken.

1.1.2.4 AutodepositionLab (IRS)

Med dette oppsettet kan brukeren kontrollere et autodeponeringseksperiment over internett (Fournier og Omtvedt 2016). Autodeponering betyr avsetning av ioner fra en elektrolytt på en metalloverflate. I Figur 1-5 vises brukergrensesnittet, som også viser et bilde av det fysiske eksperimentoppsettet. Igjen ble Lego Mindstorm NXT brukt til å lage en fjernstyrt robotarm som gjør det mulig å flytte en metallisk stripe til forskjellige stasjoner. Det har vist seg at Lego Mindstorm-komponentene ikke er like mekanisk slitesterke som mer kostbare komponenter beregnet for industriell bruk. For fremtidige prosjekter vil det derfor være mer hensiktsmessig å benytte mer «profesjonelle» komponenter, gitt at det finnes midler for innkjøp av slike (Jon Petter Omtvedt, personlig kommunikasjon, 2022).

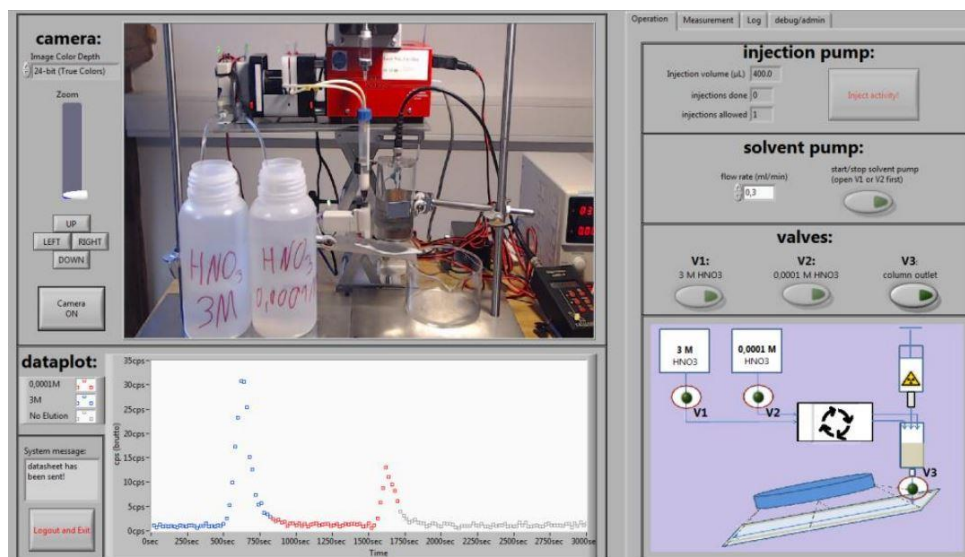


Figur 1-5: Brukergrensesnittet til AutodepositionLab utviklet ved IRS. Eksperimentet observeres i sanntid via videooverføring (bildet i figuren) (Fournier og Omtvedt 2016).

Læringsmålet med dette eksperimentet er å demonstrere hvordan elektrokjemiske deponeringsteknikker potensielt kan brukes for selektiv måling av radionuklider. Etter å ha utført en blankmåling av metallstrimmelen (av for eksempel jern), dyppes strimmelen i en ammoniumperteknetat-løsning $\text{NH}_4^{99}\text{TcO}_4$. Når autodeponeringsprosessen er ferdig må strimmelen skylles med vann før det foretas en måling. Denne målingen vil vise at radioaktivitet har avsatt seg på stålstrimmelen. Det er også mulighet for å gjenta eksperimentet med et mer edelt metall som for eksempel kobber hvor ^{99}Tc -perteknetat ikke vil avsettes på.

1.1.2.5 IonLab (IRS)

Det fjernstyrte IonLab-eksperimentet (brukergrensesnittet er vist i Figur 1-6) demonstrerer kjemisk separasjon av radionuklidene ^{90}Sr og ^{90}Y ved hjelp av en ionebytterkolonne.



Figur 1-6: Brukergrensesnittet til IonLab utviklet ved IRS. Grensesnittet er delt inn i tre deler: en videooverføring der brukeren følger eksperimentet i sanntid, et kromatogram, og et område der brukeren kan styre eksperimentet. Det animerte oppsettet nederst i høyre hjørne kan også brukes til å følge med på statusen til eksperimentet.

Et videokamera lar brukeren observere eksperimentet i sanntid. Som i alle andre RoboLab-øvelser er utstyret allerede satt opp, men brukeren er ansvarlig for å betjene det, hente data og tolke resultatene. Systemet plotter elueringskurven ved å måle tellehastigheten til løsningen som har passert kolonnen som funksjon av tid. Læringsmålet er å forstå ionebytterkromatografi og hvordan bruk av radiotracere enkelt og effektivt kan detekteres i et slikt system.

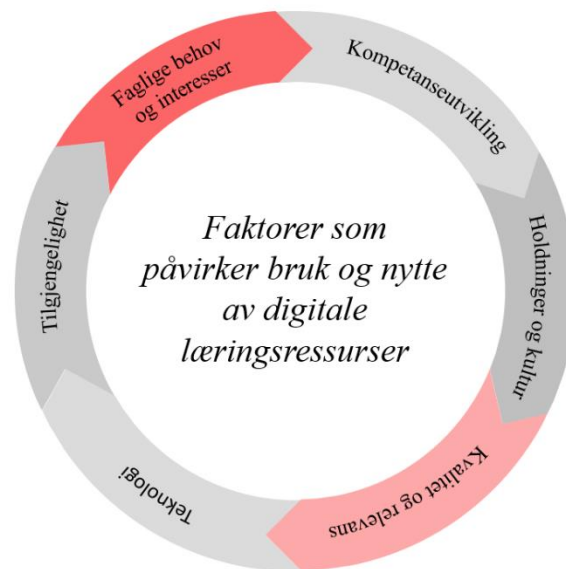
1.1.3 Digital læringsressurs

Som det kommer fram over, er RoboLab tenkt å være en fagdidaktisk, digital læringsressurs. Det finnes mange definisjoner av en *digital læringsressurs*, og for å trekke frem et eksempel definerer Synnevåg (2008) (s. 19) digitale læringsressurser som «[...] både enkeltstående læringsressurser og en samling læringsressurser relatert til den sammenhengen de opptrer i, det vil si tekst, bilde, video/film, lyd, spill og simuleringer [...]». Hvilken rolle slike ressurser har i å styrke studentenes læring, og hva som skal til for at digitale læringsressurser skal regnes som pedagogiske blir undersøkt i NIFU⁸ sin rapport (Korseberg, Svartefoss og Hovdhaugen 2022). Her nevnes blant annet en meta-analyse av forskningslitteratur som omfatter bruk av digital teknologi i høyere utdanning i perioden mellom 1990 og 2010 utført av Schmid, et. al. (2014). Det fremheves fire karakteristiske hovedtrekk ved pedagogisk anvendelse av slik teknologi:

⁸ Nordisk institutt for studier av innovasjon, forskning og utdanning

- 1) Digital teknologi skal fremme kommunikasjon, samt bidra til en høyere nivå av interaksjon mellom involverte individer;
- 2) Den digitale teknologien skal muliggjøre, tilrettelegge og støtte kognitiv læring⁹ hos studentene (f.eks. simuleringer, wikier og tilbakemeldinger);
- 3) Den digitale teknologien skal muliggjøre og forenkle innhenting av (ytterlig) informasjon (f.eks. nettlenger og elektroniske databaser);
- 4) Den digitale teknologien skal aktivere og forbedre lærerens formidling av informasjon (f.eks. digitale presentasjoner, grafiske visualiseringer og digital veiledning).

Hvis disse punktene blir tatt hensyn til under realiseringen av RoboLab-øvelsene, kan sluttproduktet potensielt regnes som en rimelig tilnærming til innovasjon. I Store Norske Leksikon blir ordet *innovasjon* definert som nyskaping eller fornyelse av noe som skaper verdi for virksomhet eller samfunnet (Ørstavik 2022). Figur 1-7 gir eksempler på faktorer som kan bidra til at RoboLab (som en digital læringsressurs) skaper verdi og nytte for fagfeltet, men også faktorer som kan hemme dette.



Figur 1-7: Innovasjonssirkelen tar for seg faktorer som kan påvirke - både fremme og hemme - bruk og nytte av digitale læringsressurser. Figuren er en adaptert og modifisert versjon av Figur 4 i «*Deling av digitale læringsressurser*» (Synnevåg 2008). Alle endringer er gjort med tillatelse fra rettighetshaver.

1.2 Mål og hensikt med oppgaven

Teknologi har i lang tid reformert utdanningssektoren, og vil med stor sannsynlighet bidra til å skape muligheter for nye, innovative læringsmetoder også i mange år fremover. I skrivende stund er interessen for spesialisering i kjerne- og radiokjemi i Norge økende, men utdanningskapasiteten er kraftig

⁹ Aktiv læringsprosess gjennom tenking og erfaring. (Svartdal 2020)

nedbygget. Fagfeltet har derfor et umiddelbart behov for å utvide utdanningskapasiteten, både ved å øke bemanning og ved å implementere effektive læringsverktøy (Jon Petter Omtvedt, personlig kommunikasjon, 2022). Alvoret i utdanningssituasjonen for de nukleære fagene illustreres ved at regjeringen i det reviderte statsbudsjettet for 2022 har satt av øremerkede midler til å styrke sektoren. I et utsnitt fra Prop.nr. 115 S (2021-2022) i det reviderte statsbudsjettet står følgende:

«[...] Samtidig trenger vi fagmiljøer som kan gjøre grunnleggende forskning og tilby forskningsbasert utdanning på det nukleære området.» (Finansdepartementet 2022).

Denne masteroppgaven tar for seg bygging og programmering av et robust system som lar brukeren lage en $^{234\text{m}}\text{Pa}$ -radionuklidegenerator gjennom fjernstyring. Arbeidet ble påbegynt lenge før Regjeringens satsning på nukleær sektor, men vil forhåpentligvis kunne bidra til den nødvendige styrkingen av fagfeltet. Den fjernstyrte øvelsen skal komplementere andre digitale lærings- og kunnskapsressurser utviklet som en del av CINCH-prosjektene. De tidligere nevnte punktene for pedagogisk bruk av digital teknologi (Schmid, et al. 2014) vil, i lag med faktorene beskrevet i Figur 1-7, være sentrale premisser for implementering av det nye RoboLab-systemet.

1.3 Oppgavens struktur

Strukturen til denne masteroppgaven avviker fra den klassiske inndelingen til et vitenskapelig skriv av samme type. Kapittel 2 og 3 dekker henholdsvis oppgavens faglige bakgrunn innen programmering, etablering av fjernstyring, og (radio-)kjemi. Kapittel 4, 5, og 6 tar for seg det eksperimentelle arbeidet innenfor henholdsvis en programvaremal for RoboLab-systemer generelt, simulering av radionuklidegeneratorøvelsen, og den tekniske oppbyggingen av det nye RoboLab-systemet. Selv om det er vanlig å samle resultater i ett kapittel, ble det vurdert å være mer hensiktsmessig å oppgi resultater for disse tre forskjellige delprosjektene som en del av hvert tilhørende kapittel. Diskusjon av resultatene skjer også innenfor disse kapitlene. Kapittel 7 inneholder konklusjon og beskriver videre arbeid. Nedenfor er en mer detaljert oversikt over oppgavens hovedkapitler:

- Kapittel 1 er innledning.
- Kapittel 2 beskriver programmeringsmiljøet LabVIEW, dets generelle oppbygging og funksjonalitet. Kapittelet beskriver også signalføring på I/O-grensesnittet og metoder brukt for etablering av kommunikasjon til/styring av instrumentkomponentene.
- I kapittel 3 dekkes det kjemiske og radiokjemiske grunnlaget for øvelsen, samt deteksjonsmetode.
- Kapittel 4 gir en oversikt over det programmeringsmessig viktige forarbeidet som ble gjort i forkant av utviklingen av nuklidegeneratorøvelsen. Kapittelet beskriver den endelige generiske RoboLab-malen. Forarbeidet ble gjort som en del av denne masteroppgaven.

- I kapittel 5 beskrives programmet og funksjonaliteten til den simulerte nuklidegeneratorøvelsen som ble utviklet for å fungere som en forberedelse enten før fysisk laboratorieøvelse eller før RoboLab. Arbeidet med simuleringen var et viktig planleggingssteg for oppbyggingen av det fysiske oppsettet.
- I kapittel 6 beskrives det eksperimentelle arbeidet som utgjør den største delen av oppgaven. Her anvendes både RoboLab-malen og mye av logikken i den simulerte øvelsen for å bygge et fysisk nuklidegeneratorsystem. Kapitlet tar for seg oppbygging, optimalisering og programmering av den fysiske, fjernstyrte RoboLab-øvelsen.
- Kapittel 7 konkluderer arbeidet med den fjernstyrte nuklidegeneratorøvelsen, og foreslår steg for videre arbeid.

2 LabVIEW og instrumentstyring

2.1 LabVIEW-miljøet

Tradisjonelt har måleutstyr og instrumenter, enten disse er benyttet til forskning/utvikling eller industrielle oppgaver, vært bygget opp av dedikerte mekaniske og elektroniske enheter. Elektronikken var typisk koblet opp med mekaniske brytere og indikatorlamper, samt viserinstrumenter. Som så mye annet i samfunnet har den digitale revolusjonen i betydelig grad endret måten måleutstyr og instrumenter konstrueres på. I dag inneholder de fleste instrumenter en eller flere mikrokontrollere og digitale komponenter som erstatter store deler av den analoge elektronikken. Dette gir økt fleksibilitet og billigere produkter. For eksempel kan mange oppgraderinger gjøres ved å endre programmet som styrer mikrokontrolleren istedenfor å utføre mekaniske endringer eller lage nye kretskort.

Utviklingen av datateknologien har resultert i kompakte og rimelige datamaskiner (eng.: *personal computer*, forkortes til «PC»). Den avanserte og kraftige datateknologien som driver slike datamaskiner gjør det mulig å lage såkalte «virtuelle instrumenter». Her bruker man typisk datamaskinens skjerm som et instrumentpanel og mus/tastatur som brytere og kontrollknapper. Mesteparten (eller alt) av mekaniske komponenter i et tradisjonelt instrumentpanel er erstattet av PC-en og det underliggende programmet som styrer denne. Med andre ord kan hele instrumentbrukergrensesnittet «bygges» med programmering. Kapasiteten til datamaskinene gir dessuten en lang rekke ytterligere muligheter, for eksempel logging og prosessering av data, samt grafisk fremstilling av disse.

Forutsetningen for slike virtuelle instrumenter er selvfølgelig at datamaskinen kan hente data fra det aktuelle instrumentet og sende data tilbake, samt kontrollere og bestemme (styre) hvordan instrumentet oppfører seg. Dette ble gjort mulig ved å bygge *grensesnittkort* som kunne bygges inn i datamaskinene. Trolig nettopp muligheten for å kunne inkludere slike kort i de personlige datamaskinene var en av grunnene til at de ble så populære – et slikt innstikkskort kunne brukes for å utvide funksjonaliteten på et ønsket område, enten det var for å få bedre grafikk, ekstra lagringsenheter, nettverkstilgang, eller annet. Spesialbygde innstikkskort kunne derfor bygges for å kommunisere med tradisjonelle instrumenter. Typisk vil et slikt kort inneholde analoge og/eller digitale «kanaler». For eksempel kunne (og kan) et spenningsignal som tradisjonelt bestemte utslaget på et viserinstrument leses inn av en analog inngang på kortet og bearbeides og/eller vises frem på skjermen som en tilsvarende tallverdi. En bryter kan erstattes av et relé som styres av en digital utgang. Digitale signaler har to tilstander – på eller av – og kan derfor enkelt kontrollere en bryter. Brytere med flere valg kan styres ved å kombinere to eller flere digitale utganger (to digitale linjer vil til sammen kunne velge mellom fire posisjoner, tre linjer kan velge mellom åtte posisjoner osv.). Dette vil bli nærmere forklart i kapittel 2.3 og 2.4.

En av pionerne innen utviklingen av maskinvare (innstikkskort for PC-er) og programvare for å bygge virtuelle instrumenter slik som beskrevet ovenfor, var National Instruments Corp. (NI). NI laget

innstikkskort for generell bruk som ikke bare gjorde det mulig for tradisjonelle produsenter av instrumenter og måleutstyr å digitalisere disse, men også for enkeltpersoner som ønsket å utvikle spesialtilpassede instrumenter for eget bruk. En viktig brukergruppe av denne typen var forsknings- og utviklingsmiljøer som med dette kunne skreddersy egne instrumenter på en måte som tidligere ville vært altfor kostbar og tidskrevende. Eksempler på dette kunne være alt fra å lese et par enkle spenninger fra et eksisterende instrument (for eksempel et pH-meter) til å styre og kontrollere store og komplekse maskiner (for eksempel en vindtunnel for å utvikle biler med minst mulig luftmotstand eller en partikkelakselerator for kjernefysisk forskning). NI sine innstikkskort har blitt svært populære, ikke minst fordi NI også utviklet kraftige programmeringsverktøy for å sette opp virtuelle instrumenter med disse kortene. Et viktig verktøy var – og er – LabVIEW.

LabVIEW er et grafisk programmeringsspråk, hvor all dataflyt visualiseres i kildekoden. I stedet for en lineær sekvens av programmeringskommandoer benytter LabVIEW koblinger mellom noder visualisert på skjermen. Dette gjør det lettere å lese og forstå et gitt program, spesielt for nybegynnere uten programmeringserfaring i klassiske programmeringsspråk. En annen fordel med LabVIEW er det rike biblioteket av grafiske brukergrensesnitt (GUI)-elementer¹⁰. Eksempelvis er avanserte grafiske datafremstillinger enkelt tilgjengelig, og det samme er kraftige og avanserte signalbehandlingsverktøy (slik som forskjellige former for Fourier-transformasjoner og støyfiltreringsmoduler).

Disse fordelene gjør LabVIEW til et godt valg for utvikling av avanserte styrings- og overvåkningssystemer. Det er i dag vanlig at LabVIEW brukes som utgangspunkt for å utvikle dedikerte virtuelle instrumenter. Noen eksempler der LabVIEW og deres produkter har blitt brukt er:

- NASAs test av det avanserte romteleskopet *James Webb Space Telescope* (A. Knapp 2011),
- Styring av en SpaceX *Hyperloop Pod*-prototype ved EPFL¹¹ (Paolone, et al. u.d.),
- Styring og måling av komponenter i *Large Hadron Collider* ved CERN¹² (Losito og Masi u.d.).

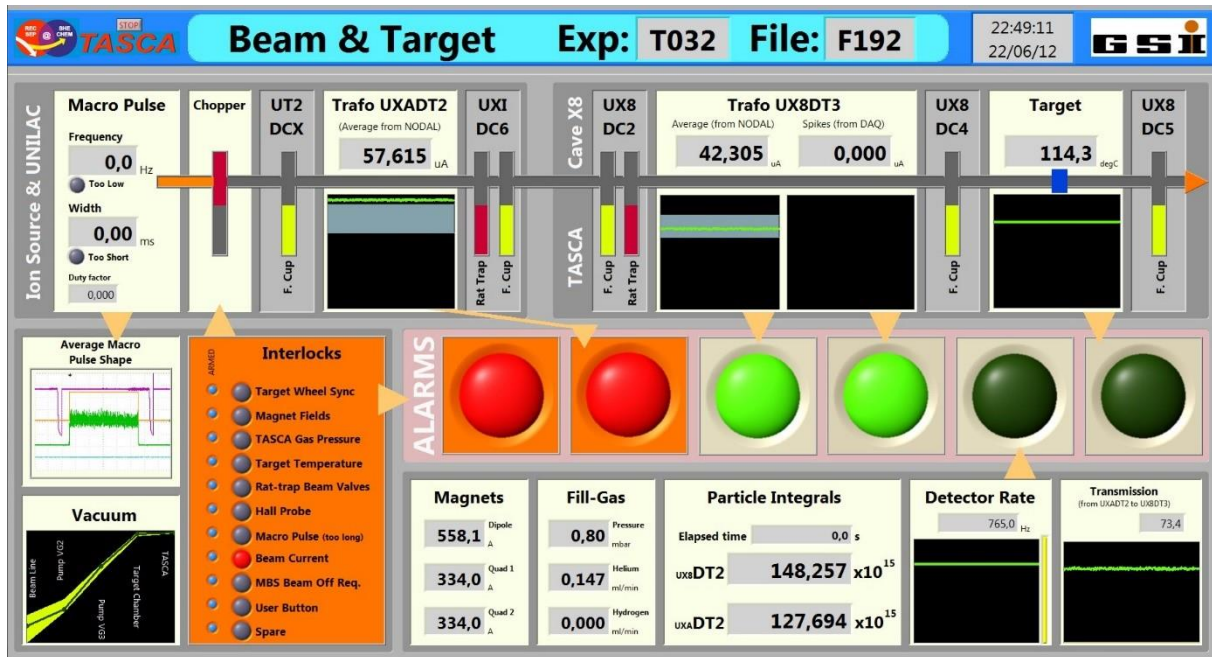
Mange andre eksempler finnes, men ofte er LabVIEW så tett sammenvevd med andre kontrollsystemer og maskin-/software-systemer at det kan være vanskelig å identifisere konkret hvordan LabVIEW benyttes. Det er også vanlig at kontrollsystemene ikke publiseres på lik linje med vitenskapelige resultater. Et eksempel er tungioneakseleratorlaboratoriet GSI i Darmstadt, Tyskland. Radiokjemigruppen ved UiO, ledet av professor Omtvedt, har i mange år vært med på å utvikle styrings- og kontrollsystemer, både for egen instrumentering og for bruk på GSI. Et av de utviklede

¹⁰ GUI er et brukergrensesnitt der brukeren av et dataprogram kan samhandle med datamaskinen gjennom GUI-elementer. Disse kan være input-elementer (knapper, tekstbokser, lister, etc.), navigasjonselementer (ikoner, rullefelt, etc.), informasjonselementer (hjelpvindu, meldingsbokser, notifikasjoner, etc.), og mye mer.

¹¹ Forkortelse for École polytechnique fédérale de Lausanne.

¹² Den europeiske organisasjon for kjernefysisk forskning.

styringssystemene er for den gassfylte «TASCA»-separatoren som benyttes til eksperimenter med supertunge grunnstoff ($Z > 104$). Det virtuelle eksperimentpanelet er gjengitt i Figur 2-1 nedenfor.



Figur 2-1: Skjerm bilde av brukergrensesnittet til «TASCA»-separatoren ved GSI, Tyskland.

Skjerm bildet er tatt av professor Jon Petter Omtvedt i 2012, og brukes med tillatelse (Jon Petter Omtvedt, personlig kommunikasjon i e-post, 2022).

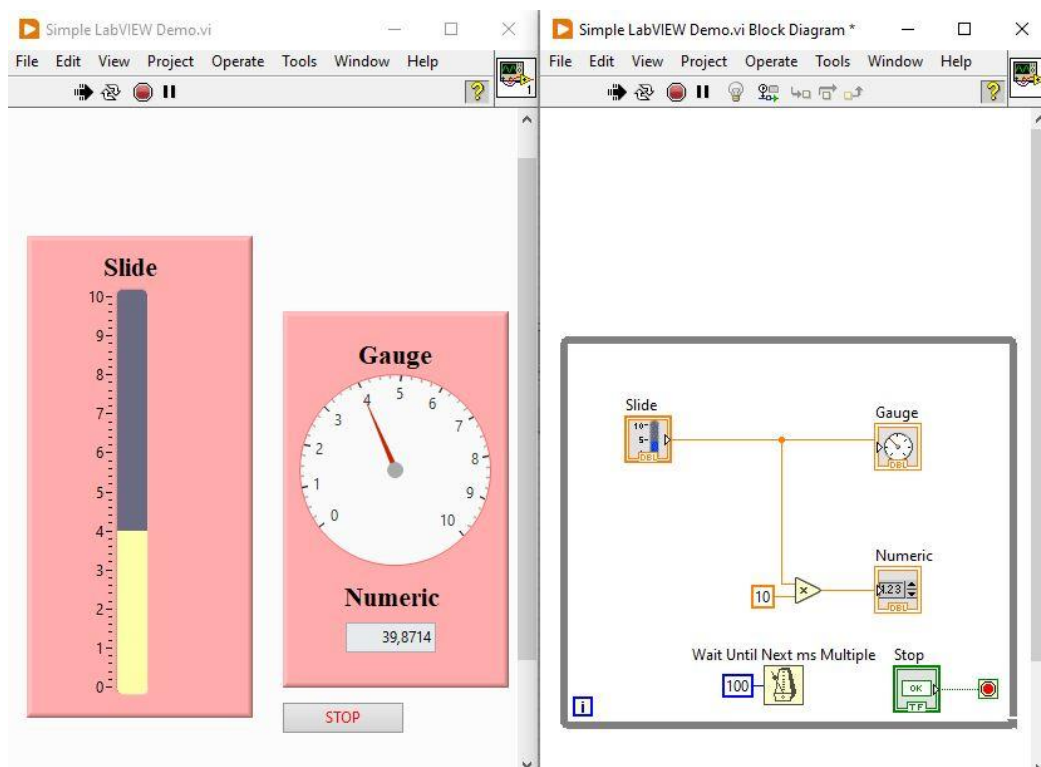
Elektromagneter for å styre partikkelstrålen, vakuumnivå og -ventiler, Faraday-kopper og transformatorer (som måler partikkelstrålens intensitet), pulssynkronisering, feilmeldinger, og mye mer overvåkes og styres av flere LabVIEW-programmer som samspiller i sanntid. Systemet kommuniserer også med det generelle kontrollsystemet for lineærakseleratoren som har tusenvis av parametere, der mange av disse er samlet inn med LabVIEW-applikasjoner (Jon Petter Omtvedt, personlig kommunikasjon, 2022)

2.1.1 Generell oppbygging av et LabVIEW-program

Et LabVIEW-program består av to vinduer – frontpanelet og blokkdiagrammet. Når et program er ferdigstilt, vil frontpanelet være det virtuelle laboratorieinstrumentet med egendefinert GUI-design bestående av brytere, målere, grafer og mye mer. Frontpanelet er programmets brukergrensesnitt; det setter opp et samspill mellom det å levere input til, og observere output fra, programmet mens det kjører.

Blokkdiagrammet inneholder den faktiske LabVIEW-programmeringskoden. Her finner man de grafiske ikonene som man velger fra LabVIEW sine biblioteker. Hvert ikon representerer en blokk med underliggende eksekveringskode som utfører en bestemt, nyttig funksjon. Oppgaven til programmereren er å sette opp koblinger mellom ikonene gjennom en prosess som kalles *wiring*, slik at dataflyten mellom disse blir riktig med hensyn til ønsket formål.

Et enkelt eksempel som viser frontpanel og blokkdiagram er vist i Figur 2-2 nedenfor. Eksempelen viser en stillbar velger langs en skala («Slide») som genererer et tall mellom 0 og 10. Tallverdien vises på en klokke («Gauge») og i et numerisk felt («Numeric»). Blokkdiagrammet (til venstre i figuren) er omsluttet av en programstruktur med «while»-funksjonalitet, det vil si at strukturen eksekveres (leverer verdier) helt til «Stop» knappen trykkes og while-løkken derfor termineres. For at programmet ikke skal bruke uendelig mye av datamaskinens ressurser er det også satt inn en tidskontroll (metronomen) inne i while-løkken, som gjør at innholdet i løkken kun utføres 10 ganger per sekund (med 100 ms mellomrom).



Figur 2-2: Et enkelt eksempel på et LabVIEW-program. Frontpanelet (venstre) representerer brukergrensesnittet, mens blokkdiagrammet (høyre) inneholder programkoden.

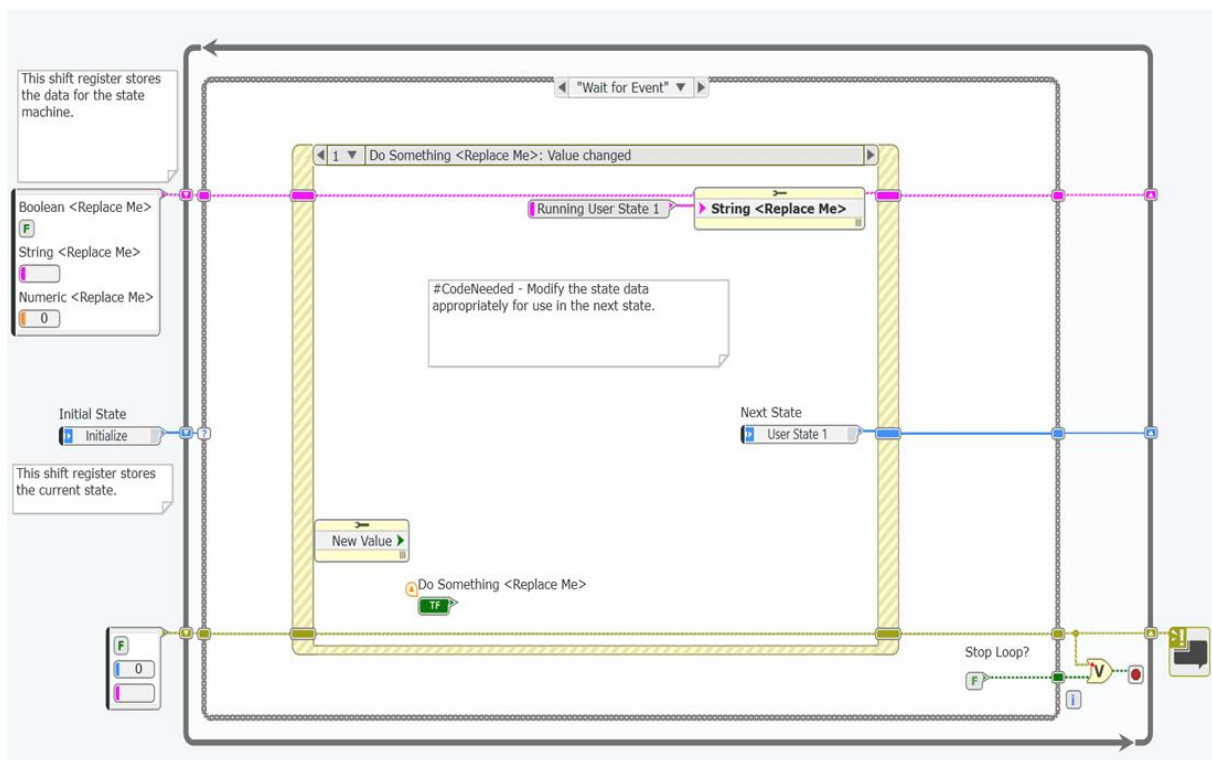
I eksempelet over er det velgeren på skjermen til det virtuelle instrumentet som genererer verdier, men disse verdiene kunne like gjerne ha blitt hentet fra et fysisk instrument koblet til datamaskinen. Tilsvarende kunne de genererte verdiene blitt sendt til instrumentet istedenfor (eller i tillegg til) å bli vist frem på skjermen. Flexibiliteten er stor, og programmeringen er forholdsvis enkel. Eksempelen viser også hvordan data enkelt kan skaleres/manipuleres, da den leste verdien multipliseres med 10.

Et LabVIEW-program kan skrives for å lage et datamaskinbasert system som har samme funksjonalitet som et tradisjonelt, frittstående laboratorieinstrument. Input- og outputobjektene på programmets frontpanel (kalt kontroller og indikatorer, henholdsvis) kan, om ønskelig, etterligne utseendet til det klassiske, fysiske instrumentet. Man kan også velge å designe et helt unikt og tilpasset instrument, slik som det ble vist i eksempelet fra GSI i Figur 2-1.

Koden i blokkdiagrammet instruerer datamaskinen til å utføre de ønskede instrumentelle operasjonene. I motsetning til et tradisjonelt dataprogram som utfører instruksjoner skrevet linje for linje, følger programflyten i LabVIEW dataene mellom nodene i programmet, det vil si langs «ledningene» som kobler blokkdiagrammets komponenter sammen. Siden LabVIEW blant annet ble utviklet for å omforme et datasystem (bestående av en PC og en datainnsamlingsenhet) til å ha samme form og funksjon som et fysisk instrument, kalles et hvilket som helst LabVIEW-program et virtuelt instrument (VI).

2.1.2 State machine

En *state machine* (oversettes som *tilstandsmaskin*) (Figur 2-3) er en av de grunnleggende arkitekturer som LabVIEW-utviklere bruker for å raskt bygge applikasjoner (National Instruments Corp. 2022). Tilstandsmaskinarkitekturen benyttes for å implementere komplekse beslutningsalgoritmer, der hvert steg i algoritmen kalles en *state* (tilstand). En slik tilstand kan for eksempel være initialisering, utføring av en funksjon, eller venting på brukerhendelse. Rekkefølgen som tilstandene blir eksekvert i er avhengig av brukerinput og/eller handlinger utført i tidligere tilstand.



Figur 2-3: En generisk mal for tilstandsmaskinarkitekturen til LabVIEW. En tilstandsmaskin inneholder fire hovedkomponenter; en while-løkke, et skiftregister, en casestruktur, og en caseselektor.

En LabVIEW-basert tilstandsmaskin består av en casestruktur¹³ som er nestet i en while-løkke, der hver case i casestrukturen inneholder kode for en av tilstandsmaskinens tilstander. While-løkken kjøres

¹³ Analog med «if-else»-setningen i tekstbaserte programmeringsspråk.

kontinuerlig til dens stoppbetingelse inntreffer (Stop = True) og med hver iterasjon eksekveres en av casestrukturens caser (i.e. en tilstand). Hvis ingen tilstandsending blir trigget vil standardtilstanden være gjeldende. Tilstanden som eksekveres under en bestemt iterasjon utfører en operasjon (for eksempel leser data) og velger i tillegg hvilken tilstand som skal eksekveres ved neste iterasjon. Utvalget av tilstandene er pakket inn i en enumkonstant¹⁴ som er lagret i et skiftregister¹⁵. Informasjonen som må videreføres fra en tilstand til en annen er på samme måte lagret i et annet skiftregister.

Den aller første casen i casestrukturen – oppstartstilstanden – (re)initialiserer applikasjonsverdiene til standardverdier som er oppgitt i koden. Etterfølgende case er en «vent på hendelse»-tilstand der brukerinput vil bestemme hvilken kommando som skal utføres videre hvis alle vilkår for å fortsette er oppfylt. Når programmet registrerer en brukerinput sendes det en beskjed fra en caseselektor (eng.: *case selector*) til den riktige sub-casen. Hver case inneholder spesifikke handlinger for brukerens input.

2.2 Instrumentstyring

Datainnsamling (eng.: *data acquisition*) er en funksjon som har en grunnleggende betydning for funksjonaliteten til automatisert overvåking og kontroll fordi den relaterer systemet (programvare- og maskinvarearkitektur) med prosessen som skal kontrolleres.

Datainnsamling betyr som regel datautveksling i begge retninger: fra prosessen til systemet og omvendt. Datainnsamlingsystemer refereres vanligvis til med forkortelsen *DAQ* (Data AcQuisition). National Instruments tilbyr et bredt utvalg av datamaskinkontrollerte datainnsamlingsenheter. Operasjonene som disse enhetene utfører inkluderer *analog input* (AI), *analog output* (AO), *digital input/output* (DIO)¹⁶. Videre har mange enheter tellerinnnganger (*counters*)¹⁷. Disse begrepene er henholdsvis forkortelser for analog-til-digital konvertering (motta digitalisert representasjon av en innkommende analog spenning), digital-til-analog konvertering (generere et utgående analogt signal fra en sekvens av digitale tall), digital portkontroll (innstilling og avlesning av portens HØY/LAV-tilstand), og digitale bølgeformoperasjoner (hendelsestiming, pulstelling og pulsgenerering). Noen av de tilgjengelige DAQ-enhetene er spesialiserte (for eksempel kun designet for å behandle digitale signaler), mens andre enheter er multifunksjonelle og utfører noen eller alle de ovennevnte operasjonene. I alle kontrollsystemer spiller datainnsamlingen en sentral rolle, men samtidig må den ledsages av et enkelt og intuitivt brukergrensesnitt.

¹⁴ Enumkonstant er en datatype som inneholder en liste med strengetiketter med tilsvarende heltallsverdier.

¹⁵ I LabVIEW brukes skiftregistre for å overføre verdier fra tidligere iterasjoner til neste iterasjon (National Instruments Corp. 2022).

¹⁶ Engelske betegnelser er beholdt, siden forkortelsene ellers blir vanskelig å forstå.

¹⁷ Ved å benytte innebygde frekvensgeneratorer kan også slike tellere settes opp til å generere bestemte pulstog.

I denne oppgaven brukes et USB-6351 datainnsamlingskort som er et av NIs profesjonelle og multifunksjonelle *X Series* DAQ-enheter. Den er koblet til en datamaskin med en USB-kabel. USB-6351 har 16 analoge inputkanaler som kan utføre 16-bits analog-til-digital konverteringsoperasjoner, 2 analoge 16-bits outputkanaler, 24 digitale I/O-kanaler og 4 32-bits tellere/timere som både kan telle innkommende pulser og generere spesifikke pulstog.

2.3 Et TTL-system

En digital logisk krets er den grunnleggende byggesteinen som alle digitale elektroniske kretser og mikroprocessorbaserte systemer er konstruert. Hovedklassene av digitale logiske kretser som brukes oftest er TTL (transistor-transistor logikk) og CMOS (komplementær metalloksidhalvleder) (Ratzlaff 1987). Grunnleggende digitale logiske kretser utfører logiske operasjoner AND, OR og NOT basert på binære tall.

I digital logisk design er bare to spenningsnivåer (eller tilstander) tillatt, og disse tilstandene blir generelt referert til som logisk «1» og logisk «0», eller HØY og LAV, eller SANN (TRUE) og FALSK (FALSE). Disse to tilstandene er representert i boolsk algebra med de binære sifrene «1» og «0», henholdsvis. Et godt eksempel på en digital tilstand er en enkel lysbryter. Bryteren kan være enten «AV» eller «PÅ», men ikke begge samtidig. Forholdet mellom disse ulike digitale tilstandene er oppsummert i Tabell 2-1.

Tabell 2-1: Forholdet mellom de to mulige digitale tilstandene. Bryterstatus brukes her som et eksempel på de to digitale tilstandene.

Boolsk algebra	Boolsk logikk	Spenningstilstand	Bryterstatus
Logisk «0»	«FALSE» (F)	LAV	AV
Logisk «1»	«TRUE» (T)	HØY	PÅ

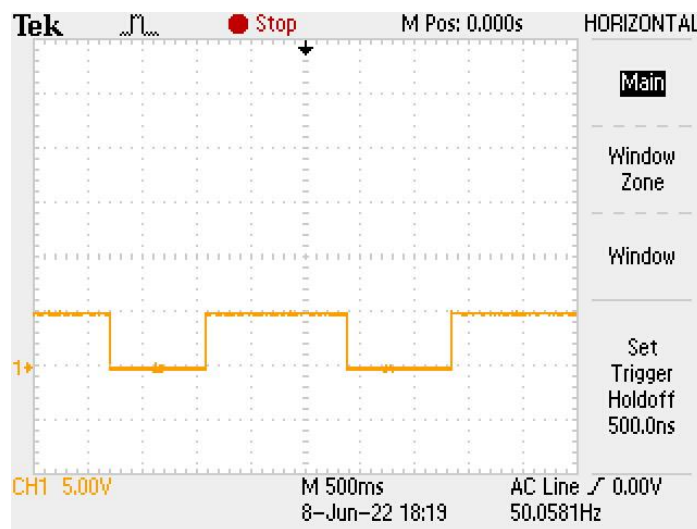
I de fleste digitale logiske kretser og digitale logiske systemer er et logisk nivå «0» eller «LAV» representert med en nullspenning 0 V eller jord, og et logisk nivå «1» eller «HØY» er representert av en høyere spenning som 5 V (Ratzlaff 1987). Veksling fra ett spenningsnivå til det andre (logisk nivå «0» til «1» eller «1» til en «0») gjøres så raskt som mulig for å forhindre feil drift av den logiske kretsen. Hvor hurtig en enhet kan skifte eller skille mellom signalnivåer er en viktig parameter, og må tas hensyn til ved anskaffelse. Generelt er de hurtige grensesnittene mer kostbare.

2.4 Digital I/O

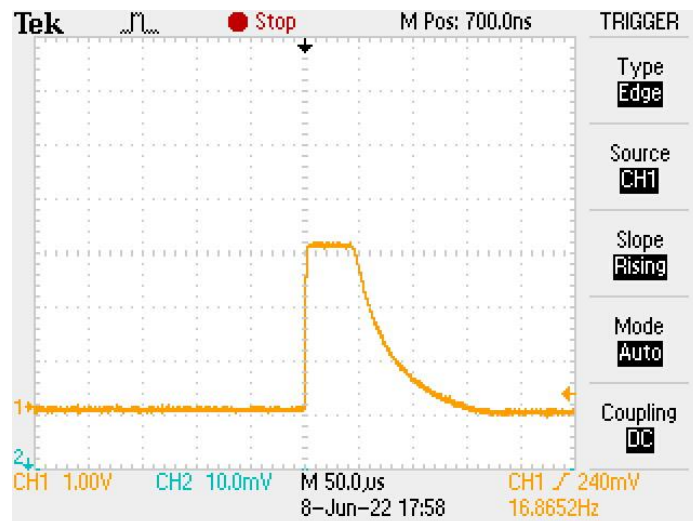
For de digitale portene på NI DAQ-enhetene vil digitale inn- og utganger representere tilstandene fra Tabell 2-1 i henhold til TTL-standarden, der tilstanden HØY er definert til å være mellom 2-5 V og tilstanden LAV er definert til å være 0-0,8 V, henholdsvis. Normalt er tilstanden HØY 5 V og LAV 0

V. Når et digitalt signal veksler mellom disse tilstandene kalles overgangen fra LAV til HØY for stigende flanke (eng.: *rising edge*), mens overgangen fra HØY til LAV er den fallende flanken (eng.: *falling edge*).

Et oscilloskop (Tektronix, modell TDS 2024C) ble brukt for å vise og registrere tog av pulser generert av Geiger–Müller (GM)-detektoren, og under ventilstyring. Inngangssignalkoblingsmetoden for oscilloskopet var DC (likestrøm, eng.: *direct current*) (se Figur 2-5) i begge tilfellene, som betyr at inngangsnivået blir vist direkte (og ikke tolket som vekselstrøm (AC) eller på annen måte filtrert). En visuell illustrasjon av tilstandsovergangene når ventiler blir skrudd av og på er vist i Figur 2-4, og tilstandsovergang for GM-pulser er vist i Figur 2-5.



Figur 2-4: Et pulstog som illustrerer hvordan styrespenningen endres når en ventil åpnes og lukkes. Innstillingen er 5 V/inndeling. Følgelig er styrespenningen her 0 V ved LAV tilstand (når ventilen er «AV») og 5 V ved HØY tilstand (når ventilen er «PÅ»).



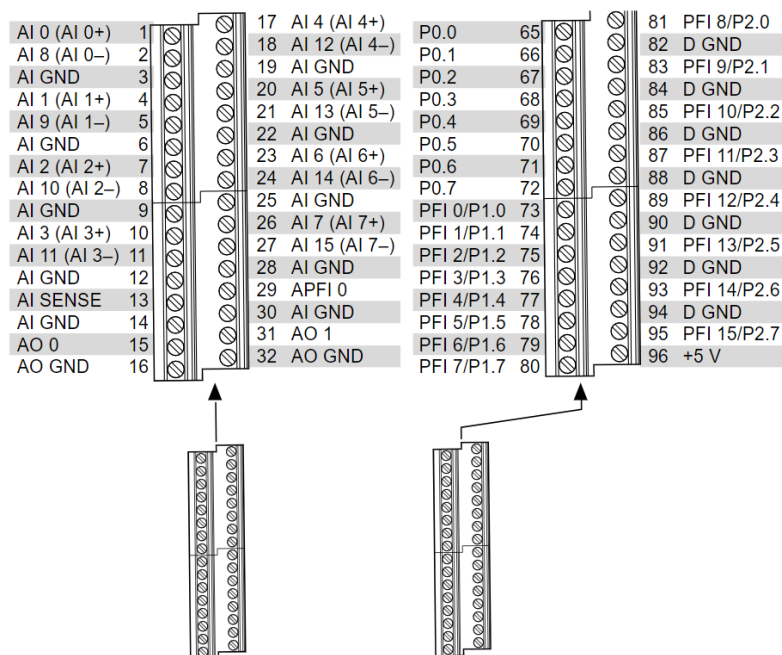
Figur 2-5: En puls fra et GM-detektorrør målt med et oscilloskop. Signalet benyttes som et digitalt signal selv om det opplagt har en analog karakter på grunn av utladningstiden som er bygget inn i GM-rørets elektronikk; etter å raskt ha nådd maksimum, vil signalet etter en liten stund langsomt synke tilbake til 0 V. Grensesnittelektronikkens teller vil imidlertid kun registrere at den oppadgående flanken går gjennom et visst spenningsnivå. Dette registreres som en «telling» og tellerinnangens verdi økes med én.

Multifunksjonelle DAQ-enheter er utstyrt med mange inn- og utganger, fysisk manifestert i form av skruterminaler eller pinner på en multipinskontakt. For kobling av digitale signaler kalles hver enkel inngang/utgang en «linje»¹⁸ (eng.: *line*) og er representert ved en bit, det vil si en digital tilstand som enten er 0 eller 1. Det er vanlig, spesielt i litt mer kostbare enheter, at linjene kan konfigureres til å enten sette eller registrere en digital tilstand, det vil si å lese (eng.: *read*) om inngangen er i HØY eller LAV tilstand, eller til å sette (eng.: *write*) utgangen til en av de to tilstandene. Fire linjer vil til sammen kunne definere 16 ($= 2^4$) tilstander (desimale tall mellom 0 og 15), og det er derfor vanlig å benytte heksadesimale tall slik at tilstanden til 4 linjer kan symboliseres ved kun ett (heksadesimalt) symbol (0, 1, 2 ..., 9, A, B, C, D, E, F). Det er også vanlig å gruppere linjer i porter (eng.: *ports*), gjerne åtte linjer per port. Tilstanden til en port kan da representeres med to heksadesimale siffer; et siffer for de fire første linjene og et siffer for de fire siste. Tilstanden til en slik port kan totalt definere 256 tilstander ($= 2^8$) og kan representeres av en *byte* (et 8 bits digitalt tall). Bits og byte er standardbegreper i digitalteknologi og vil ikke bli ytterligere forklart her. Denne inndelingen har sin bakgrunn i hvordan instrumentering og datamaskiner kobles sammen, slik som beskrevet ovenfor.

En bestemt linje spesifiseres som *port.line*, e.g. P0.5 (der bokstaven *P* tydeliggjør at det første sifferet refererer til en port) er linje 5 i port nummer 0. Pinnekonfigurasjonen er avhengig av hvordan et

¹⁸ Ordet *kanal* kan brukes til å representere den fysiske linjen i programvare, men disse brukes ofte om hverandre.

instrument er konstruert og må alltid identifiseres ved å lese relevant dokumentasjon. Pinnekonfigurasjonen for instrumentet som ble benyttet til arbeidet beskrevet her er angitt Figur 2-6.

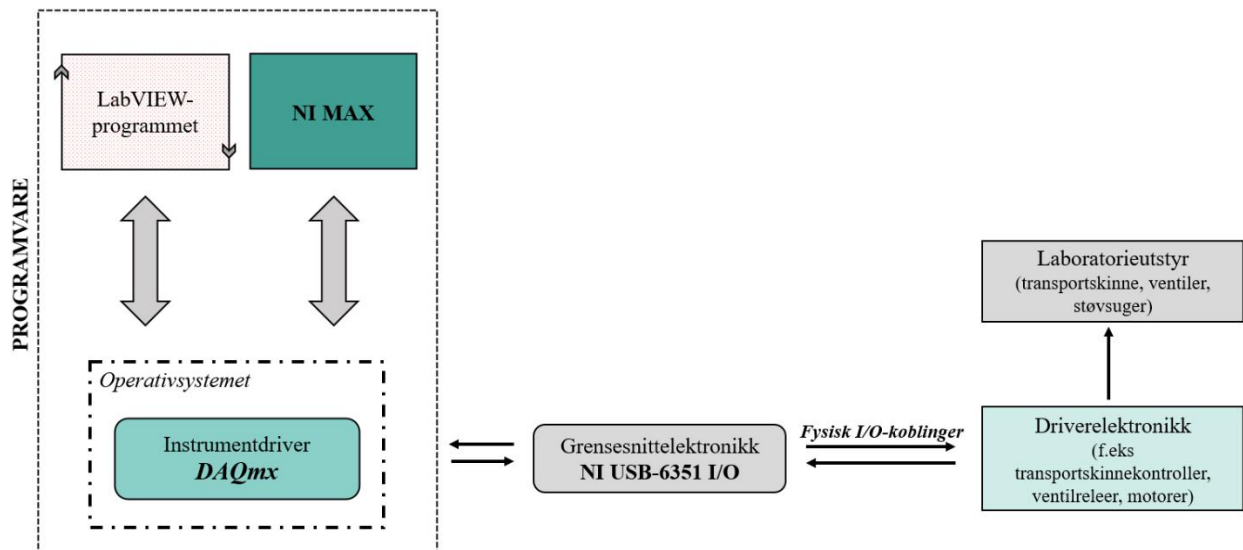


Figur 2-6: Diagram over pinnekonfigurasjonen for NI USB-6351 (National Instruments Corp. 2022).

All maskinvare som ble koblet på USB-6351 er konfigurert gjennom programvare levert av NI, kalt *NI-MAX*¹⁹. *NI-MAX* og *LabVIEW* kommuniserer sømløst, slik at etter å ha konfigurert en inngang eller utgang i *NI-MAX* med hensyn til hvordan den skal oppføre seg (inn- eller utgang, navn på linjen, etc.) vil *LabVIEW* benytte denne informasjonen for videre kommunikasjon. En fordel med å benytte *NI-MAX* er at porter og linjer kan gis logiske og beskrivende navn. Hver fysisk linje som blir konfigurert i *NI-MAX* tilsvarer en *virtuell kanal* i en *DAQmx*-oppgave. En *DAQmx*-oppgave er en kombinasjon av én eller flere virtuelle kanaler som til sammen utfører angitte operasjoner (for eksempel måling eller generering av data).

Det er viktig å merke seg at grensesnittelektronikken som regel ikke kan drive strømkrevende utganger eller lese svært høye eller svært lave spenninger. Av den grunn må det enten anskaffes eller lages driverelektronikk som forsterker signalene fra grensesnittet slik at grensesnittelektronikkens inn- og utganger kan brukes til styring av instrumenter. For eksempel kan ikke grensesnittets utgang levere nok strøm til å få et relé til å skifte mellom to tilstander, da reléet krever en viss mengde strøm gjennom en spole som genererer et magnetfelt. Det er magnetfeltet som får reléet til å koble sammen (eller skille) to kontakter. Måten laboratoriestyret ble koblet opp mot elektronikken for systemet i arbeidet som beskrives i denne masteroppgaven er illustrert i Figur 2-7.

¹⁹ National Instruments Measurement & Automation Explorer – programvare for blant annet konfigurering av maskinvare.



Figur 2-7: Skjematisk illustrasjon av hvordan LabVIEW-programmet kommuniserer med elektronikken og instrumentene. Driverelektronikken som styrer signalene til laborieutstyret, er fysisk koblet til DAQ-enheten USB-6351 som igjen er fysisk koblet til datamaskinen der LabVIEW-programmet kjøres. De fysiske I/O-koblingene konfigureres i NI-MAX og tilstandene kommuniseres til og fra programmet via DAQmx-oppgaver.

3 Det radiokjemiske grunnlaget for øvelsen

3.1 Nuklidegenerator

En nuklidegenerator er konstruert etter prinsippet til den såkalte mor-datter relasjonen mellom en langlivet mornuklide og dens kortlivede datternuklide. De kjemiske egenskapene til datternukliden må være tydelig forskjellige fra mornuklidens slik at førstnevnte lett kan separeres fra sistnevnte. I en nuklidegenerator vil den langlivede mornukliden desintegre til sin kortlivede datternuklide, og sistnevnte separeres deretter kjemisk.

En radionuklidegenerator består av en glass- eller plastkolonne som er utstyrt med en frittet skive i bunnen. Kolonnen er fylt med et adsorberende materiale som kan være kation- eller anionbytter-resin som mornukliden kan adsorbere på. Som en funksjon av mornuklidens desintegrasjon, gror datternukliden inn inntil enten en transient eller en sekulær likevekt inntreffer. Ved likevekt desintegrerer datternukliden med samme halveringstid som moren. Fordi mor og datter har forskjellige kjemiske egenskaper, kan datteraktiviteten elueres ut i en bærerfri tilstand med et passende løsemiddel, mens moren sitter igjen på kolonnen. Etter eluering, begynner datteraktiviteten å gro inn igjen på kolonnen inntil en likevekt er nådd på måten nevnt ovenfor; eluering av inngrodd datteraktivitet kan gjentas så lenge det er tilstrekkelig med moraktivitet på kolonnen.

3.1.1 Generelle aspekter av radioaktivitet

Radioaktivitet eller *radioaktiv desintegrasjon* er en spontan prosess der en ustabil nuklide P (eng.: *parent*) omdannes til en eller flere datternuklider D som er mer stabile enn forgjengeren ved at de har mer bindingsenergi per nukleon.

Datternuklider kan også være ustabile, og vil da desintegrere videre frem til en stabil kjernekonfigurasjon er oppnådd. Slik desintegrasjon er vanligvis etterfulgt av utsendelse av en høyenergetisk partikkel²⁰. De fleste nuklider desintegrerer ved beta- eller alfautsendelse. Dette vil avhenge av hvilken nuklide som desintegrerer, og hvilken nuklide den desintegrerer til. Hvis datternukliden inneholder en viss mengde eksitasjonsenergi («restenergi»), vil denne sendes ut med et gammafoton.

Desintegrasjon av radionuklider er en tilfeldig prosess og man kan derfor ikke bestemme hvilken atomkjerne fra en gruppe atomer som vil desintegrere på et bestemt tidspunkt. Derfor kan man kun vurdere det gjennomsnittlige antallet radionuklider som desintegrerer i løpet av en periode. Dette gir desintegrasjonshastigheten til den aktuelle radionukliden. Antall desintegrasjoner per tid

²⁰ Elektroninnfangning er et unntak.

(desintegrasjonshastighet) av en radionuklide til enhver tid er proporsjonal med det totale antallet radioaktive nuklider som er til stedet på det tidspunktet. Matematisk kan dette uttrykkes som:

$$\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (1)$$

der N er antall radioaktive atomer og λ er omdanningskonstanten definert som sannsynligheten for desintegrasjon per tid for det radioaktive atomet. Desintegrasjonshastigheten, dN/dt , er aktiviteten til en radionuklide og betegnes med A . Det skal klart forstås fra ligningen (1) ovenfor at samme mengde radioaktivitet betyr samme desintegrasjonshastighet for alle radionuklider, men det totale antallet atomer til stedet og omdanningskonstanten kan, og vil, være forskjellig for forskjellige radionuklider. Fra utsagnene ovenfor kan følgende ligning skrives:

$$A = \lambda N \quad (2)$$

Hvis man kjenner verdien til omdanningskonstanten og aktiviteten til en radionuklide, kan man beregne det totale antallet atomer eller den totale massen av radionukliden til stede ved å bruke Avogadros konstant ($N_A = 6.022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$).

Ligning (1) er en differensialligning og kan løses med integrasjon:

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t} \quad (3)$$

hvor N_0 og N_t er det opprinnelige antallet radioaktive atomer til stede ved tidspunkt $t = 0$ og ved tidspunkt t , henholdsvis. Ligning (3) kalles *den radioaktive desintegrasjonslov* og representerer den eksponentielle desintegrasjonen til en hvilken som helst radionuklide. Med hensyn til aktivitet kan denne ligningen skrives som:

$$A_t = A_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

der indeksene til A_0 og A_t har samme betydning som for N i ligning (3). Hver radionuklide har en karakteristisk halveringstid som er definert som tiden det tar å redusere dens opprinnelige aktivitet til halvparten. Den er vanligvis betegnet med $T_{1/2}$ og er unik for en gitt radionuklide. Omdanningskonstanten λ er relatert til halveringstid ved

$$\lambda = \ln 2 / T_{1/2} \quad (5)$$

3.1.2 Batemans ligning og mor-datter relasjon

Forenklet kan radioaktiv desintegrasjon uttrykkes som:



der λ_P er omdanningskonstanten for radionukliden mornukliden P .

I avsnittet ovenfor ble det utledet ligninger for aktiviteten til en vilkårlig radionuklide som desintegrerer. Når man studerer mor-datter relasjon blir det nyttig å se på ligninger for aktiviteten til en radionuklide som gror inn fra en annen radionuklide, og som samtidig desintegrerer. Det matematiske forholdet mellom parametrene er beskrevet med *Batemans ligning*. Hvis mornukliden P desintegrerer til en datterradionuklide D , som igjen desintegrerer, blir inngroingshastigheten til D gitt ved

$$\frac{dN_D}{dt} = \lambda_P N_P - \lambda_D N_D \quad (7)$$

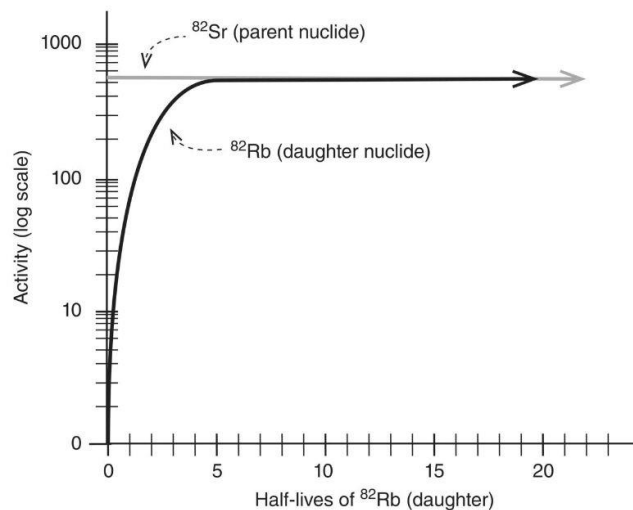
der $\lambda_P N_P$ er inngroingshastigheten til datternukliden fra mornukliden og $\lambda_D N_D$ er desintegrasjonshastigheten til datternukliden. Denne ligningen beskriver endringshastigheten til antall atomer av datternukliden til enhver tid som lik forsyningen fra morens desintegrasjon minus tap av antall atomer gjennom egen desintegrasjon.

3.1.3 Radioaktiv likevekt

En likevektstilstand er etablert mellom mor og datter forutsatt at både mor og datter er radioaktive og at datterens halveringstid er kortere enn morens. Hvis datternuklidens halveringstid overstiger mornuklidens, vil likevekten aldri nås. Det er to typer likevekt: *sekulær* og *transient*.

3.1.3.1 Sekulær likevekt

Det finnes i dag ingen strenge definisjoner av sekulær og transient likevekt. Det kan midlertid betraktes at en sekulær likevektstilstand gjelder hvis $T_{1/2, P} \gg T_{1/2, D}$, der indeksen P og D representerer halveringstidene til mornukliden og datternukliden, henholdsvis. Det betyr at aktiviteten til mornukliden ikke avtar målbart i løpet av en rimelig tidsperiode og at påfølgende elueringer av datternukliden med like tidsintervaller vil resultere i samme datteraktivitet (forutsatt at elueringseffektiviteten forblir konstant). Et praktisk eksempel på dette kan være et generatorsystem av $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$ (Figur 3-1), der halveringstidene til mor og datter er 25,35 dager og 1,26 min, henholdsvis. (Tuli og Browne, Nuclear Data Sheets for A = 82 2019).



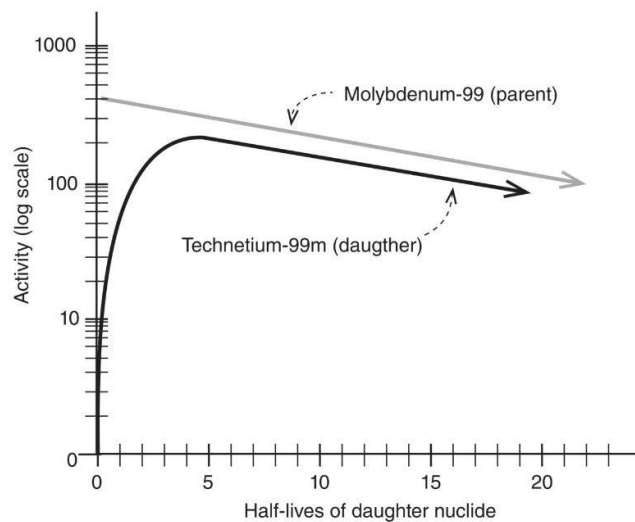
Figur 3-1: Sekulær likevekt i $^{82}\text{Sr}/^{82}\text{Rb}$ (Powsner 2022, 36).

I samme løøsning ser datteren ut til å desintegrere med halveringstiden til mornukliden. Når datteren er isolert fra blandingen har den sin egen forventet halveringstid. Trolig den enkleste forklaringen på at de ser ut til å være like er at datteren ikke kan desintegrere før den er dannet, og inngroings hastigheten til datteren tilsvarer desintegrasjonsraten til moren, som er veldig langsom.

Således, i sekulær likevekt forblir aktiviteten til moren tilnærmet uendret mens datteraktiviteten vokser til en konstant verdi. Tilsvarende synker forholdet deres (mor/datter) i begynnelsen og tilnærmer seg en konstant verdi etter en tid $t > 10T_{1/2, 2}$.

3.1.3.2 Transient likevekt

Hvis $T_{1/2, 1} \geq T_{1/2, 2}$ – det vil si halveringstiden til mornukliden ikke er flere størrelsesordener større enn halveringstiden til datternukliden, og moren avtar betydelig i løpet av appliserings-/observasjonsperioden – er transient likevekt etablert. Derfor er det ofte varigheten av appliserings-/observasjonsperioden som avgjør om likevekten fremstår som sekulær eller transient likevekt (Choppin, et al. 2013, 116) Et praktisk eksempel på transient likevekt kan være en $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -generator som blir brukt i medisinsk diagnostisering (Figur 3-2).



Figur 3-2: Transient likevekt i en $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ -generator (Powsner 2022, 36).

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ elueres fra kommersielt tilgjengelige generatorer som inneholder ^{99}Mo . Med sin halveringstid på 65,92 timer (Tuli og Browne, Nuclear Data Sheets for A = 99 2017) forblir ^{99}Mo i stand til å produsere det som kan være et svært rent produkt i omtrent en uke etter aktivering. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 6,00$ timer) er den mest brukte radiotraceren i nukleær medisin, ikke minst fordi den kombineres godt med en rekke farmasøytiske stoffer som brukes til undersøkelse av mange sykdommer (Webb 2002). Halveringstiden til technetium er lang nok til å tillate undersøkelser av pasienter ved bruk av γ -kameraer, og kort nok til å minimere problemer knyttet til absorpsjon av radioaktivitet hos pasientene. I følge Webb (2002) er dens 140 keV gammaenergi godt egnet for å få klare, godt oppløste bilder for videre diagnostisering.

3.1.4 En ideell nuklidegenerator

En ideell nuklidegenerator, enten den brukes til undervisningsformål eller andre formål, bør ha følgende egenskaper (Dash, Knapp og Pillai 2013, Knapp, et al. 2014):

- De kjemiske og/eller fysiske egenskapene til datteren må være forskjellige fra morens for å tillate effektiv separasjon av datteren fra mor.
- Separasjonen av datterradionukliden skal være enkel og effektiv ved bruk av passende kjemiske eller fysiske teknikker.
- Separasjonsprosessen skal ikke involvere noen voldsomme kjemiske reaksjoner.
- Menneskelig innblanding i generatordrift bør være minimal for å minimere stråledose.
- Elueringsutbyttet og renheten til datternukliden bør tjene formålet.
- Den fysiske halveringstiden til mornukliden bør være lang nok til at generatoren har en rimelig brukstid før den må fornyes.
- Generatorbestanddelene (det vil si eventuelle kolonnepakningsmaterialer, løsningsmidler og kjemiske forbindelser, rør og andre mekaniske komponenter) bør være strålingsbestandige, spesielt hvis generatoren skal levere mengder som gir høye stråledoser.

- Datteren til datternukliden (barnebarnet) bør være stabil (eller ha svært lang halveringstid) for å ikke interferere med målingene av den aktuelle nukliden.

3.2 Ionebyttning

Ionebytterkromatografi (IEC) er en undergruppe av væskechromatografi og er en prosess som tillater separasjon av ioner og polare molekyler basert på deres ladning. Ionebyttning har en rekke applikasjoner som strekker seg fra industriskala til enkle laboratorieoppsett. Noen utvalgte eksempler på dette er (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebyttning 2021, Helfferich 1962):

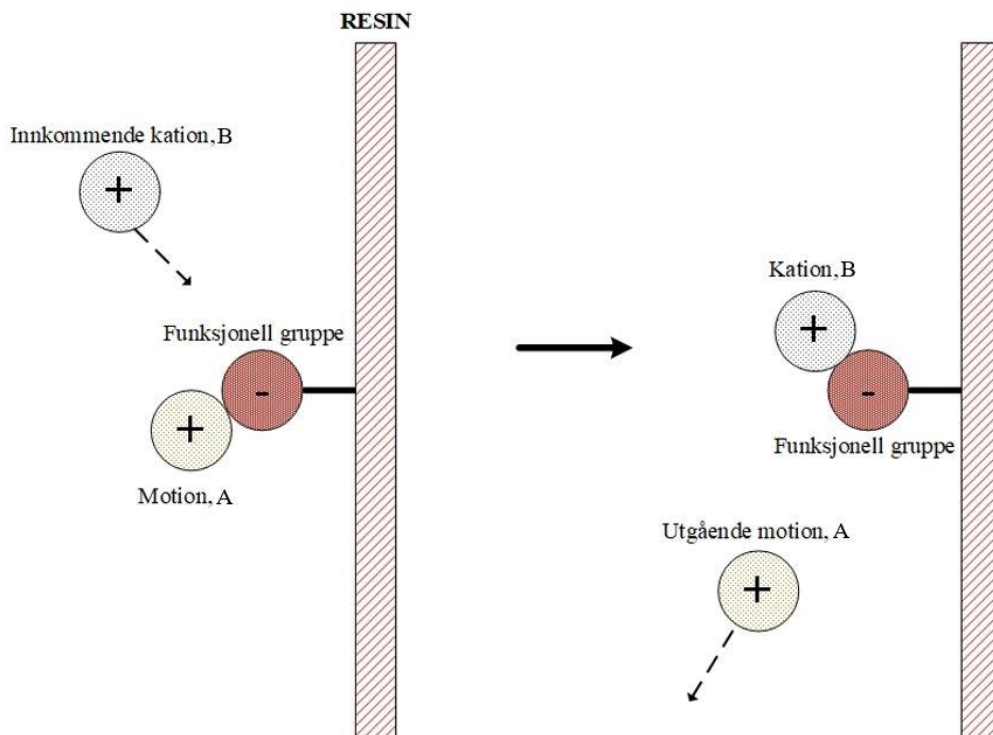
- Separasjon og ekstraksjon av metaller og proteiner,
- Rensing av vannkilder for fremstilling av drikkevann,
- Produksjon av radiotracere,
- Oppkonsentrering av verdifulle metaller.

IEC kan defineres som en utbyttingsprosess av ioner som opprinnelig befinner seg i en vandig løsning med ioner som er elektrostatiske festet til en ionebytter. Ionebytter er (etter vanlig definisjon) et uløselig, fast materiale (matriks eller resin) som inneholder utskiftbare kationer eller anioner, men kan også være et oppløst materiale (væskeionebytter) (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebyttning 2021). Bærere av utskiftbare kationer og anioner (motjoner) kalles kationbyttere og anionbyttere, henholdsvis. Disse ionene kan skiftes ut med støkiometrisk tilsvarende mengde andre ioner med samme fortegn når ionebytteren er i kontakt med en elektrolyttløsning. Visse ionebyttere er i stand til både kation- og anionbyttning, og kalles amfoteriske ionebyttere (Helfferich 1962).

For en prosess som innebærer bytte av kationer – kationbyttning – vil reaksjonen være som følger:

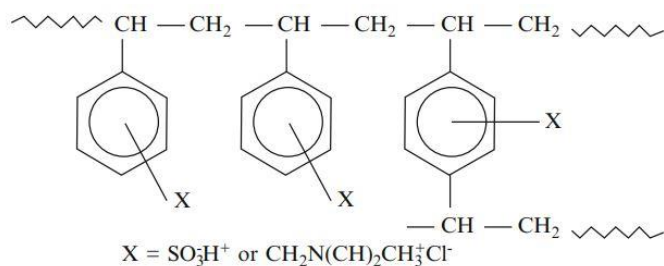


der R er den funksjonelle gruppen som det opprinnelige motionet A^+ er festet til. B^+ er kationet fra vannfasen (Figur 3-3). Overstreking indikerer den faste fasen som ionebytteren inngår i. En tilsvarende prosess anvendes for anionbyttning.



Figur 3-3: Kationbytter. Utskiftning av det bundne motionet ved påsetting av prøve. Kation B (fra prøve) har større affinitet for den funksjonelle gruppen som er bundet til resinet, og vil derfor bytte plass med motionet A.

Ofte er ionebyttermaterialet et organisk fast stoff. Det organiske resinet består typisk av et krysskoblede polymernetverk (for eksempel polystyren med divinylbenzen (DVB) som tverrbinder) med kovalent bundne ioniserte (eller ioniserbare) funksjonelle grupper som motioner kan feste seg til (Figur 3-4). Resiner sveller i vann, men krysskoblingene mellom polymerkjedene hindrer dem i å løse seg opp i enten vann eller andre løsemidler.



Figur 3-4: Struktur av en matrise basert på styren-DVB co-polymer. Introduksjon av den funksjonelle gruppen (X) konverterer matrisen til ionebytter. Figuren er hentet fra (Luqman 2011, 3).

Kationbytter-resiner inneholder sure funksjonelle grupper, e.g. $-\text{SO}_3\text{H}$ eller $-\text{COOH}$. De kan derfor klassifiseres som sterkt sure resiner eller svakt sure resiner, avhengig av arten til den sure gruppen. Anionbytter-resiner inneholder enten sterkt basiske kvartære grupper, e.g. $-\text{N}(\text{CH}_3)_3\text{OH}$ eller svakt

basiske grupper, e.g. $-\text{NH}_2$, $-\text{NH}\cdot\text{CH}_3$, eller $-\text{N}(\text{CH}_3)_2$ (Salmon og Hale 1959). Karakteristikkene til de typiske ionebytter-resinene er listet i Tabell 3-1.

Tabell 3-1: Karakteristikker til typiske ionebytter-resinene. Tabellen er en modifisert og oversatt versjon av Tabell 1 på side 11 i «*Ion Exchange – A Laboratory Manual*» (Salmon og Hale 1959).

	Kationbyttere		Anionbyttere	
	Sterkt sure	Svakt sure	Sterkt basiske	Svakt basiske
Funksjonell gruppe	Sulfon	Karboksyl	Kvartært ammonium	Amin
Effekten av pH på ionebytterkapasitet	Stort sett uavhengig av pH	Ubetydelig kapasitet i syreløsninger	Stort sett uavhengig av pH	Ubetydelig kapasitet i alkaliske løsninger
Regenerering	Overskudd av sterk syre kreves	Raskt regenerert	Overskudd av sterk base kreves	Raskt regenerert med natriumkarbonat eller ammonia
Utbyttingshastighet	Rask	Sakte, med mindre ionisert (i.e. i alkalisk medium)	Rask	Sakte, med mindre ionisert (i.e. i sure medium)

Tre typer separasjon kan oppnås med IEC: 1) ionisk fra ikke-ionisk, 2) kationisk fra anionisk, og 3) specier med samme ladning, men forskjellig affinitet for den funksjonelle gruppen. I de to første tilfellene vil den ene komponenten binde seg til ionebyttermediet, mens den andre passerer uten noe interaksjon. Batch-ekstraksjonsmetoder (ionebyttermassen er suspendert i et kar med væske) kan brukes for disse to separasjonene, men det vil være nødvendig å bruke kolonnekromatografi for den tredje kategorien (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989).

3.2.1 Separasjon med kolonnemetoden

Når ionebyttere brukes til analytiske formål, passerer løsningen gjennom en mindre gjennomtrengelig ionebyttermasse pakket i en kolonne. Vanligvis drives kolonnen ved å kjøre løsningen gjennom ionebytteren fra topp til bunn.

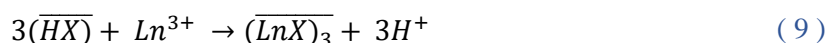
For å starte den ønskede ionebyttingsprosessen må ionebytter-resinet være i kontakt med ioner som kan holdes igjen. I dette dynamiske separasjonsoppsettet blir løsningen som skal analyseres matet inn i

ionebytterkolonnen enten ved hjelp av en gravitasjonsstrøm eller ved en gjennomstrømningshastighet som kontrolleres av en lavtrykkspumpe (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 36). Den generelle separasjonsprosessen for kolonnemetoden kan beskrives med følgende steg (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 41):

1. Kondisjonering
2. Adsorpsjon – påsetting av prøve
3. Vasking
4. Eluering - skylling med passende løsning eller løsningsmiddel
5. Regenerering

3.2.1.1 Kondisjonering

Kondisjoneringssteget forbereder kolonnematerialet for sorpsjon og innebærer skylling av ionebytterresinet med et passende volum av en løsning som ideelt sett har samme kjemisk sammensetning som prøveløsningen, bortsett fra at det ikke inneholder elementer fra prøvematriksen eller ioner som skal separeres fra hverandre (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 42). Ionebyttermatriksen vil dermed svulle og bringes i likevekt med denne løsningen. Hensikten med kondisjoneringssteget kan også være utskifting av det fastede motjonet med et ønsket motjon. Et eksempel på når slik utskifting kan være ønskelig ble beskrevet under personlig kommunikasjon med Dag Øistein Eriksen (2022). I et av hans pågående prosjekter ble det under separasjon av sjeldne jordartsmetaller (Ln) observert at generering av $3H^+$ i systemet, i henhold til ligningen under



der X er den anvendte ionebytteren, førte til at ionebyttingsprosessen ikke lenger kunne finne sted på grunn av en likevektsforskyvning mot reaktantene (venstre). Det var derfor nødvendig å først konvertere ionebytteren til Na^+ -form.

3.2.1.2 Adsorpsjon (prøvepåsetting)

Det andre trinnet er adsorpsjon, også kalt prøvepåsetting. Metoden for selektiv adsorpsjon baserer seg på valg av passende adsorpsjonsbetingelser for ett element eller for en mindre gruppe elementer som er med i prøvematriksen. Målet i dette trinnet er å binde ønskede elementer. Motsatt ladete ioner i løsningen binder seg til ioniske grupper i ionebyttermaterialet, og blir konsentrert på kolonnen. Uladete partikler, eller de med samme ladning som den ioniske gruppen, passerer gjennom kolonnen med samme hastighet som strømmen av løsningen, og elueres under eller like etter prøvepåføring (avhengig av det totale volumet av prøven som er lastet).

For å estimere ionenes affinitetsrekkefølge på ionebyttere, kan man blant annet være nyttig å se på (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebytting 2021, Reiman og Walton 1970):

- Ioneladningen: hvis ioner i samme prøveløsning har ulik ladning, kan man observere at ionet med høyest ladning vil bli holdt igjen sterkere av ionebytteren.
- Hydratiseringsradius: Ionet med mindre hydratiseringsradius er enklere å akkomodere i porene til resinet, og vil derfor ha større bindingsaffinitet (gjelder for sulfonerte kationbyttere).
- Tverrbindingsgraden til resinet: jo høyere tverrbindingsgrad (mengde tverrbinder ionebytteren er laget med), desto mindre svellingsgrad – mindre ioner er enklere akkomodert enn større.

For å kvantitativt separere en løsningsblanding som inneholder to elementer med metoden for selektiv adsorpsjon bør distribusjonskoeffisientene (K_d) for ionene som fester seg på kolonnen og ionene som passerer gjennom resultere i en separasjonsfaktor som er større enn ~ 100 (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 42).

3.2.1.3 Vasking

For å vaske ut rester av komponentene som ikke ble bundet (eller kun sitter løst) på ionebytteren brukes vanligvis den samme løsningen som ble brukt i kondisjoneringssteget (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 42).

3.2.1.4 Eluering

Når prøven er lastet og kolonnen er vasket med startløsningen (slik at alle partikler som ikke ble bundet skylles ut av kolonnen), er det vanlig å endre elueringsforholdene for å skylle ut de bundne analyttene. Denne metoden kalles *gradienteluering* (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebytting 2021). Analyttene vil her adsorberes i et smalt band i den øvre delen av kolonnematerialet. Mengden analytt blir da viktigere enn volumet av væsken som inneholder analytten. Ofte elueres analyttene ved å øke ionestyrken (saltkonsentrasjonen) til elueringsløsningen eller ved å endre pH. Når ionestyrken økes, konkurrerer saltionene (typisk Na^+ eller Cl^-) med de bundne komponentene om ladninger på overflaten av mediet, og en eller flere av de bundne speciene begynner å bevege seg nedover i kolonnen. Komponenter med lavest nettoladning ved valgt pH vil være de første som elueres fra kolonnen ettersom ionestyrken øker. Tilsvarende vil komponentene med høyest ladning ved en viss pH holdes sterkest tilbake og elueres sist. Jo høyere nettoladning av analytten, desto høyere ionestyrke er nødvendig for eluering. En ytterligere økning i syrekonsentrasjonen vil derimot føre til at resinet krymper og forårsake redusert elueringsrate ved at ionenes diffusjonshastighet gjennom resinmatrisen avtar (Samuelson 1952, 66).

Dersom elueringsløsningen som brukes er en annen enn startløsningen, må kolonnen først skylles med denne for å bytte ut væsken som utgjør det interstitielle volumet²¹ slik at elueringsløsningen penetrerer hele kolonnevolumet (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 44).

Volumet av elueringsmiddelet som er nødvendig for en eluering øker sterkt med partikkelstørrelsen til resinet (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 44). Bruk av resiner med mindre partikkelstørrelse vil spare både tid og elueringsmiddel, men gjennomstrømningsmotstanden gjennom kolonnen vil øke.

3.2.1.5 Regenerering

Avslutningsvis vaskes kolonnen med en regenererende løsning for å konvertere kolonnen til opprinnelig tilstand der kationet A^+ (se Figur 3-3) er festet til den funksjonelle gruppen. Konverteringen gjøres vanligvis ved bruk av en elektrolyttløsning AY som fjerner B fra kolonnen ved å bytte den ut med A (Helfferich 1962, 428). Slik kan full kapasitet i den stasjonære fasen reetableres for neste prøvepåsetting.

Det kan tenkes at ioner som har sittet på kolonnen i lengre tid er vanskeligere å fjerne fra resinet da disse har hatt tid til å for eksempel diffundere dypt inn i små kapillærer inne i resinet. Djurfeldt og Samuelson (1950) studerte effekten av tiden mellom adsorpsjon og regenerering av jern(III) og fant at regenereringskurven var den samme enten regenereringen ble gjort etter 30 minutter eller etter 20 dager. I mange tilfeller, vil det derimot kreves et stort overskudd av regenereringsløsningen for å gjenvinne full ionebytterkapasitet siden betingelsene i de forrige ionebyttingsstegene er oftest valgt slik at B er foretrukket over A .

3.2.2 Gjennomstrømningshastighet

Tiden som kreves for å føre en løsning gjennom resinmaterialet avhenger av pakningens tverrsnittsrområde og strømningshastigheten per overflateenhet (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989). Sistnevnte vil blant annet være avhengig av eksternt påført trykk eller vakuum, stasjonærfasefraksjon, det totale væskefylte volumet i ionebytteroppsettet, og viskositeten til løsningen. Typiske kolonnedimensjoner for bruk i småskalaforsøk har lengde $L = 5\text{--}20$ cm og diameter $D = 0,5\text{--}2$ cm (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebytting 2021).

Den maksimale gjennomstrømningshastigheten (ml/min) som brukes under en separasjon kan variere i henhold til separasjonsstadiet. For eksempel, under prøvepåføring og eluering, gir lavere gjennomstrømningshastigheter tid for prøvekomponenter å diffundere inn og ut av porene når de binder

²¹ Interstitielt volum er mobilfasevolumet som fyller mellomrommene i den pakkete delen av kolonnen (Bjørnstad, Forelesningskompendium - Introduksjon til ionebytting 2021).

seg til, eller dissosieres fra, de funksjonelle gruppene (*kontaktid*). Ved en for høy hastighet vil kort kontaktid føre til at mer prøvevolum behøves for å feste samme mengde analytt til resinnet enn ved lavere gjennomstrømningshastigheter. Høyere gjennomstrømningshastigheter kan brukes til kondisjonering, vasking og rekondisjonering, begrenset primært av robustheten til ionebyttermidiet og av trykkspesifikasjonene til utstyret. Dersom ionebytteren som brukes har en lav tverrbindingsgrad, vil de sterkt uttalte endringene i svelling favorisere kanalisering i resinmaterialet (Helfferich 1962). Dette må derfor også tas hensyn til under valget av en gjennomstrømningshastighet.

3.3 Geiger–Müller-teller

Geiger–Müller-teller, ofte kalt geigerteller, er en av de eldste typene av strålingsdetektor og ble utviklet av Geiger og Müller i 1928 (Geiger og Müller 1928). Den enkle konstruksjonen, robustheten og brukervennligheten til geigertelleren gjør at den fremdeles er i vanlig bruk.

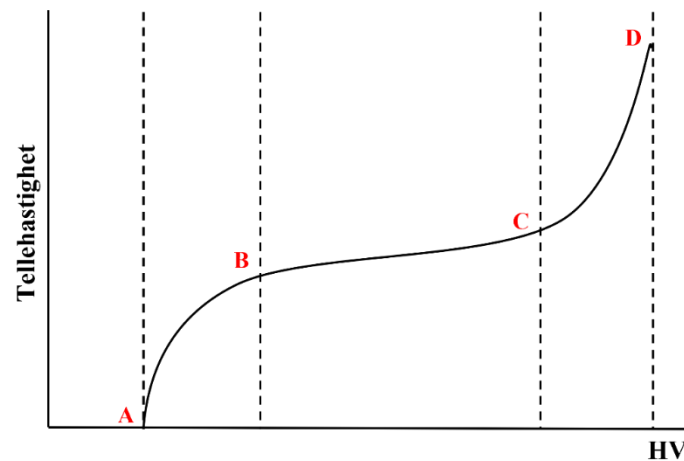
En geigerteller er en gassbasert detektor som bruker ionisering av gass som et verktøy for å detektere stråling. Selve apparatet består av et Geiger–Müller-rør (også kalt tellerør), en høyspenningskilde, og en elektronisk teller. Tellerøret er ofte sylindrerformet og er fylt opp med edelgass (vanligvis helium eller argon). En metallstreng som går gjennom den sentrale akselen til sylinderen danner anode, mens det indre skallet til røret fungerer som katode. Høyspenningen produserer et elektrisk felt inne i røret. Den ene enden av røret har et strålingspermeabelt vindu.

Den innkommende strålingen som klarer å penetrere rørvinduet vil ionisere edelgassen og danne ione-par. Det frie elektronet vil bli tiltrukket mot anoden, mens de tunge ionene vil bevege seg sakte mot katoden. Den store potensialforskjellen som er satt opp av høyspenningen vil føre til ytterligere akselerering av ladningene og det frie elektronet vil med stor sannsynlighet ionisere en rekke gassmolekyler/atomer på sin vei mot anoden. Dette kalles et *elektroniskred* (eng.: *Townsend avalanche*). I tillegg til elektroninduserte ioniseringer, går noen av de eksiterte gassmolekylene tilbake til grunntilstanden via emisjon av UV-fotoner. Disse fotonene fortsetter å ionisere flere atomer og forårsaker flere elektroniskred, slik at det oppstår en kjedereaksjon. Disse fotonene kan regnes som hovedelementer i geigertellerens virkemåte. Elektroniskred vil sette opp en utladningsstrøm som fører til et spenningsfall mellom anoden og katoden. Den oppståtte spenningspulsen registreres som en «telling» og antall tellinger er proporsjonalt med strålingens intensitet.

Siden deteksjonen er basert på elektroniskredet er de registrerte pulsene og pulshøyden uavhengige av energien som bringes inn av den innfallende strålingen. En geigerteller brukes derfor til å påvise tilstedeværelsen av stråling, men ikke type stråling²².

²² Det kan brukes et passende skjermingsdeksel på det strålingspermeable vinduet til tellerøret for å utelukke alfa- og betastråling.

Siden en geigerteller fungerer som en enkel teller kreves det kun at man finner de optimale operative betingelsene der hver puls blir registrert av tellersystemet. I praksis velges de optimale betingelsene ved å sette opp en såkalt platåkurve for systemet (Figur 3-5), der en strålingskilde genererer hendelser med en konstant hastighet (L'Annunziata 2012). *Tellehastigheten* (antall tellinger per tid) registreres ved å gradvis øke høyspenningen som påføres elektrodene i GM-røret fra den laveste mulige verdien, som tilsvarer *startspenningen* (punkt A i figuren under).



Figur 3-5: Platåkurve for en geigerteller, der A – startspenningen, B – terskelspenningen («kneet»), B-C – platåområdet, C-D – sammenbruddsspenningen. Høyspenningen (HV) øker mot høyre langs x-aksen.

Hvis høyspenningen blir for lav, er det elektriske feltet i røret for svakt til å forårsake ionisasjoner, og det vil ikke bli registrert noen tellinger. Etter hvert som spenningen økes, oppnår man en tellehastighet. Overgangen mellom den raske stigningen av kurven og platået kalles *terskelspenningen* eller *kneet* (punkt B i figuren over). Området mellom startspenningen og terskelspenningen kalles *proporsjonalområdet*, der signalstyrken er en funksjon av strålingsenergien. Stabil drift av geigertelleren vil være mulig ved å velge en høyspenning fra platåområdet – der tellehastigheten er konstant. Her vil det dannes UV-fotoner som gir maksimal ionisasjon uansett styrke på den inngående strålingen, slik nevnt tidligere. Hvis spenningen heves tilstrekkelig høyt (*sammenbruddsspenningen*), slutter platået brått på grunn av kontinuerlige utladningsmekanismer i røret og dette kan potensielt være skadelig for detektoren (Vose 1980).

3.3.1 Bruk av Geiger–Müller-teller i denne masteroppgaven

En geigerteller vil være tilstrekkelig til bruk i et nuklidegeneratorforsøk der formålet er å fastsette halveringstiden til den kjente datternukliden som melkes ut av kolonnen.

4 Utvikling av en generisk RoboLab-mal

4.1 Oppgradering av NAA-RoboLab

NAA-RoboLab ble opprinnelig programmert i versjon 7.1 av LabVIEW, som er en eldre versjon. Programmet benyttet de den gang nye og innovative LabVIEW-verktøyene for å enkelt publisere virtuelle instrumenter på en nettside. Dette ble oppnådd ved innebygd teknologi i LabVIEW som genererte et interaktivt bilde av VI på en nettside, forutsatt at den nyeste versjonen av en LabVIEW programvareutvidelse var installert i nettleseren på klientmaskinen, og at den lokale brannmuren var riktig konfigurert. Nettsiden hos klienten kommuniserte direkte, gjennom programvareutvidelsen, med den faktiske VI-en som kjørte og kontrollerte RoboLab-maskinvaren på vertsdatabasemaskinen²³ i det fysiske laboratoriet. Brukergrensesnittet hos klienten (kalt *webVI*) var et speilbilde av vertens VI, og det var derfor ikke nødvendig med ekstra programmering eller redigering av nettsider.

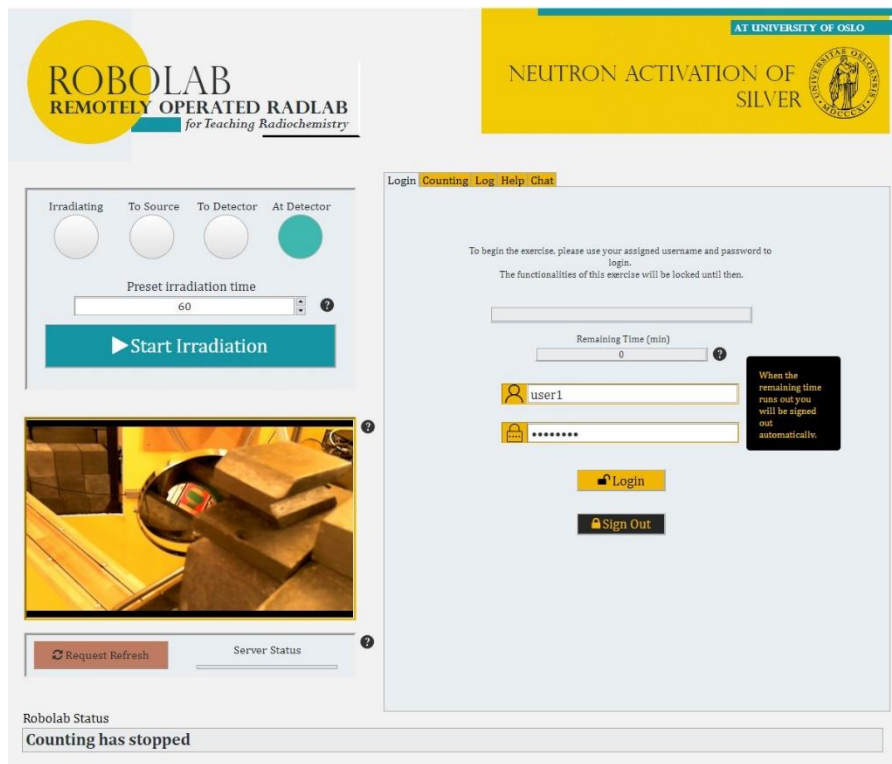
De to overnevnte kravene om programvareutvidelse og brannmurkonfigurering viste seg å bli et økende hinder ettersom nye versjoner av LabVIEW (både 32- og 64-bit) ble introdusert årlig. Videre ble nettverkssikkerheten gradvis økt i de fleste organisasjoner. Dette gjorde det mer og vanskeligere for brukerne å koble seg til RoboLab-verten, som normalt vil være plassert på et annet campus og bak en annen brannmur. Videre ble ikke alle nettlesere støttet av LabVIEW; Microsofts Internet Explorer var den anbefalte nettleseren. Totalt sett ble det upraktisk å kjøre det originale systemet som tiltenkt, og institusjoner som ønsket å kjøre øvelsen ble nødt til å gjøre dette gjennom tjenester som «Remote Desktop» der de fikk direkte tilgang til vertsdatabasemaskinen. Det gamle systemet var ikke bærekraftig. Støtte for, og utvikling av, slike klientsystemer ble etter hvert avvirket av NI.

På grunn av dette var det nødvendig å skrive om RoboLab-programmet for å kunne gi ekstern brukertilgang på en annen måte. Målet var å sikre at brukere kunne ha tilgang RoboLab uten å behøve å installere noe. I 2017 lanserte NI et helt nytt verktøy, kalt *LabVIEW NXG* (National Instruments Corp. 2022). LabVIEW NXG var en alternativ versjon av LabVIEW med mer moderne funksjonalitet i brukergrensesnittet for programmererne. Denne versjonen dekket behovet for å kunne gi brukere ekstern tilgang og valget falt derfor på å bruke den nye NXG webVI-funksjonaliteten for å lage de web-baserte RoboLab-klientene.

Det nye LabVIEW NXG-systemet erstattet den gamle webVI-speilingsteknologien med et skybasert konsept og en ny type webVI som er frittstående fra vertsprogrammet. Ingen plug-in er nødvendig, men to programmer må skrives – ett for vertsdatabasemaskinen som håndterer maskinvaren, og ett for klientdatabasemaskinen der RoboLab-brukeren kjører eksperimentet. Data mellom de to systemene overføres via en skytjeneste kalt *SystemLink Cloud*, som drives av NI. Skytjenesten reduserer brannmurhindringen til det gamle systemet betydelig uten å ofre sikkerheten. Denne metoden for å

²³ «Vert» er i denne oppgaven synonymt med «server».

eksportere virtuelle instrumenter til nettsider er basert på vanlig HTML og JavaScript (JS) programmering. Brukergrensesnittet for det nye NAA-klientprogrammet utviklet i NXG V5.1 er vist i Figur 4-1.



Figur 4-1: Skjerm bilde av brukergrensesnittet til det nye NAA-klientprogrammet (webVI) som ble utviklet i LabVIEW NXG V5.1. Som før, er videooverføringen implementert inn i programmet for å gi oversikt over eksperimentet i sanntid. Ved å skyve musepekeren over spørsmålstegetene (som er tilgjengelige gjennom hele øvelsen) vil brukeren kunne få opp en veiledende tekst (høyre, sort boks). All funksjonalitet er låst inntil brukeren har tastet inn korrekt brukernavn og passord.

I utgangspunktet kompilerer LabVIEW NXG et program utviklet i LabVIEW til JS og bygger det inn i et HTML-dokument. JS og HTML, samt C++ kode skrevet utenom LabVIEW, kan legges inn for å implementere GUI-elementer som ikke er tilgjengelige gjennom LabVIEW. Dette åpner opp for mange nye utviklingsmuligheter og økt fleksibilitet. I brukergrensesnittet i Figur 4-1 ble tilleggskode skrevet for å blant annet skape visuelle effekter (skrifttype, skyggelegging, ikoner, etc.) og for implementering av veiledingsvinduer.

Som nevnt tidligere, går kommunikasjonen mellom vert og klient nå via en skytjeneste. Det bør tydelig bemerkes at med dette systemet er programvaren som kjører på verten og klienten to forskjellige programmer. Dette har ingen betydning for klientbrukeren (student/lærer), men legger til noe kompleksitet til programmeringen av RoboLab. En fordel er at det også tilfører høyere fleksibilitet, for eksempel ved å tillate ekstra funksjonalitet på serveren som er usynlig for klienten.

De overnevnte kommunikasjonsmulighetene ga grunnlag for å starte å utvikle en generisk RoboLab-mal for serverprogrammet som skal kunne brukes i oppgradering av gamle RoboLab-øvelser, og til utvikling av nye. Malen ble gradvis til under arbeidet med oppgradering av NAA-øvelsen, og øvelsen kan ansees å bruke en betaversjon²⁴ av denne malen.

4.1.1 SystemLink Cloud

Skytjenesten – SystemLink Cloud – kan inneholde data (variabler) som kan oppdateres og leses av både verten og klienten. Hver variabel er merket med *Tags* som inneholder et unikt navn som brukes av verten og klienten(e) for å få tilgang til dataene. Dataene kan bare være av enkle typer (boolsk, heltall, reelle tall, streng). Arrays eller andre mer komplekse datatyper støttes ikke.

Med de taggedede variablene finnes det ingen funksjonalitet for å sikre at en oppdatert verdi lastet opp til skyen, av for eksempel. verten, sendes automatisk videre til klienten. Det er programmererens ansvar å enten se etter oppdaterte verdier med jevne mellomrom («*polling*»), eller innlemme en slags håndtrykksprotokoll (eng.: *handshake*) for å oppdage og laste ned oppdaterte dataverdier når de er tilgjengelige. Dette ble forutsett av NI under utviklingen av SystemLink Cloud-tjenesten, og *Messages* ble implementert i tjenesten. Med denne funksjonaliteten er det ingen (tagget) variabel i skytjenesten. I stedet abonnerer verten og klienten på én eller flere meldingskanaler. For en gitt meldingskanal vil enhver SystemLink-melding som publiseres til den bli mottatt av alle som abonnerer på den kanalen. SystemLink-meldinger kan være hva programmereren definerer, for eksempel kan de flagge at data har blitt oppdatert med nye verdier, det kan være en kommando generert av brukeren, det kan være informasjon om at visse forhold er nådd av laboratoriemaskinvaren (som slutten av målingen når en forhåndsinnstilt tid er nådd), eller det kan ganske enkelt være ferske data.

Kombinasjonen av taggedede variabler og meldingskanalene gir et allsidig verktøy for å sende data frem og tilbake mellom verten (server) og klienten(e).

4.1.2 Videooverføring

Da RoboLab-system for NAA ble oppgradert, viste overføring av video eller høykvalitetsbilder seg å være uaktuelt å gjøre gjennom skytjenesten – skytjenesten er ikke satt opp for å håndtere slike datamengder. Slik det kan sees fra kapittel 1.1.2, der de tidligere RoboLab-øvelsene beskrives, er videooverføring en naturlig og viktig del av et RoboLab-oppsett da det gir en følelse av tilstedeværelse i det fysiske laboratoriet. Derfor må videooverføring av det som foregår i fjernlaboratoriet overføres på andre måter. Det gamle RoboLab-systemet hadde ganske enkelt et bilde innebygd i VI som ble oppdatert med en lav bildefrekvens, typisk 2-5 bilder per sekund (fps). Dette er tregt sammenlignet med vanlig video (30 fps), men ble vurdert som tilstrekkelig for formålet.

²⁴ Versjon som har blitt testet internt, og som er klar til å bli testet av et mindre utvalg av sluttbrukere.

De NXG-baserte webVI-ene bruker JavaScript (JS) og HTML-kode for å kjøre klientens webVI-program. Derfor kan video legges til nettsiden ved å bygge inn en videostrøm. En åpen JS-kildekode ble inkludert i JavaScript Library Interface (JSLI) i nettapplikasjonen. JSLI-filen gir inngangspunkter (eng.: *entry points*) til JS-funksjoner som håndterer videooverføring.

Når webVI-en eksekveres kaller inngangspunktene fra inngangen JS-funksjonene, og utdataene blir returnert fra JS-funksjonene til diagrammet. Denne funksjonaliteten krever NXG versjon 5.0 eller nyere. Andre videooverføringsmetoder er mulige, for eksempel å sette inn en innebygd videostrømmetjeneste direkte i HTML-koden til programmet, men det fungerer kun hvis videofiltypen støttes av LabVIEW. Under arbeidet med oppgradering av NAA-øvelsen var ikke den sistnevnte metoden mulig, mest sannsynlig på grunn av formatet på strømmetjenesten som er tilgjengelig ved UiO. Det ble også forsøkt å bygge inn en direktestrøm (*livestream*) fra YouTube i HTML-koden, uten hell. Videostrømmen kan ses i et eget vindu, men dette legger til kompleksitet i brukeren.

4.1.3 Brukeraksepttesting

Et fungerende system ble gjort tilgjengelig for testing av reelle brukere. Videoen måtte overføres separat ved bruk av direktestrøm gjennom YouTube, men dette forhindret ikke at systemet ble brukt til faktiske laboratorieøvelser. 16 studenter fra IRS ved Leibniz Universitetet i Hannover (gruppert to-og-to) deltok i et laboratoriekurs som inkluderte gjennomføring av NAA RoboLab-øvelsen.

Bruk av direktestrøm ga en fordel i form av et chattevindu. Siden en RoboLab-operatør var på plass i Oslo under denne første testen av systemet (i tilfelle det skulle oppstå tekniske problemer), var det enkelt å gi direkte hjelp og veiledning til elevene under eksperimentet. Uventet demonstrerte dette en ny måte å bruke RoboLab på - et fjernstyrt system, men med en lærer på nettet som assisterer og veileder studenten(e) under eksperimentet. Dette er mer tidkrevende for læreren, men det forbedrer læringsopplevelsen til studentene, noe som kom tydelig frem i tilbakemeldingene deres etter endt øvelse.

Erfaringene fra testkjøringen med Hannover-studentene var svært nyttige. Den generiske RoboLab-malen for serverprogrammet kunne videreutvikles, og testen viste at systemet var pålitelig. Det ble oppdaget en rekke mindre programvarefeil som vil bli rettet opp i neste versjon av systemet:

- Studentene fikk serverprogrammet til å krasje ved å gjentatte ganger taste feil brukernavn/passord.
- Logg inn-knappen måtte trykkes ned i flere sekunder for å få respons.
- Videostrømmen (YouTube) ble på et tidspunkt forsinket og studentene så ikke at sølvplaten ble flyttet til kilden/detektoren. Dette vil løses ved å implementere videoen direkte inn i brukergrensesnittet til øvelsen.

- Det oppsto problemer i forbindelsen til SystemLink Cloud, og tellingene på brukersiden var ikke i samsvar med tellingene på serveren. Operatøren måtte skrive de korrekte tellingene i YouTube-chatten.

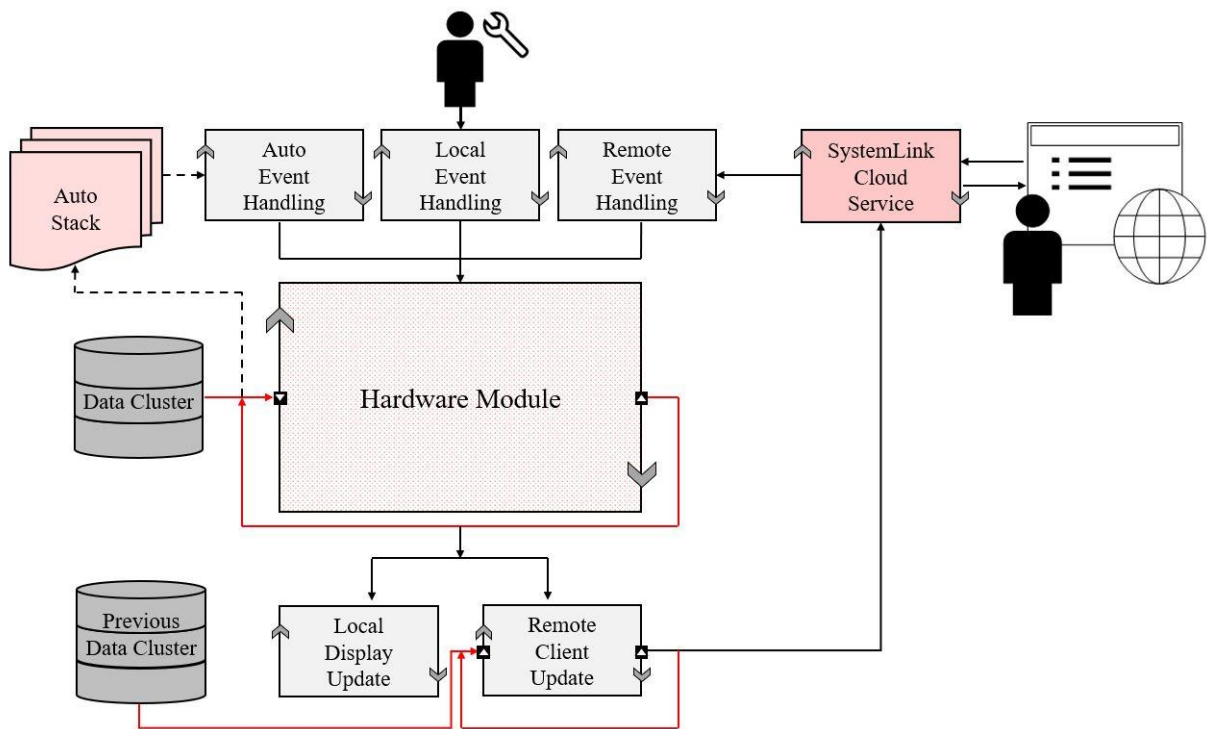
Et mer omfattende problem med systemet og måten SystemLink-kommunikasjonen er implementert på ble fremhevet under testingen. Responstiden til visse deler av systemet er veldig lang. Dette skyldes det trege meldingssystemet kombinert med en ganske kompleks hovedløkke. I videre arbeid med malen har fokuset vært på oppdeling av hovedløkken inn i flere moduler (se kapittel 4.2), og større tilrettelegging for bruk av SystemLink-kommunikasjon. Det bør derimot understrekes at NAA-øvelsen er fullt funksjonell i dens nåværende implementering.

Samtidig som oppgraderingen ble fullført, ble LabVIEW NXG avvirket – versjon 5.1 som NAA-øvelsen er utviklet i ble meldt å være den aller siste versjonen av NXG. Denne ble erstattet med LabVIEW 2021 (+)²⁵, som integrerer noen av de viktigste programfunksjonene til NXG i kodebasen sin (blant annet SystemLink Cloud). WebVI-funksjonaliteten til NXG er utgitt som et frittstående produkt – *NXG Web Module* – og er kompatibel med LabVIEW 2021 (+). Siden støtten for NXG etter hvert opphører, bør det på sikt vurderes å flytte serverprogrammet over til LabVIEW 2021 (+). Dette vil føre til noe mindre omskriving av koden, da ikke all NXG-funksjonalitet ble videreført av NI. Klientprogrammet (webVI) er derimot veldig enkelt å migrere.

4.2 Videreutvikling av RoboLab-mal

På grunn av utviklingen av NXG ble alt videre arbeid med RoboLab-malen overført til LabVIEW 2021 (+). Basert på brukeropplevelser (se kapittel 4.1.3) og intern testing av NAA-øvelsen ble det avdekket et behov for å endre den nye RoboLab-malen for serverprogrammet. Som nevnt tidligere, er denne malen spesialutviklet til å passe alle RoboLab-øvelsene, og er tenkt å være fleksibel slik at det er lett å korrigere kun deler av koden hvis det fysiske oppsettet endres. Det skal samtidig være enkelt å videreutvikle programmet til å håndtere et mer komplekst styringssystem. Figur 4-2 viser den generelle logikken bak den endelige serverapplikasjonsmalen for RoboLab.

²⁵ Ny versjon utgis årlig.



Figur 4-2: Forenklet flyttdiagram for et generelt driverprogram til RoboLab, inkl. SystemLink. Alle modulene er plassert i hver sin while-løkke og kjører prosesseres parallelt inntil stoppbetingelsene er nådd.

Programstrukturen er basert på oppdeling av oppgaver. LabVIEW har innebygde parallellbehandlingsmuligheter som gjør en slik oppdeling relativt enkel å implementere. Hver oppgave er skrevet som en frittstående modul som kjører på egen hånd og omhandler kun et bestemt aspekt av det totale systemet. Modulene kommuniserer med hverandre gjennom meldinger (må ikke forveksles med SystemLink-meldinger som er kommunikasjon mellom *server-* og *klient*program) og systemvariabler.

Kjernen i applikasjonen er maskinvaremodulen (Hardware Module). Denne modulen kontrollerer laboratoriestyret og rapporterer status og resultater. Den opereres med meldinger utstedt av andre moduler og samhandler ikke direkte med den lokale eller eksterne brukeren. Slike interaksjoner håndteres av de lokale (Local Event Handling) og eksterne (Remote Event Handling) hendelsehåndteringsmodulene. Hendelser for sistnevnte modul mottas gjennom skytjenesten SystemLink Cloud via SystemLink-meldinger (*SystemLink Messages*) og tagger (*SystemLink Tags*). De to modulene oversetter brukerinteraksjoner til meldinger. En kommando som for eksempel start telling vil bli håndtert likt uavhengig av om det er gitt lokalt (fra tastaturet på serverdatamaskinen) eller mottas eksternt (gjennom nettklienten som sender SystemLink-meldinger via skytjenesten). I begge tilfeller vil resultatet av kommandoen være en identisk melding sendt til maskinvaremodulen for å begynne å telle.

En tredje modul er også i stand til å sende kommandoer til maskinvaremodulen og regnes som en automasjonsmodul (Auto Event Handling). Den har en stakk (eng.: *stack*) med kommandoer individuelt merket med et tidsstempel (AutoStack). En kommando vil bli sendt når tidsstemplet samsvarer med systemklokken. På denne måten trenger maskinvaremodulen bare å handle på kommandoen (f.eks. begynne å telle), og trenger ikke å ta hensyn til når en kommando skal utføres – den vil få kommandoene tilsendt på korrekt tidspunkt fra Auto Event Handling-modulen. Dette gjør systemet enkelt, modulisert og derfor enklere å vedlikeholde.

Tilbakemeldinger til brukeren er også oppdelt. Maskinvaremodulen oppdaterer en «cluster»-variabel²⁶ (se Figur A10-1 i Appendiks A10 for et eksempel tatt ut av serverprogrammet for nuklidegeneratorøvelsen). Dermed oppdaterer maskinvaremodulen aldri data eller systemstatus direkte på verken den lokale dataskjermen eller det eksterne nettkonsollet. I stedet oppdateres disse av de tildelte modulene Local Display Update og Remote Client Update. Igjen sikrer dette enkelt vedlikehold av systemet – det er kun ett sted i programmet hvor data og status sendes til nettkonsollen, og det er kun ett sted hvor den lokale skjermen oppdateres.

Oppdelingsløsningen gjør det også enkelt å tilpasse oppdateringsfrekvensen for å passe båndbredden til klientkommunikasjonen. Den lokale datamaskinen oppdateres vanligvis med en frekvens på 20 Hz, uavhengig av om verdiene har endret seg eller ikke. En slik oppdateringsfrekvens kan ikke håndteres av skytjenesten på grunn av lav båndbredde. Derfor vil Remote Client Update-modulen kun sende de nylig endrede verdiene til skytjenesten og kun med en lav frekvens, typisk 1-2 Hz. Remote Client Update-modulen holder styr på hvilke data som har endret verdi ved alltid å lagre en kopi av dataclusteret fra forrige oppdatering. Ved å sammenligne nåværende og forrige cluster kan variabler med endret verdi identifiseres og sendes.

Den ferdigstilte malen ble senere brukt i utvikling av serverprogrammet for nuklidegeneratorøvelsen, som beskrives i kapittel 6.4.

²⁶ Et begrep i LabVIEW som brukes til å beskrive en variabel som kan holde på forskjellige typer data.

5 Utvikling av en simulert ^{234m}Pa -nuklidegenerator

Simulering av laboratorieøvelser gir et virtuelt miljø hvor brukeren blir introdusert for verktøy og prosedyrer som etterligner virkeligheten i laboratoriet. Studentene blir bedt om å gjennomføre øvelsen i henhold til instruksjonen som er gitt, enten inne i programmet eller på et eget ark. Hvis det blir gjort feil under gjennomføringen blir studentene oppfordret til å prøve på nytt. Denne tilnærmingen lar brukeren teste ut, eksperimentere med, og forstå systemet uten frykt for å gjøre potensielt farlige feil – og dermed siktes det på å øke nysgjerrigheten for og bevisstheten rundt arbeidet på et kjernekjemisk laboratorium.

Noen av fordelene med trening gjennom simulering kan være følgende:

- Erfaring før hands-on øvelser: studenter som har tidligere fått opplæring gjennom simulering forventes å være mer trygge på arbeidet de gjør på laboratoriet, og følgelig gjøre færre feil.
- Ingen HMS-relatert risiko: studentene veiledes nøye gjennom hele den simulerte øvelsen og kan prøve forskjellige tilnærminger uten risiko eller frykt for å gjøre noe som ville bli ansett som risikabelt på laboratoriet. På denne måten lærer brukerne av sine feil og blir mer bevisst på fremtidige risikomomenter.
- Fleksibelt og mobilt: den simulerte øvelsen kan utføres hvor som helst, og når som helst. Brukerne forventes derfor ikke å være begrenset av tidsplanene og behøver heller ikke å fysisk møte opp.
- Kostnadsreduksjoner: laboratorieøvelser med veileder/lærer til stede er kostbart. Simuleringer kan gjennomføres uten forbruk av materialer og med et minimum av veiledningstid (forutsatt at det finnes gode instruksjoner til hvordan oppgaven skal gjennomføres).

5.1 Kjemisk bakgrunn for ^{234m}Pa -nuklidegeneratorøvelsen

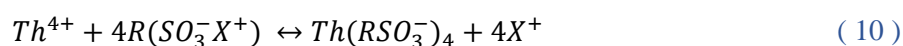
I denne øvelsen blir ^{234m}Pa melket fra et generatorsystem laget med en uranylacetatløsning (UAc) som inneholder naturlig forekommende uran (som uranyl, UO_2^{2+}). Naturlig forekommende uran er en naturlig sammensetning av ^{238}U (99,3%), ^{235}U (0,7%) og spormengder av ^{234}U (United States Nuclear Regulatory Commission 2021). ^{234}Th ($T_{1/2} = 24,10 \pm 0,03$ d) (Browne og Tuli, Nuclear Data Sheets for A = 234 2007), som produseres ved desintegrasjon av ^{238}U , lastes på en kationbytterkolonne. Ideelt sett, bør UAc-løsningen være minst 240 dager gammel (siden siste separasjon av thorium) for å tillate maksimal inngroing av ^{234}Th . ^{234}Th desintegrerer til ^{234m}Pa ($T_{1/2} = 1,159 \pm 0,011$ min) (Browne og Tuli, Nuclear Data Sheets for A = 234 2007), og protactiniumet har nådd maksimal inngroing etter omtrent 12 minutter. ^{234}Th og ^{234m}Pa er i sekulær likevekt. Når generatoren er laget kan den brukes gjentatte ganger til å, for eksempel, måle halveringstiden til ^{234m}Pa . Desintegrasjonsdata for de aktuelle nuklidene er listet opp i Tabell 5-1.

Tabell 5-1: Oppsummering av desintegrasjonsdata for noen av nuklidene i desintegrasjonsskjeden til ^{238}U . Energiene til utsendt stråling som har en intensitet på lavere enn 10% er ikke inkludert i oversikten. Energiene for betautsendelsene er oppgitt som gjennomsnittlige verdier. Usikkerheten er gitt i parentes. Tabellen ble laget med data fra (Browne og Tuli, Nuclear Data Sheets for A = 234 2007, Browne og Tuli, Nuclear Data Sheets for A = 238 2015).

Radionuklide	Halveringstid	Desintegrasjon	Energi (keV)	Intensitet (%)
^{238}U	4,468E9(6) a	α (100%)	4198(3)	79(3)
			4151(5)	21(3)
^{234}Th	24,10(3) d	β^- (100%)	53,6(9)	78(2)
			27,8(9)	14(2)
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1,159(11) min	β^- (99,94%) IT (0,16%)	820,5(17)	97,57(4)
^{234}Pa	6,70(5) h	β^- (100%)	137,1(13)	34(4)
			194,0(14)	20,4(18)
			137,2(13)	12,9(12)

UAc (eller et hvilket som helst annet, egnet uranylsalt), hvor ^{234}Th er i radioaktiv likevekt, løses opp i 1 M HCl og skylles gjennom en kationbytterkolonne. Det heksavalente U blir nærmest ikke adsorbent til sterke kationbyttere fra en 1 M HCl løsning (se distribusjonskoeffisientene for U og Th i 1 M HCl i Tabell A9-1 i Appendiks A9), og vil derfor passere gjennom kolonnen uforstyrret.

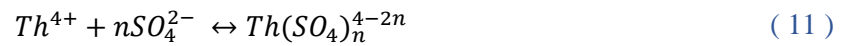
Det tetrapositive thoriumionet adsorberes mer på kationbytter-resinet enn de fleste andre ionene. Dette faktumet gjør det mulig å adsorbere spormengder av thorium fra store løsningsvolumer til en liten mengde resinmateriale. Følgende ligning beskriver hvordan thorium fester seg på en sulfonert kationbytter:



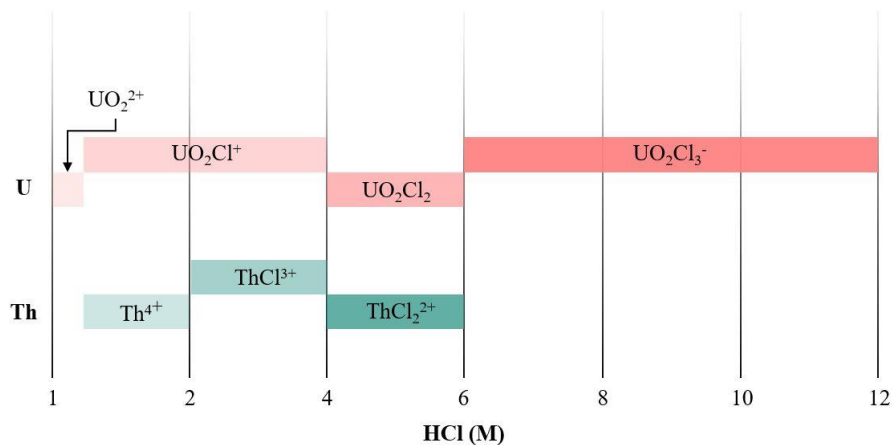
der X^+ er kationet som er festet til ionebytteren. Det er derfor også mulig å skille thorium fra de fleste andre ioner ved å grundig vaske resinet som thorium er adsorbent på med en syreløsning eller et annet utlakingsmiddel for å fjerne de uønskede ionene. Diamond, Street og Seaborg (1954) studerte adsorpsjon av sporioner på Dowex 50 resinet (en kopolymer av styren og DVB med sulfonsyregrupper som funksjonelle grupper) og eluering av ionene med saltsyre av varierende konsentrasjon. Ved alle saltsyrekonsentrasjonene var Th(IV) sterkt bundet til resinet og ioner som Sr(II), La(III), Ce(III) og Ac(III) ble raskt eluert. De tetrapositive tunge elementene Np(IV) og Pu(IV) ble raskt vasket ut med 6

M HCl eller mer fordi tyngre, tetravalente elementer danner sterke komplekser med saltsyre. Dette gjelder også for uranylionet.

Fra Tabell A9-1 i Appendiks A9 kan det sees at, gitt at syrekonsentrasjonen er konstant, adsorpsjonen av Th til en kationbytter er generelt høyest i HCl og lavest i svovelsyre. Den lave adsorpsjonen i svovelsyre skyldes dannelse av anioniske komplekser:

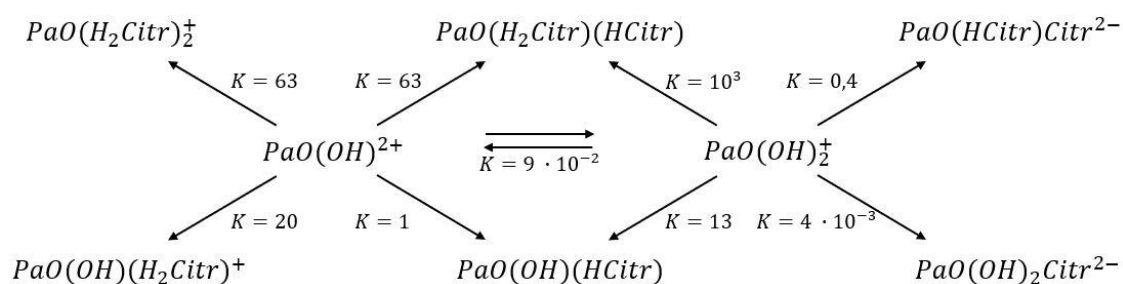


Ved lavere konsentrasjoner av HCl viser U høyere affinitet for sterke kationbyttere, mens høyere konsentrasjoner senker thoriums affinitet for kationbyttere. 1 M HCl, der K_d til U og Th tilsier en separasjonsfaktor >100 (se 3.2.1.2), er derfor valgt som en gunstig løsning for nuklidegeneratorformålet. Figur 5-1 under illustrerer hvilke specier som dominerer ved ulike saltsyrekonsentrasjoner.



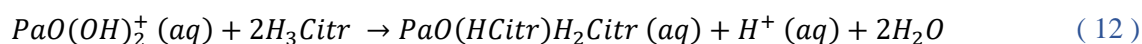
Figur 5-1: Dominerende specier av U og Th ved ulike konsentrasjoner av saltsyre (M). Endring i ladningene fører til endringer i ionenes affinitet til ionebytteren. Figuren er laget basert på informasjon fra (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 4-5).

Når thorium er festet til kolonnen, endres løsningsmidlet til sitronsyre. Mulige kompleksdannelser mellom sitronsyre og Pa(V) som ble foreslått av Keller (1970) er illustrert i Figur 5-2.



Figur 5-2: Kompleksdannelse mellom femverdig Pa og sitronsyre (ved ionestyrke $\mu = 3$). Figuren er en adaptert versjon av Figur 9.8 i «*The Chemistry of the Transuranium Elements*» (Keller 1971, 204). Det kationiske spesielt av Pa(V) som er postulert å være til stede i en ikke-kompleksdannende, vandig løsning er $PaO(OH)_2^+$. Likevektskonstantene oppgitt her er kun veiledende.

Basert på informasjonen fra figuren over, vil sitronsyre trolig danne et nøytralt kompleks med protactinium, og protactinium vil derfor elueres etter følgende ligning:



der H_3Citr er triprotisk sitronsyre. Ligningen over ble foreslått av professor Jorolf Alstad i personlig kommunikasjon med Jon Petter Omtvedt (1998).

Thorium kan fjernes fra en kationbytter ved påsetting av et komplekseringsmiddel til kolonnen for å redusere den effektive konsentrasjonen av frie thorium ioner og dermed reversere adsorpsjonsprosessen. Dyrssen (1950) separerte UX_1 (^{234}Th) fra uran ved adsorpsjon av UX_1 på Wolfatit KS fra en 2 M saltsyreløsning av uran. Renset UX_1 var deretter eluert med 0,5 M oksalsyre. Siden thoriumoksalat er ikke-løselig er det sannsynlig at noe av thoriumet ikke vil bli vasket ut på denne måten (Hyde 1960, 36). EDTA har i litteraturen også blitt foreslått som et godt komplekseringsmiddel for fjerning av fireverdig thorium fra en kationbytter (Reiman og Walton 1970, 150), men vil ikke bli testet som en del av denne masteroppgaven.

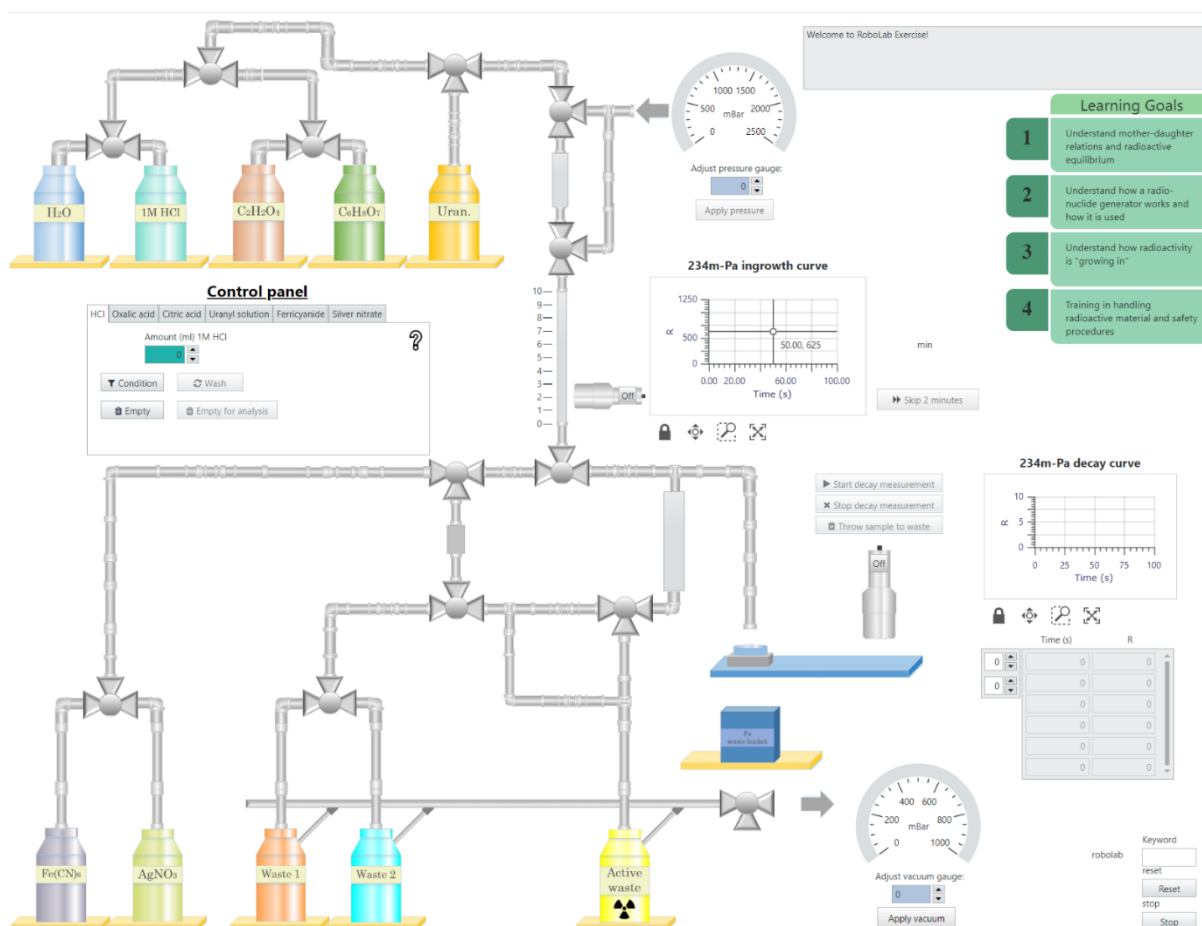
5.2 Fastsetting av studentenes læringsmål

Læringsutbyttet som en student forventes å ha etter å ha fullført ^{234m}Pa -nuklidegeneratorøvelsen – både den fjernstyrte og den simulerte – er følgende:

- Aspekter av uran, thorium og protactinium kompleksdannelseskjemi,
- Prinsipper for ionebytting og hvordan en ionebytterkolonne fungerer,
- Forstå mor-datter-relasjoner og radioaktiv likevekt,
- Forstå hvordan en radionuklidegenerator fungerer og hvordan den brukes,
- Praktisk erfaring med bruk av ionebytterkolonner som radionuklidegeneratorer,
- Forstå hvordan man analyserer en desintegrasjonskurve.

5.3 Simuleringens brukergrensesnitt

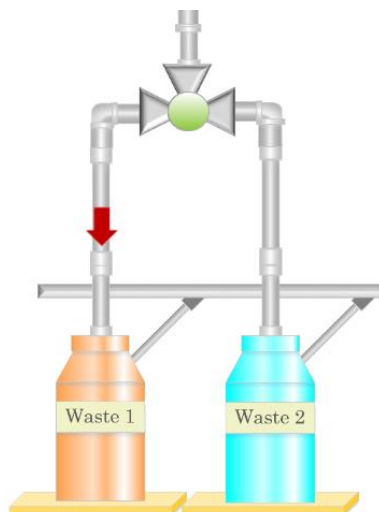
Brukergransesnittet (forkortes som UI (eng.: *user interface*)) til det simulerte nuklidegeneratorprogrammet (Figur 5-3) er utformet for å være brukervennlig og interaktivt. De grafiske UI-elementene, som for eksempel kjemikaliebeholdere, ventiler, rør og piler, er enkle illustrasjoner laget i Microsoft Visio. Disse spiller en viktig rolle for å gjøre øvelsen interaktiv ettersom illustrasjonene endres ved bestemte brukerhandlinger.



Figur 5-3: Skjerm bilde av brukergrensesnittet til det simulerte nuklidegeneratorprogrammet.

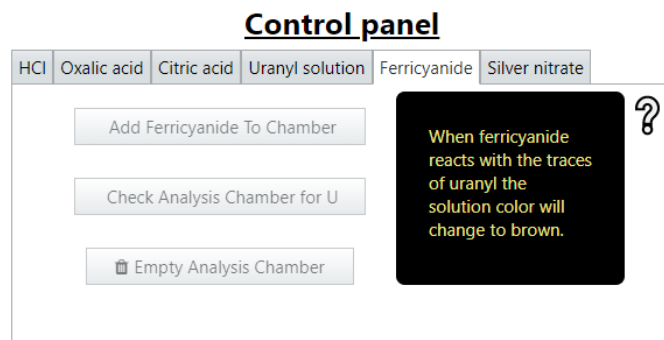
Beskrivelse av de grafiske UI-elementene og deres funksjon, samt viktige operasjonsdetaljer er oppgitt under:

- For separasjonsprosessen må det være mulig å tilsette UAc, saltsyre, sitronsyre, oksalsyre og vann til systemet. Dette oppnås ved at et rørdningsnettverk kobles til forsyningsflaskene og væsken ledes av 3/2-veis ventiler (beskrevet i Appendix A2.3). Når brukeren velger en spesifikk forsyningsflaske, for eksempel ved å klikke på «Add U», åpnes ventilene etter tur langs banen mellom den aktuelle flasken og kolonnen. Ventilåpningen er illustrert med et grønt LED-lys som skrus på når ventilen er «PÅ» (Figur 5-4).



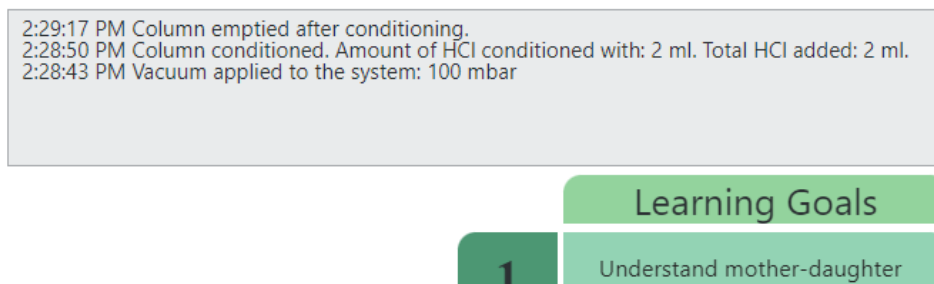
Figur 5-4: Utsnitt fra simuleringens UI. Ventilstatusen «PÅ» symboliseres med en grønt LED-lys. Retningen på væskestrømmen er illustrert med bevegende piler, her mot avfallsbeholderen «Waste 1».

- Logikken som styrer ventilene er ikke tilgjengelig for brukeren, men bestemmes av programmet. Dette forhindrer «ulykker» og en myriade av driftsalternativer som ville være svært kompliserte å forutse programmatisk.
- Brukeren kan følge væskestrømmen ved å se på animerte piler som vises langs den aktuelle gjennomstrømningsruten. (se Figur 5-4 over).
- Væskene som strømmer gjennom systemet sorteres i merkede avfallsbeholdere. Det skilles mellom radioaktivt avfall og ikke-radioaktivt avfall. I tillegg er det en separat beholder for uforynnnet uran som kan lagres og brukes på nytt senere (nytt ^{234}Th gror inn til metning i løpet av ca. 240 dager).
- Ytterligere rør er installert fra kolonnen og inn i analysekammeret og detektorkoppen. Trykk- og vakuuminntak og -uttak visualiseres også med animerte piler. Væsken «pumpes» normalt gjennom ved vakuumsug (tryggere i et ekte laboratorium), mens trykk må påføres kolonnen for å drive væsken ut av og inn i detektorkoppen.
- To detektorer er installert i det simulerte systemet. Den ene detektoren er for å måle inngroing av $^{234\text{m}}\text{Pa}$ på kolonnen, mens den andre er for å registrere desintegrasjonen til $^{234\text{m}}\text{Pa}$.
- Hjelp med både funksjonaliteten til programmet og den teoretiske delen av øvelsen er tilgjengelig i UI (Figur 5-5). Hvis brukeren er i tvil, vil et vindu med forklarende tekst vises når musepekeren skyves over det nærmeste spørsmålsteget. Inspirasjon for denne funksjonen er hentet fra NAA-øvelsen.



Figur 5-5: Et vindu med nyttig informasjon vil vises hvis musepekeren skyves over spørsmålsteget. Slike vinduer er tilgjengelig flere steder i UI og brukes til veiledning.

- Et loggevindu er tilgjengelig for å holde oversikt over handlingene som utføres av brukeren (Figur 5-6). Brukeren refereres til loggen for å sjekke når og hvor mye av noe har blitt tilsatt, når kolonnen ble fylt eller tømt, og så videre. Alle data fylles inn automatisk.



Figur 5-6: Utsnitt fra UI. Alle handlingene som utføres av brukeren føres automatisk inn i loggen.

5.4 Forsøksinstruksjoner for den simulerte øvelsen

Den simulerte nuklidegeneratorøvelsen tar utgangspunkt i de opprinnelige forsøksinstruksjonene som blir brukt i kurset KJM5912 – Radiokjemi (Bjørnstad, Production and Measurement of Pa-234m Nuclide Generator u.d.), men tilpasses for fjernstyring – steg 1 og 10 i prosedyren under har blitt lagt til. Det har ikke blitt foretatt noen optimaliseringer av prosedyren med tanke på blant annet kjemikalier og tilsetningsvolumer på tidspunktet da simuleringsprogrammet ble utviklet. Alle tilsetningsmengdene oppgitt i prosedyren under tilsvarer mengdene som blir brukt i laboratoriekurset. Følgende steg for simuleringsprogrammet vil derfor, til en viss grad, være ulike fra stegene oppgitt i senere beskrivelser av prosedyren:

1. Vakuomet justeres til 80-400 mbar.
 - En vilkårlig verdi innenfor dette området vil være et gyldig valg.
2. Kolonnen kondisjoneres med 2 ml 1 M HCl.
 - Kondisjoneringssteget er valgfritt for brukeren. Hvis det ikke utføres noe kondisjonering reduseres retensjonen av ^{234}Th , og dermed reduseres også den totale

mengden ^{234m}Pa som produseres. Reduksjonen vil påvirke deteksjonssteget i form av en lavere tellehastighet.

3. Thorium festes på kolonnen ved å pumpe 1 ml av UAc-løsningen gjennom.
 - De neste stegene i øvelsen er låst (knappene er deaktivert) inntil brukeren har pumpet UAc-løsningen gjennom kolonnen.
4. Kolonnen vaskes med 2 ml 1 M HCl for å skylle ut alle rester av UAc.
5. For å undersøke om det fremdeles finnes rester av UAc på kolonnen tilsettes en dråpe kaliumferrocyanid – $\text{K}_4[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ – inn i analysekammeret.
 - Kaliumferrocyanid setter en dyprød farge på løsningen hvis uranyl er til stede, og denne reaksjonen brukes ofte i kvalitativ analyse for å identifisere uran (Grindler 1962, 42).
6. Hvis det dannes uranylferrocyanid i analysekammeret blir brukeren bedt om å fortsette å skylle med HCl frem til testen ikke gir noe utslag.
7. Når testen ikke gir utslag, og innholdet i analysekammeret er overført til en avfallsbeholder, vaskes kloridioner ut med 2 ml 10% sitronsyre.
8. Tilstedeværelse av kloridioner testes for med sølvnitrat. Testen utføres i analysekammeret. Hvis kloridioner er til stede, vil det dannes et bunnfall: $\text{AgNO}_3 (\text{aq}) + \text{Cl}^- (\text{aq}) \rightarrow \text{AgCl} (\text{s}) + \text{NO}_3^- (\text{aq})$
9. Når kolonnen er ferdigvasket for uranyl- og kloridioner, og 2 ml sitronsyre er tilsatt til kolonne, vil detektoren på høyre side av kolonnen begynne å registrere protactiniums inngroing, og inngroingskurven kan observeres på et plott. En nedtelling fra 12 minutter settes i gang (ca. 10 halveringstider for ^{234m}Pa) for å la inngroingen nå metning.
 - I det simulerte programmet kan brukeren hoppe frem to minutter av gangen ved å klikke på «skip»-knappen.
10. Trykket justeres til en verdi mellom 800-2100 mbar (justeres ved det øverste manometeret på Figur 5-3). Hvilken verdi som velges innenfor det gitte området spiller ingen rolle.
11. Etter 12 minutter tilsettes sitronsyre til kolonnen og innholdet tømmes deretter inn i tellebegeret. Tellebegeret sendes til detektoren.
 - Tiden brukeren bruker mellom tømming av kolonnen og start av desintegrasjonsmålingen registreres og forsinkelsen reflekteres i den oppnådde desintegrasjonshastigheten målt av detektoren (og i måletabellen). Desintegrasjonskurven plottes automatisk over måletid.

5.5 Den simulerte øvelsen som en del av kurset KJM5912

Som nevnt tidligere er generering av ^{234m}Pa en av laboratorieøvelsene som inngår i kurset KJM5912 – Radiokjemi. Her ble det simulerte programmet brukt av seks studenter som en del av forberedelsene før fysisk gjennomføring av øvelsen på et radiokjemisk laboratorium (høsten 2020). Den simulerte øvelsen ble også gjennomført av 20 studenter på radiokjemikurset KJM3900 (høsten 2022). På

tidspunktet da øvelsen var en del av undervisningsopplegget har studentene ved dette kurset vært gjennom kun fire uker med teoretisk opplæring i radiokjemi, og de fleste studentene hadde ingen erfaring med praktisk arbeid på et radiokjemisk laboratorium. Deres evaluering av programmets nytteverdi i bruk for undervisning var derfor spesielt viktig for å blant annet forbedre dets funksjonalitet mot mindre erfarne brukere.

Basert på evalueringen fra totalt 26 studenter med ulik studieprogresjon og faglig bakgrunn kunne man konkludere med at en slik simulering gir bedre forståelse av hva som er forventet av studentene når de jobber med et system for nuklidegenerering. Tilbakemeldingene som ble mottatt fra studentene er oppsummert i Tabell 5-2.

Tabell 5-2: Oppsummering av tilbakemeldingene som ble mottatt fra totalt 26 studenter ved kursene KJM3900 og KJM5912. Seks av studentene gjennomførte den simulerte øvelsen som en del av forberedelsene før den fysiske laboratorieøvelsen.

Mest fornøyd med	Minst fornøyd med/forslag til endringer
Bedre forståelse av hands-on øvelsen (gjelder KJM5900).	Brukergrensesnittet kunne vært mer intuitivt.
Oversiktlig brukergrensesnitt.	Manglet en steg-for-steg-beskrivelse av oppgaven (gjelder KJM5900).
Enkelt å navigere rundt i programmet.	Manglet å kunne laste ned data.
Teoribeskrivelsen og selve øvelsen viste hvor «enkel» radiokjemi kan være.	Vanskelig å zoome inn på kurvene.
Gode forklaringer underveis – hvorfor man kondisjonere, hvilke fargeendringer man kan forvente å se hvis eller uran eller kloridionene er igjen i kolonnen.	Enkelte knapper var vanskelig å finne fordi de lå «gjemt» i faner – en mer konkret bruksanvisning ville hjulpet.
Veldig nyttige «spørsmålstegn» i hver seksjon. Gir kort og konsis informasjon om prosesser der gitt kjemikalie er med i.	Noe uklart hva som var forventet av studentene ved endt øvelse.
Flott å kunne samarbeide med andre, samtidig som man har hvert sitt eget «oppsett».	Ikke mye rom for tenking – spørsmål som må besvares underveis kunne gjort programmet mer interaktivt.
Feilmeldingene man fikk underveis var veiledende og nyttige for å forstå hvordan programmet skulle brukes riktig.	

Studentene ved KJM5912 opplevde at de var mer selvstendige på laboratoriet enn de selv først forventet, og de fleste fikk en god oversikt over de ulike stegene i gjennomføringsprosedyren. Ved å sveve musepekeren over spørsmålstegnene i programmet kunne de også få detaljert informasjon om hensikten bak hvert tilsetningssteg. Dette bidro til å øke forståelsen av den kjemiske bakgrunnen for øvelsen.

Forsøksbeskrivelsen som ble gitt til KJM5900-studentene var ment for den fysiske øvelsen, og det var derfor nødvendig å muntlig forklare stegene som avviker fra denne. Så snart dette ble gjort, og studentene gjorde seg kjent med brukergrensesnittet, gikk gjennomføringen av den simulerte øvelsen problemfritt. Det ble laget en egen bruksanvisning for den simulerte øvelsen før den ble gjennomført som en del av KJM3900 i 2022.

De fleste studentene ved KJM3900 fikk et godt inntrykk av øvelsen, der de mente at en god beskrivelse av teorien bidro til bedre forståelse av selve programmet. For å avslutte øvelsen ble det gjennomført en tilleggsaktivitet i Excel der studentene skulle bruke rådataene fra simuleringen til å plote en desintegrasjonskurve på egenhånd, og deretter beregne protactiniums halveringstid ved å gjøre en kurvetilpasning. Basert på de svært positive tilbakemeldingene, bør øvelsen alltid avsluttes med en slik regneoppgave for å være av høyere nytteverdi.

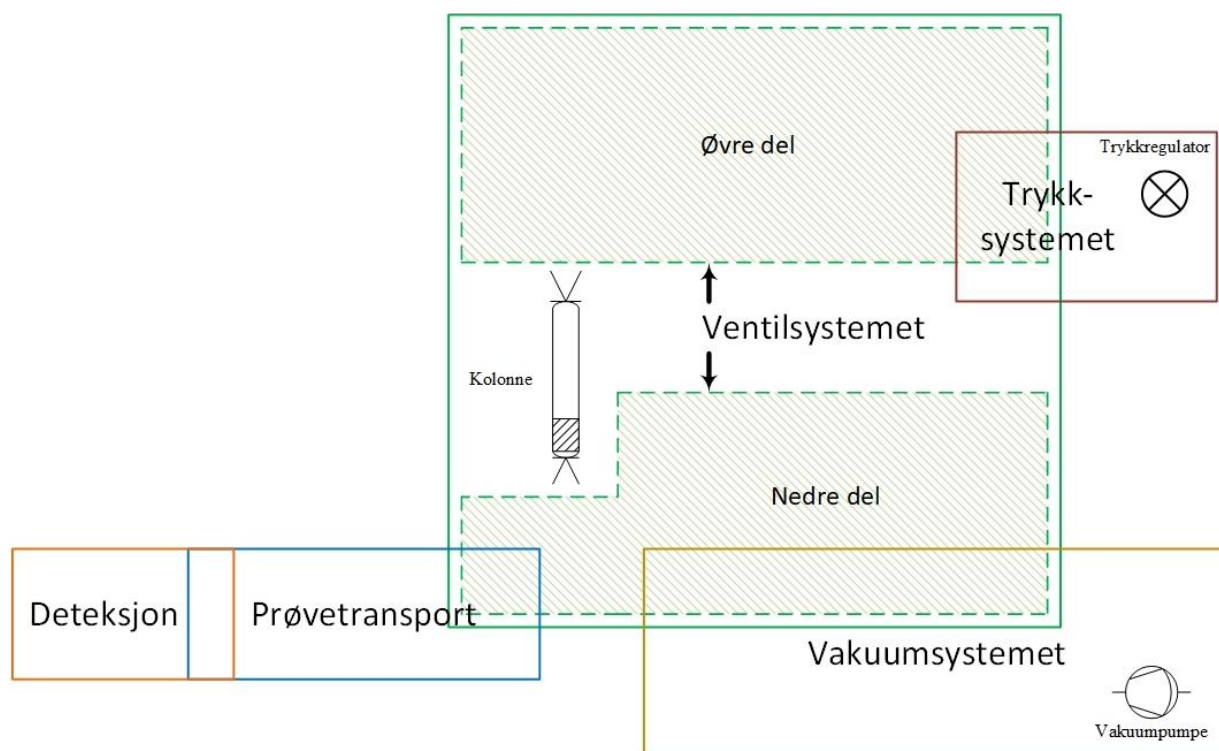
Simuleringen skal brukes i fremtidige generelle radio- og kjernekjemikurs, både ved UiO og ved andre institusjoner.

6 Realisering av nuklidegeneratorsystemet

Bygging, programmering, optimalisering og utprøving av et fysisk fjernstyrt nuklidegeneratoroppsett utgjorde den største delen av arbeidet som har blitt lagt i masterprosjektet, og vil bli beskrevet i dette kapitlet. Den simulerte øvelsen som ble beskrevet i forrige kapittel regnes å være et viktig forarbeidssteg som bidro til bedre forståelse av hvordan et fysisk system kunne bygges opp.

6.1 Utstyr og kjemikalier

Det fysiske oppsettet er satt sammen av flere systemer (Figur 6-1) som det er hensiktsmessig å beskrive hver for seg. Det endelige oppsettet er bygget inn i et avtrekkskap.



Figur 6-1: Forenklet skisse av oppsettets systemer. Ventilsystemet deles inn i to deler for ordenskyld. Den øvre og den nedre delen beskriver ventilenes posisjon i forhold til kolonnen, henholdsvis. Overlappende systemer er koblet sammen på ett eller flere punkter.

I tillegg til et I/O-grensesnitt med elektronikk for kommunikasjon mellom datamaskin og periferiutstyr (slik som ventiler, detektor, transportskinne), inkluderer det fysiske nuklidegeneratoroppsettet følgende enheter for styring og overvåkning av systemet:

- Ventiler,
- Vakuumpumpe (ikke koblet til det digitale styringssystemet i nåværende versjon),
- Trykkregulator (ikke koblet til det digitale styringssystemet i nåværende versjon),
- Prøveransportskinne,
- Detektor,
- Videooverføring – et kamera er koblet til en separat datamaskin,
- LED-dioder – LED-dioder er installert ved siden av hver ventil for å ha mulighet til å følge med på ventilstatusen via direkte videooverføring, i tillegg til de virtuelle lysindikatorene på frontpanelet.

Fullstendig liste over utstyret er gitt i Tabell A2-1 i Appendiks A2. Detaljert koblingsdiagram finnes i Figur 6-2.

6.1.1 Ventilsystemet

Ventilsystemet ble montert fast på en 40x40 cm aluminiumsplate og består av totalt 16 2/2- og 3/2-veis Bürkert vippemagnetventiler som er koblet sammen med Upchurch 1/16" x 0.040" PFA-slange og passende PEEK-fitting og ETFE-ferrule. En pluggforbindelse ble brukt for å etablere kontakt med en egenutviklet²⁷ relédrivkrets som har styringsinnganger basert på TTL-standard.

6.1.2 Vakuumsystemet

Vakuumpumpen er ikke koblet på I/O-grensesnittet, men er stilt inn manuelt til 900 mbar. Vakuumpumpen ble koblet opp mot de tre avfallsflaskene via flaskelokket som har tre luftingsventiler. En PFA T-kobling ble brukt for å fordele vakuumsuget mellom flaskene (se Figur 6-2) slik at alle flaskene har samme vakuum. Upchurch 1/8" PFA-slangen, som stammer fra T-koblingen, ble festet til en av luftingsventilene i flaskelokket ved hjelp av en PFA-hannkontakt fra Swagelok²⁸. Dette ble gjort for hver flaske.

6.1.3 Trykksystemet

Trykkluft for oppsettet ble hentet fra trykkluftsystemet i laboratoriet, levert fra en sentral kompressor. Trykkluften er manuelt regulert med en trykkregulator som også har en egen vannutskiller²⁹. Trykket leses av på et analogt manometer.

²⁷ Relédrivkretsen ble laget av det interne elektronikkverkstedet ved Kjemisk institutt.

²⁸ I tillegg var det nødvendig å bruke en adapter slik at hannkontakten kunne festes inn i lokket på flaskene. Denne er ikke oppgitt i utstyrslisten.

²⁹ Trykkluften fra kompressoranlegget kommer ofte med kondensvann og en slik vannutskiller er derfor nødvendig.

6.1.4 Prøvetransport

Systemet for å transportere prøver til og fra detektoren består av en stegmotor, en elektronisk kontrollenhet av typen LECP2, og en elektrisk skinne med bevegelig vogn – alt fra SMC Corporation. Kontrollenheten kan håndprogrammeres til å flytte vognen til gitte steder langs skinnen. For denne oppgaven ble tre posisjoner valgt: en posisjon i hver ende, samt en posisjon på midten av skinnen. Kontrollenheten har videre innstillinger for å velge vognens akselerasjon, hastighet og retardasjon. Dette gjør styringen svært enkel. Eksperimentoppsettets styringssystem velger vognens posisjon ved å sette tilstanden på to digitale linjer (fire tilstander kan velges): når begge linjene er lave (0 V) står vognen i ro (tilstand 00), mens velges tilstand 01, 10 eller 11 vil vognen gå til den tilhørende posisjonen 1, 2 eller 3. Posisjonene er konfigurert i NI MAX og gitt logiske navn, slik at det er enkelt å forstå hvilken posisjon som velges i styringsprogrammet i LabVIEW. Prøvene blir eluert fra kolonnen og eluatet ledes ned i en aluminiumsbeholder (spesiallaget av UiOs lokale instrumentverksted) som er montert på transportvognen.

6.1.5 Deteksjon

Geiger–Müller-røret er koblet på en *GPI GM Pulse Inverter* fra Spectrum Techniques Inc (se Figur A2-3 i Appendiks A2). GPI Pulse Inverter er designet for å koble en Geiger–Müller-detektor til en teller som krever positiv-polaritet-TTL eller NIM³⁰-logikkinnang (Spectrum Techniques Inc. u.d.). Pulsomformerer filterer det negative signalet fra GM-røret, inverterer dens polaritet, og produserer et positivt utgangssignal på 3 V (amplitude) og 20 µsek varighet. Strøm til GPI leveres fra høyspenningsforsyningen som brukes til å betjene GM-røret (se utstyslisten i Appendiks A2).

6.1.6 Kjemikaler og materialer

6.1.6.1 Ionebytterkolonne

Ionebytterkolonnen som blir brukt i nuklidegeneratorøvelsen (både i manuell og fjernstyrt) er Bond Elut® Plexa PCX (3 ml). Dette er en kommersiell, sulfonert kationbytter basert på styren/DVB kopolymer, og motionet er H⁺. Denne ble kjøpt inn av kjernekjemiavdelingen for bruk i kurs der nuklidegeneratorøvelsen er en del av laboratorieundervisningen, og ble derfor også brukt i denne masteroppgaven.

6.1.6.2 Ikke-aktive løsninger

De fire ikke-aktive løsningene som blir brukt i det fjernstyrte nuklidegeneratorforsøket er vann (Type II), 1 M saltsyre, 10% sitronsyreløsning, og 0,5 M oksalsyre. Øvrige løsninger (kaliumferrocyanid og sølvnitrat) er kun brukt under optimaliseringsprosessen.

³⁰ Forkortelse for Nuclear Instrumentation Module.

Beholderne til de vandige løsningene som blir brukt i nuklidegeneratoroppsettet er plassert i et spesiallaget stativ (Figur A2-2 i Appendiks A2) som er festet til veggen i avtrekkskapet. Løsningene trekkes ut av flaskene og inn til kolonnen gjennom en åpning i flasketokket. Denne åpningen er akkurat stor nok til at 1/16" PFA-slanger kan senkes ned i væsken og holdes der uten at slangen spretter opp. Dette er viktig av hensyn til driftssikkerheten, og for å unngå søl av kjemikalier, spesielt siden det jobbes med radioaktive væsker.

6.1.6.3 Uranylacetat

Radioaktivetskilden for dette eksperimentet er naturlig forekommende uran. I den opprinnelige prosedyren har den oppgitte UAc-løsningen en aktivitetskonsentrasjon på 3,5 kBq/g³¹, men siden oppsettet for øvelsen skulle settes opp i et radiokjemisk laboratorium av Type C, er det ikke tillatt å benytte uranholdige løsninger som har en aktivitetskonsentrasjon høyere enn 100 Bq/g. UAc-løsningen ble derfor fortynnet til 100 Bq/g (se utregning i Appendiks A5). Dette gir en fortynningsfaktor på ~35. Unntaksgrensen og aktivitetsgrensen for naturlig uran i laboratorier av Type C er gitt i Tabell 6-1 under. I laboratorier av Type C er den tillatte aktivitetsgrensen inntil 10 ganger aktivitetsgrensen oppgitt i strålevernforskriftens vedlegg om unntaksgrenser (Strålevernforskriften 2016).

Tabell 6-1: Oversikt over unntaksgrenser for naturlig uran.

	Aktivitet (Bq)	Aktivitetskonsentrasjon (Bq/g)
Unntaksgrense	1×10^3	1×10^0
Unntaksgrense i C-lab	1×10^4	1×10^1
Nedre grense for avfall	–	1×10^0

Tilberedningsprosedyre

For å ikke overstige den tillatte aktivitetsgrensen for et Type C-laboratorium må UAc-løsningen prepareres inne på et Type B-laboratorium der den tillatte aktivitetsgrensen er inntil 10⁴ ganger aktivitetsgrensen oppgitt i strålevernforskriften.

Deler av prepareringen foregikk i en hanskeboks slik at man mest mulig var beskyttet mot inhalering av finstøv fra UAc-saltet. Arbeid i en hanskeboks krever ofte at man blir assistert under tilberedningsprosedyren.

En mengde av UAc ble overført til en plastbeholder med lokk og videre veid av assistenten. Når vektavlesningen stemte overens med utregningene for den tillatt mengden UAc som man kan ha i et Type C laboratorium, ble saltet brakt tilbake inn i hanskeboksen og deler av det totale volumet av 1 M

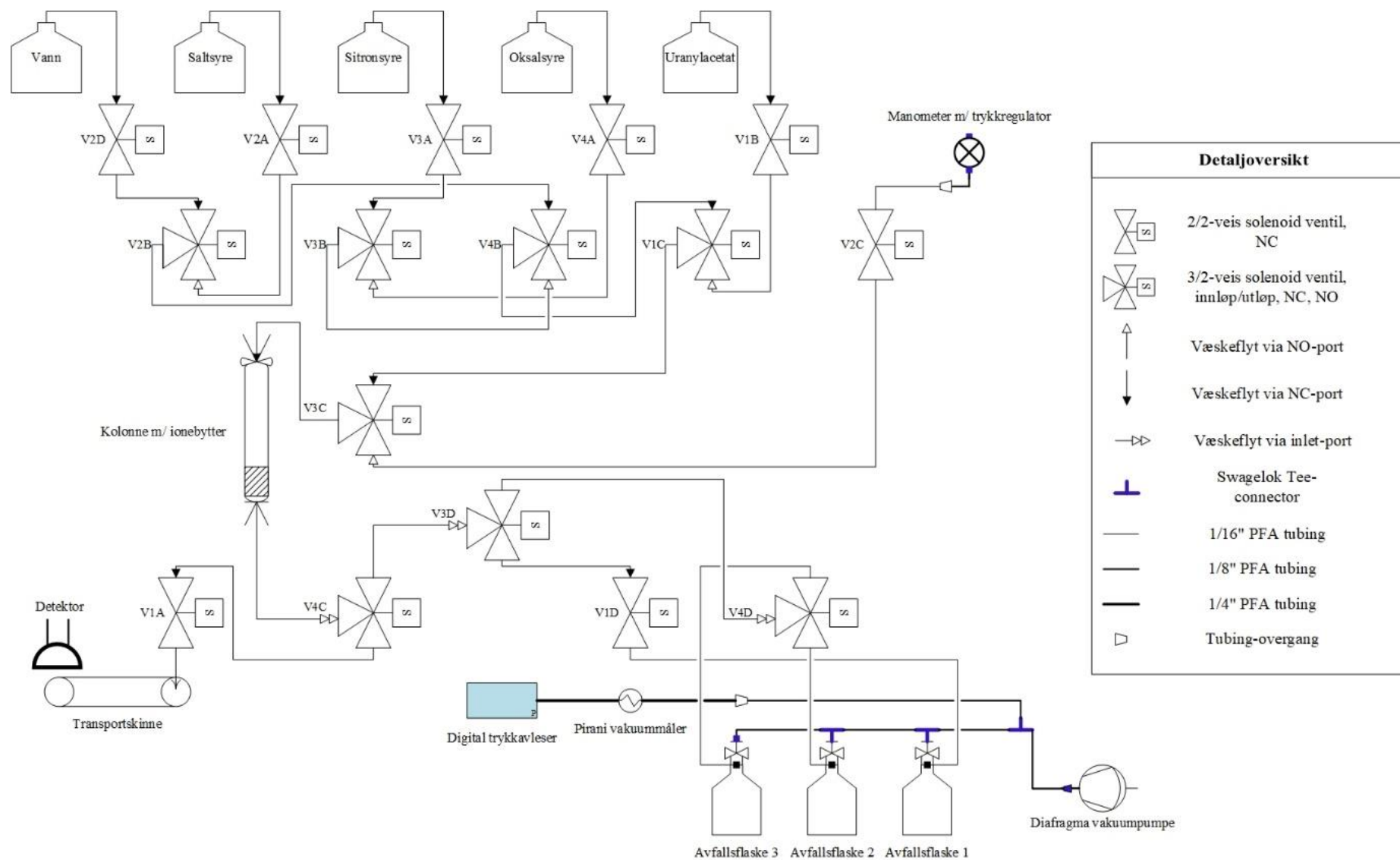
³¹ 500 mg UAc i 3 ml 1 M HCl.

saltsyre ble tilsatt slik at finstøvet skulle legge seg i bunn av beholderen. Dermed kunne plastbeholderen tas ut av hanskeboksen og inn i et avtrekksskap. Her ble saltet fullstendig løst opp i saltsyreløsningen.

6.1.7 HMS-vurdering

Risikomomentene forbundet med kjemikaliene brukt i nuklidegeneratorforsøket er listet i Tabell A1-1 i Appendiks A1.

Før oppbyggingen av det endelige oppsettet ble satt i gang, ble det foretatt nøye vurderinger av sikkerheten bak prototypen for den fjernstyrte radionuklidegeneratoren (Figur A1-1 i Appendiks A1). Prototypen ble kaldtestet og optimalisert. På denne måten kunne potensielle faremomenter lett identifiseres og utelukkes. Hvordan prototypetesting og optimalisering foregikk er nøye beskrevet i senere underkapitler. Tiltak mot uhell i oppsettet er listet opp i Tabell A1-2 i Appendiks A1.



Figur 6-2: Detaljert skisse av oppsettet (ikke skalert). Skissen illustrerer ikke tilkobling til maskinvare.

6.2 Manuell test og optimalisering av eksisterende laboratorieprosedyre

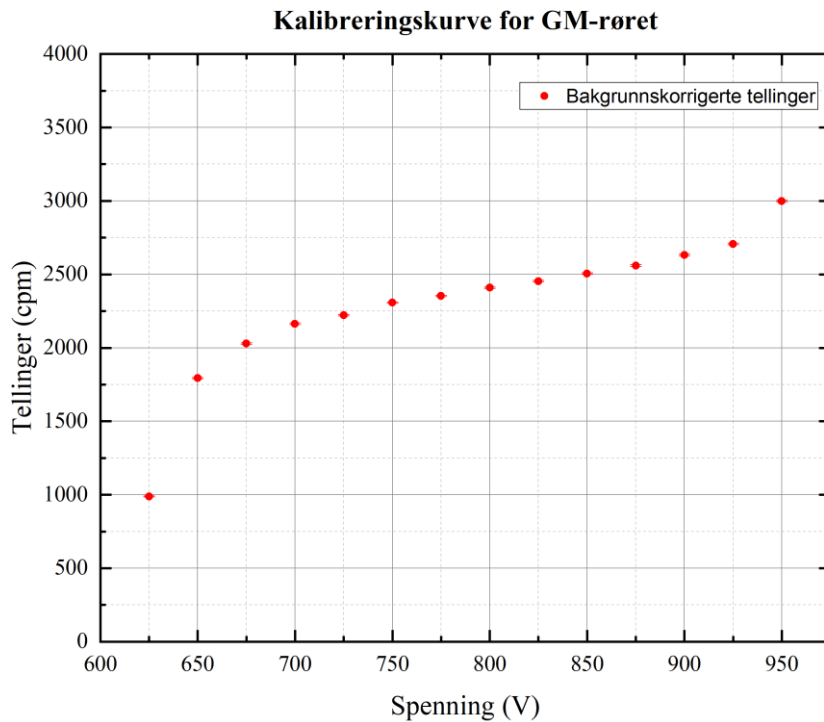
For å kunne optimalisere den eksisterende laboratorieprosedyren (tidligere beskrevet i kapittel 5.4) til å fungere også for den fjernstyrte øvelsen, og for å verifisere at prosedyren er korrekt, ble øvelsen utført manuelt en rekke ganger. I disse forsøkene ble eluatet som inneholdt ^{234m}Pa manuelt flyttet til detektordelen av RoboLab-oppsettet³², slik at disse målingene skulle være mest mulig sammenlignbare med målinger fra de fjernstyrte forsøkene (med hensyn til avstand til detektoren, geometrien, og bakgrunnsstrålingen).

Effekten av endringer i kondisjoneringsforhold, mengde tilsatt UAc-løsning og prøvemengde sendt til telling ble testet.

6.2.1 Kalibrering av detektoren

Før testing av prosedyren startet, ble det utført en kalibrering av GM-røret for å finne en optimal operasjonsinnstilling med hensyn til høyspenningen. En urankilde (100 mg UO_3) fra tidligere kurs ble brukt som kalibreringskilde, og ble plassert i oppsettet 2 cm fra detektorvinduet. Høyspenningen ble manuelt trappet opp med 25 V mellom hver målesekvens. Et program skrevet i LabVIEW ble brukt for å ta opp 20 5-minutters repetisjoner ved hver høyspenningsverdi. Rådataene ble behandlet og er presentert i Figur 6-3 som viser platåkurven for GM-røret. Siden antall tellinger per sekund er lavere enn 100 ble det ikke utført en dødtidskorrigering (Knoll 2000, 202), da denne ble ansett å være uten betydning for slike lave tellehastigheter. Dette gjelder også for alle senere anvendelser av geigerteller i denne oppgaven.

³² Detektordelen av det fjernstyrte oppsettet var allerede konstruert på tidspunktet da manuelle testene ble påbegynt.



Figur 6-3: Kalibreringskurve for Geiger–Müller-røret brukt i alle fremtidige forsøk. Registreringen av platåkurven startet ved startspenningen og ble avsluttet ved den påbegynte stigningen like etter platåets ende. Videre økning av høyspenningen er potensielt skadelig for detektorrøret.

Evaluering av platåområdet burde resultere i en stigning på <10% per 100 V stigning i henhold til følgende formel (Vose 1980):

$$\left[\frac{R_2 - R_1}{R_1} \right] \left[\frac{100}{V_2 - V_1} \right] \times 100\% \quad (13)$$

Der R_1 og R_2 er tellehastigheten ved terskelspenningen (V_1) og ved start av sammenbruddsspenningen (V_2), henholdsvis (se punktene *B* og *C* i Figur 3-5). En spenning i midten av dette platået skal velges til å operere detektoren for å forsikre at det flate nivået har blitt nådd (Knoll 2000, 209). Fra Figur 6-3 ble 700 V og 875 V valgt til å representere V_1 og V_2 , henholdsvis. Dette ga en platåstigning på 9,6% og en høyspenning på 775 V ble valgt for å operere detektoren.

6.2.2 Prosedyreoptimalisering

Før det ble foretatt noen parameterendringer ble forsøkene gjennomført (manuelt) ved å følge den originale prosedyren. I forsøksbeskrivelsen til den opprinnelige øvelsen (kapittel 5.4) som ble utført av studenter under radiokjemikurs ved Kjemisk institutt tilsettes det 1 ml av UAc-løsningen til kolonnen.

For å oppnå cirka samme telleeffektivitet, og samtidig følge unntaksgrensene, ble et UAc-volum på 1 ml x fortynningsfaktor brukt; 35 ml UAc tilsettes til kolonnen (se kapittel 6.1.6.3 på side 60).

Noen bemerkninger for de manuelle forsøkene:

- Ordet «måleserie» brukes til å beskrive en serie med målinger gjort på eluatet fra samme kolonne. En ny serie innen den samme metodeundersøkelsen tilsier at ny kolonne ble preparert på samme måte som i den forrige serien.
- Alle parallellene fra samme måleserie ble produsert og målt samme dag for å mest mulig etterligne situasjonen når en student utfører øvelsen i et laboratorium.
- Elueringsraten under kolonnepreparering og prøveeluering er omtrent 1 dråpe i sekundet.
- For hvert replikat ble totalt 20 dråper av eluatet målt, med mindre noe annet er oppgitt. Tidtakingen fra eluering til start av måling ble begynt etter at tiende dråpe ble eluert, og måling ble startet etter 33 sekunder (også i tilfeller der det ble eluert 10 og 30 dråper, henholdsvis).
- Får å oppnå bedre bakgrunnskorrigering i kurvetilpasningen ble alle parallellene målt i 30 minutter, med 60 sekunders intervall.
- Tellingene ble plottet mot 1/3 av telletiden (midtpunktet, 60/3 sekunder) + tid før tellestart (33 sekunder) (se eksempel fra regneark i Figur A4-1 i Appendiks A4.1). Ved midtpunktet vil det teoretisk være like mange tellinger før og etter dette punktet.
- Målekoppen ble nøye skylt med vann og tørket før neste prøveeluering.

Tabell 6-2 under oppsummerer metodene som ble testet.

Tabell 6-2: Oversikt over metodene som ble undersøkt under prosedyreoptimaliseringsfasen. Metode O står for opprinnelig prosedyre. Regenerering av kolonne preparert etter den opprinnelige prosedyren er oppgitt i parentes da det opprinnelig ikke er et steg i denne prosedyren, men det ble allikevel prøvd ut.

	Metode O	Metode A	Metode B	Metode C
Kondisjonering	2 ml HCl	10 ml HCl	10 ml HCl	20 ml HCl
Prøvepåsetting	1 (35) ml UAc ¹	35 ml UAc	70 ml UAc	70 ml UAc
Vasking	1+1 ml HCl	10 ml HCl	10 ml HCl	10 ml HCl
	1+1 ml sitronsyre	10 ml sitronsyre	10 ml sitronsyre	10 ml sitronsyre
Eluering	20 dråper sitronsyre	20 dråper sitronsyre	20 dråper sitronsyre	20 dråper sitronsyre
Regenerering	(0,5 M oksalsyre)	0,5 M oksalsyre	-	-

¹Siden uranylacetatløsningen måtte fortynnes for å kunne brukes i et Type C-laboratorium, ble 35 (fortynningsfaktor) x 1 ml UAc brukt i uttesting av den opprinnelige prosedyren.

6.2.2.1 Resultater fra Metode O

Den opprinnelige prosedyren – Metode O – ble testet aller først under de manuelle optimaliseringsforsøkene. Totalt fire kolonner ble preparert i henhold til metoden. Det ble foretatt ekstra målinger på kolonnen fra serie 1, der 10 og 30 dråper av eluatet ble målt fem ganger hver. Kolonnen fra serie 2 ble også melket fem ganger, fem dager etter at den ble preparert. De beregnede halveringstidene til ^{234m}Pa fra målinger av eluatet, samt tellehastighet ved tid $t = 0$ (R_0), er oppgitt i Tabell 6-3 under.

Tabell 6-3: Halveringstider (s) for ^{234m}Pa beregnet fra data som ble samlet gjennom manuelle forsøksreier der kolonne ble preparert etter opprinnelig prosedyre (Metode O). Beregnet tellehastighet ved tid $t = 0$ (R_0) (cpm) er oppgitt under halveringstiden.

	Replikat					\bar{x}
	1	2	3	4	5	
Serie 1	$70,2 \pm 1,3$	$70,7 \pm 0,9$	$68,8 \pm 1,1$	$71,5 \pm 1,2$	$67,6 \pm 1,1$	$69,8 \pm 1,2$
	4198 ± 114	4072 ± 77	4422 ± 101	4144 ± 98	4434 ± 103	4254 ± 99
Serie 2	$68,5 \pm 1,0$	$68,8 \pm 1,1$	$71,6 \pm 1,1$	$71,7 \pm 0,9$	$70,9 \pm 0,9$	$70,3 \pm 1,0$
	4312 ± 88	4550 ± 107	4197 ± 111	4223 ± 73	4452 ± 83	4347 ± 94
Serie 3	$69,3 \pm 1,3$	$69,5 \pm 1,1$	$70,5 \pm 1,2$	$71,4 \pm 1,2$	$70,8 \pm 2,2$	$70,3 \pm 1,5$
	4354 ± 120	4313 ± 106	4163 ± 102	4241 ± 102	4263 ± 195	4267 ± 130
Serie 4	$71,3 \pm 1,1$	$71,2 \pm 1,1$	$71,6 \pm 1,2$	$70,2 \pm 1,0$	$70,3 \pm 1,0$	$70,9 \pm 1,1$
	4047 ± 94	4107 ± 95	4144 ± 101	4248 ± 92	4268 ± 97	4163 ± 96
Serie 1¹	$69,2 \pm 1,1$	$71,5 \pm 1,2$	$70,1 \pm 0,8$	$69,3 \pm 1,1$	$70,4 \pm 1,1$	$70,1 \pm 1,1$
	3648 ± 83	3229 ± 78	3495 ± 58	3447 ± 81	3513 ± 76	3266 ± 76
Serie 1²	$68,9 \pm 1,2$	$68,7 \pm 1,2$	$71,9 \pm 1,0$	$70,3 \pm 1,0$	$71,9 \pm 1,5$	$70,3 \pm 1,2$
	4319 ± 105	4326 ± 105	4075 ± 84	4158 ± 83	4095 ± 120	4195 ± 100
Serie 2³	$70,3 \pm 1,5$	$70,7 \pm 1,1$	$69,4 \pm 1,1$	$68,3 \pm 1,0$	$68,7 \pm 1,1$	$69,5 \pm 1,2$
	3933 ± 123	4274 ± 95	4143 ± 88	4083 ± 89	4109 ± 95	4108 ± 99

¹10 dråper av eluatet fra serie 1 ble målt ble målt.

²30 dråper av eluatet fra serie 1 ble målt.

³Kolonnen fra serie 2 ble melket igjen etter 5 dager.

For hvert replikat, ble halveringstiden og R_0 bestemt ved å gjøre en kurvetilpasning i OriginLab (OriginLab Corporation u.d.) ved å kombinere ligning (4) og (5):

$$R_0 e^{-\left(\frac{\ln(2)}{T_{1/2}}\right)t} + bg \quad (14)$$

der R_0 , $T_{1/2}$ og bg (bakgrunnsstråling) er parametrene som blir tilpasset, og t er 1/3 av telletid + tid før tellestart. Usikkerheten til de enkelte parametrene fra kurvetilpasningen er beregnet gjennom Levenberg-Marquardt metoden for generell ikke-lineær kurvetilpasning (Press, et al. 1986, 523), og gjøres automatisk i programvaren.

I tabellen over (Tabell 6-3) er gjennomsnittlig verdi for halveringstid \bar{x} beregnet ved

$$\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_i \quad (15)$$

der N er antall paralleller. Usikkerheten er gitt som ett standardavvik (dekningsfaktor $k = 1$) og er for gjennomsnittlig halveringstidsverdi beregnet ved

$$s_{\bar{x}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N s^2}{N}} \quad (16)$$

Beskrivelse av ligning (16) finnes i Appendiks A4.1. Samme regnemetode ble brukt for å finne gjennomsnittlig R_0 og dens standardavvik. Ligning (15) og (16) vil på samme måte som beskrevet over bli brukt i fremtidige beregninger av middelverdier for halveringstid og R_0 , og deres standardavvik.

Vurderinger basert på resultatene og observasjonene fra Metode O

De 10 siste dråpene av eluatet ble samlet i et prøverør og tilsatt 2-3 dråper av kaliumferrocyanid. Denne testmetoden baserer seg på en visuell vurdering, og kan derfor være upålitelig dersom det kun er små mengder uranyl til stede i eluatet (Grindler 1962, 42). Kaliumferrocyanid er en gul farget løsning, og en svak fargeforandring mot en oransje nyanse vil ikke være godt synlig. Derfor ble det bestemt å øke mengden saltsyre som brukes i utvasking av uranyl i senere forsøk (Metode A, B og C), for å forsikre at alle uranylrestene ble tatt med.

Etter utvasking av kloridionene (fra forrige steg) med sitronsyre ble de 10 siste dråpene av eluatet samlet i et prøverør, på samme måte som over. Etter at kolonnene har blitt vasket med 2 ml sitronsyre, ga tilsetning av sølvnitrat utslag på kloridioner i eluatet i alle parallelle forsøk. Totalt 4 ml sitronsyre krevdes for å rense kolonnen fri for kloridioner. I senere forsøk (Metode A, B og C), økes derfor mengde sitronsyre som brukes i utvaskingssteget til 10 ml. Ved å øke mengden sitronsyre som blir brukt for å vaske ut kloridionene sørges det også for at sitronsyre bytter ut alt av startløsningen som utgjør det interstitielle volumet, og at den dermed penetrerer hele kolonnevolumet før videre prøveevaluering, slik det ble nevnt i kapittel 3.2.1.4 på side 36.

En økning av tilsetningsvolumene av saltsyre og sitronsyre slik det ble beskrevet over er også hensiktsmessig med tanke på at det fjernstyrte systemet ikke er laget for at brukeren skal kunne undersøke om det er noen rester av uranyl- eller kloridioner på kolonnen.

En annen viktig årsak til at tilsetningsvolumene ble økt er at undersøkelsene av gjennomstrømningshastighetene i det fjernstyrte oppsettet (utført parallelt med de manuelle forsøkene) viste at det var vanskelig å operere det fjernstyrte systemet med så lave volumer som 2 ml (se kapittel 6.3.3). Samtidig var det tydelig at gjennomstrømningshastigheten i det fjernstyrte oppsettet er betydelig

raskere, noe som også krever høyere tilsetningsvolumer (slik det ble beskrevet i kapittel 3.2.2). Kondisjoneringsvolumet ble også bestemt til å økes til 10 ml (Metode A og B) og 20 ml (Metode C).

Forsøk der kun 10 dråper av eluatet ble målt ved detektoren ga en reduksjon i tellehastigheten ved $t=0$ på omtrent 30% (se Tabell 6-3). Dette tilsier at ikke all aktivitet ble melket ut. Måling av 30 dråper ga derimot ingen merkbar forskjell i R_0 fra det som ble målt i 20 dråper (den ubetydelige forskjellen skyldes trolig usikkerheten i målingene)

6.2.2.2 Resultater fra Metode A, B og C

En sammenligning mellom resultatene fra Metode A (Tabell 6-4) og Metode B (Tabell 6-5) viser at doubling av mengde UAc påsatt kolonnen gir en R_0 -økning på omtrent 30%. Dette illustrerer at tilsetning av 35 ml ikke utnytter all kapasiteten til ionebytteren, Denne økningen er imidlertid ikke betydelig nok til å velges fremfor prosedyren som bruker halvparten så mye av en løsning som er tidskrevende å preparere.

Tabell 6-4: Halveringstider (s) for ^{234m}Pa beregnet fra data som ble samlet gjennom manuelle forsøksserier der kolonne ble preparert etter Metode A, der kondisjonerings- og utvaskingsvolumene fra Metode O ble økt til 10 ml. Beregnet tellehastighet ved tid = 0 (R_0) (cpm) er oppgitt under halveringstiden.

	Replikat					\bar{x}
	1	2	3	4	5	
Serie 1	68,2 ± 1,2	70,1 ± 1,1	69,8 ± 0,9	68,6 ± 1,1	69,7 ± 1,2	69,3 ± 1,1
	4022 ± 99	4100 ± 96	4013 ± 74	4019 ± 94	4258 ± 103	4082 ± 94
Serie 2	70,3 ± 1,4	67,6 ± 1,2	69,0 ± 1,0	70,4 ± 0,9	69,3 ± 1,1	69,3 ± 1,1
	4026 ± 114	4252 ± 114	4045 ± 90	4256 ± 75	4052 ± 97	4126 ± 99
Serie 3	69,6 ± 1,1	70,9 ± 1,1	68,2 ± 1,2	71,2 ± 1,3	68,9 ± 1,3	69,8 ± 1,2
	4247 ± 98	3959 ± 92	4159 ± 111	4130 ± 107	4031 ± 107	4105 ± 103
Serie 4	68,5 ± 1,3	69,1 ± 1,1	68,2 ± 1,2	69,9 ± 1,1	71,1 ± 1,3	69,4 ± 1,2
	4252 ± 107	3869 ± 80	4159 ± 111	3978 ± 79	3861 ± 88	4024 ± 94

Tabell 6-5: Halveringstider (s) for ^{234m}Pa beregnet fra data som ble samlet gjennom manuelle forsøksserier der kolonne ble preparert etter Metode B, der mengden UAc fra Metode A ble doblet til 70 ml. Beregnet tellehastighet ved tid = 0 (R_0) (cpm) er oppgitt under

	Replikat					\bar{x}
	1	2	3	4	5	
Serie 1	$70,7 \pm 0,7$	$72,0 \pm 0,7$	$72,2 \pm 1,0$	$70,4 \pm 0,8$	$72,0 \pm 1,3$	$71,5 \pm 0,9$
	5819 ± 84	5940 ± 94	5877 ± 124	6342 ± 110	6305 ± 158	6057 ± 117
Serie 2	$70,7 \pm 1,1$	$71,7 \pm 0,8$	$70,0 \pm 0,9$	$69,9 \pm 0,7$	$70,6 \pm 0,9$	$70,6 \pm 0,9$
	5961 ± 141	6029 ± 103	6258 ± 115	6258 ± 91	6379 ± 125	6177 ± 116
Serie 3	$70,3 \pm 0,9$	$70,8 \pm 1,0$	$70,3 \pm 1,1$	$70,2 \pm 0,8$	$70,1 \pm 1,1$	$70,3 \pm 1,0$
	6177 ± 110	6139 ± 123	6195 ± 138	6293 ± 100	6296 ± 149	6220 ± 125

En vurdering av gjennomsnittene tilsier at de resulterende halveringstidene i Metode B er noe høyere enn i Metode A, der halvparten av UAc-mengden ble brukt. Gjennom de neste parallelle forsøksseriene (Metode C), ble det testet om dobling av tilsatt mengde saltsyre i kondisjoneringssteget har en bedrende effekt på de forhøyede halveringstidverdiene. Resultatene er oppgitt i Tabell 6-6.

Tabell 6-6: Halveringstider (s) for ^{234m}Pa beregnet fra data som ble samlet gjennom manuelle forsøksserier der kolonne ble preparert etter Metode C, der kondisjoneringsvolumet fra Metode B ble doblet til 20 ml. Beregnet tellehastighet ved tid = 0 (R_0) (cpm) er oppgitt under den beregnede halveringstiden.

	Replikat					\bar{x}
	1	2	3	4	5	
Serie 1	$70,0 \pm 0,9$	$72,6 \pm 0,9$	$68,9 \pm 1,1$	$69,9 \pm 0,9$	$71,1 \pm 0,8$	$70,5 \pm 0,9$
	6297 ± 118	5770 ± 110	6463 ± 147	6242 ± 115	6305 ± 110	6215 ± 121
Serie 2	$70,3 \pm 0,8$	$70,1 \pm 0,7$	$70,7 \pm 1,1$	$71,8 \pm 1,0$	$70,6 \pm 0,7$	$70,7 \pm 0,9$
	6198 ± 101	6249 ± 89	6218 ± 141	6237 ± 123	6379 ± 118	6256 ± 116
Serie 3	$71,1 \pm 1,1$	$70,6 \pm 0,9$	$70,2 \pm 1,4$	$69,6 \pm 0,9$	$69,8 \pm 0,7$	$70,2 \pm 1,0$
	6212 ± 133	6163 ± 112	6355 ± 189	6165 ± 114	6324 ± 99	6243 ± 133
Serie 4	$70,8 \pm 0,9$	$71,1 \pm 0,7$	$70,3 \pm 0,8$	$71,4 \pm 0,7$	$70,2 \pm 0,9$	$70,8 \pm 0,8$
	6209 ± 115	6213 ± 96	6169 ± 101	6149 ± 92	6346 ± 124	6217 ± 106

De forhøyede halveringstidene i Metode B og C kan være forårsaket av at noe av thoriumet sitter løst på kolonnen, og dermed kommer ut med eluatet. Det er normalt at en mindre fraksjon av mornukliden

kommer ut med eluatet (hvor stor denne fraksjonen kan tillates å være kommer an på bruksformålet), men dette forårsaker høyere halveringstidsmålinger for eksperimentene som utføres her og er uønsket. Dersom dette blir et problem som også oppstår i det fjernstyrte oppsettet vil et alternativ være å installere et ionebytterfilter under kolonnen som kan fange opp mornukliden fra å bli eluert ut til prøvekoppen.

6.2.3 Regenerering

Regenereringssteget er opprinnelig ikke en del av den aktuelle laboratorieøvelsen. Som nevnt tidligere, kan det tetravalente thoriumionet skylles ut fra kolonnen med 0,5 M oksalsyre. Dette er også en vanlig thoriumelueringsmetode å finne i litteraturen (Ryabchikov og Golbraikh 1963, Dyrssen 1950, Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989).

Tre nye kolonner (Tabell 6-7) ble manuelt preparert, og forsøkt regenerert og brukt på nytt. UAc-løsningene som ble samlet fra tidligere forsøk, der thorium har grodd inn i minst $4T_{1/2}$ (omtrent 4 måneder) etter siste separasjon, ble brukt i preparering av kolonnene³³.

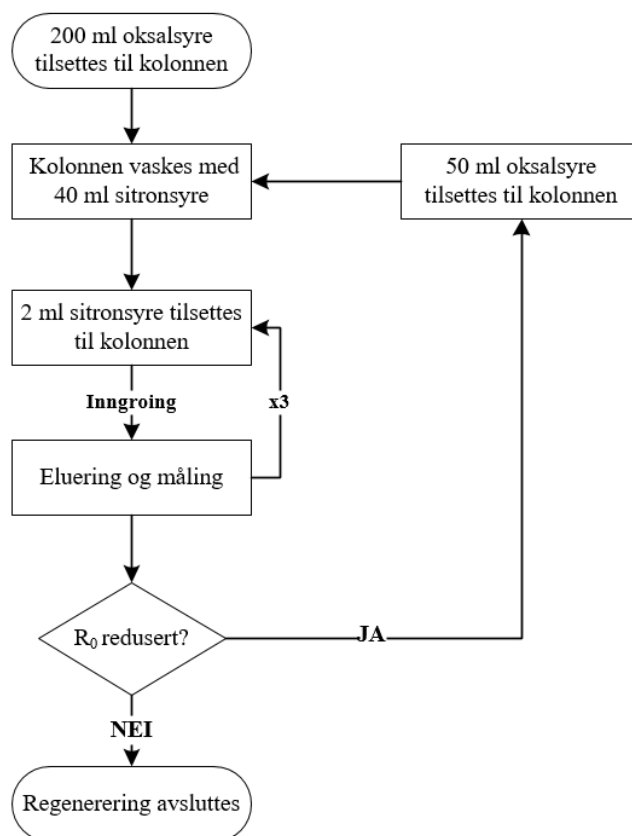
Tabell 6-7: Halveringstider (s) for ^{234m}Pa beregnet fra data som ble samlet gjennom manuelle forsøksreier der kolonner ble preparert etter Metode A til bruk i regenereringsforsøk. Beregnet tellehastighet ved tid = 0 (R_0) (cpm) er oppgitt under den beregnede halveringstiden.

	Replikat			\bar{x}
	1	2	3	
Kolonne 1¹	$71,0 \pm 1,0$	$71,5 \pm 1,0$	$70,9 \pm 0,9$	$71,1 \pm 1,0$
	4066 ± 81	4040 ± 83	4120 ± 73	4075 ± 79
Kolonne 2	$70,9 \pm 0,9$	$70,5 \pm 0,8$	$69,8 \pm 0,9$	$70,4 \pm 0,9$
	3247 ± 56	3275 ± 51	3295 ± 64	3272 ± 57
Kolonne 3	$69,8 \pm 1,2$	$70,5 \pm 1,3$	$69,7 \pm 1,3$	$70,0 \pm 1,3$
	3228 ± 83	3249 ± 89	3309 ± 91	3262 ± 87

¹Preparert med en eldre UAc-løsning og tellehastigheten er derfor noe høyere.

Regenerering (eluering av thorium) med oksalsyre ble fulgt og registrert som funksjon av protactiniums tellehastighet ved $t = 0$. For å finne en passende mengde oksalsyre som kan brukes i regenerering av ionebytteren ble den kolonnen først vasket med 200 ml oksalsyre, og deretter med 50 ml frem til en ytterligere reduksjon i tellehastigheten ikke var å observere. Mellom hver tilsetning av mer oksalsyre ble kolonnen vasket med 40 ml sitronsyre for å skylle ut gjenværende oksalsyre og videre melket og målt tre ganger, på samme måte som før. Denne prosedyren er oppsummert i Figur 6-4.

³³ Det var, av ulike årsaker, ikke mulig å preparere en ny UAc-løsning på tidspunktet da regenereringsforsøkene var planlagt å gjennomføres.



Figur 6-4: Stegene i regenereringsprosedyren som ble gjort for å fastsette en passende mengde oksalsyre som kan brukes i fremtidige regenereringer av ionebytteren.

Som nevnt tidligere, er den typiske elueringsraten i kolonnepreparering og prøveeluering 1 dråpe per sekund (60 dråper/min). Siden alle de brukte løsningene er vandige, antas det at det er rundt 20 dråper i 1 ml. Siden såpass store volumer kreves for regenerering, ble elueringsraten under vasking med oksalsyre økt til omtrent 120 dråper/min. Dermed ble tiden det tar å tilsette 200 ml oksalsyre halvert til omtrent 35 minutter.

Fra Tabell 6-8, der regenereringsforløpet (eluering av thorium fra ionebytteren) illustreres som funksjon av protactiniums tellehastighet, kan det sees at 400 ml oksalsyre var tilstrekkelig for å fjerne mesteparten av thorium fra kolonnen.

Tabell 6-8: Reduksjon (%) i beregnet R_0 (cpm) som følge av økning i mengde 0,5 M oksalsyre (ml) brukt til regenerering. Kolonne 1 ble forsøkt regenerert. Hver R_0 -verdi er en middelvei av tre målinger.

Oksalsyre (ml)	R_0 (cpm)	Reduksjon (%)
0 (opprinnelig)	4075 ± 79	-
200	567 ± 19	86
250	370 ± 20	91
300	311 ± 21	92
350	245 ± 24	94
400	223 ± 23	95

Reduksjon i protactiniums tellehastighet i kolonne 2 og 3 etter vask med 400 ml oksalsyre var henholdsvis 96% (140 ± 26) og 92% (274 ± 31).

Etter at regenerering var fullført, ble kolonnene fra Tabell 6-7 vasket med 150 ml vann, før de ble preparert på nytt ved å følge samme prosedyre som før (Metode A). De «nypreparerte» kolonnene ble melket for protactinium tre ganger hver, og gjennomsnittlig verdi av beregnet halveringstid og tellehastighet R_0 ble utregnet på samme måte som tidligere. Disse gjennomsnittlige verdiene er sammenlignet med de opprinnelige verdiene før regenerering (fra Tabell 6-7) i Tabell 6-9 under.

Tabell 6-9: Sammenligning av de målte halveringstidene (s) og R_0 (cpm) fra Tabell 6-7 (før regenerering) og etter at de regenererte kolonnene ble preparert på nytt med Metode A, manuelt. Hver oppgitt halveringstid og R_0 er en middelvei av tre målinger.

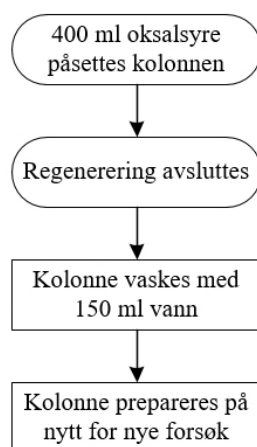
	Før regenerering		Etter ny påsetting	
	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)
Kolonne 1¹	71,1 ± 1,0	4075 ± 79	69,6 ± 1,3	4016 ± 87
Kolonne 2	70,4 ± 0,9	3272 ± 57	69,7 ± 1,4	3306 ± 95
Kolonne 3	70,0 ± 1,3	3262 ± 87	70,2 ± 1,1	3278 ± 76

¹Preparert med samme, eldre UAc-løsning som i forrige tabell, og tellehastigheten er derfor noe høyere.

Fra tellehastighetene i tabellen over kan det ses at ionebytterkapasiteten i alle kolonnene ble gjenopprettet til ~100%.

Når thorium fjernes ved regenerering skiftes det ut med motjonen H^+ som da settes tilbake på den funksjonelle gruppen. Fra ligning (12) i kapittel 5.1 kan det sees at sitronsyre, som brukes for å vaske ut oksalsyre når desintegrasjonen til ^{234m}Pa etter regenerering (men før en ny preparering/uranyl påsetting) skal måles, frigir protoner når det danner et nøytralt kompleks med protactinium. Derfor, for å utelukke at sitronsyre gir et betydelig bidrag til gjenopprettelsen av

resinkapasiteten som ble sett i tabellen over, ble det preparert tre ytterligere kolonner som skulle regenereres direkte med 400 ml oksalsyre og skylt med kun vann (se Figur 6-5).



Figur 6-5: Regenereringsprosedyren brukt for å utelukke at sitronsyre har en betydelig effekt på gjenopprettelsen av resinkapasiteten.

Disse kolonnene ble melket for protactinium tre ganger før regenerering og tre ganger etter regenerering. Resultatene er presentert i Tabell 6-10.

Tabell 6-10: Sammenligning av de målte halveringstidene (s) og R_0 (cpm) fra før regenerering og etter at disse kolonnene ble regenerert (direkte med 400 ml oksalsyre) og preparert på nytt med Metode A, manuelt. Hver oppgitt halveringstid og R_0 er en middelværdi av tre målinger.

	Før regenerering		Etter ny påsetting	
	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)
Kolonne 1	$70,1 \pm 1,0$	3232 ± 69	$69,8 \pm 1,1$	3368 ± 77
Kolonne 2	$70,0 \pm 0,7$	3301 ± 87	$69,9 \pm 1,0$	3293 ± 84
Kolonne 3	$69,9 \pm 1,2$	3289 ± 81	$70,0 \pm 1,1$	3264 ± 69

De beregnede halveringstidene og R_0 -verdiene i Tabell 6-9 og Tabell 6-10 er ikke signifikant forskjellige. Disse resultatene viser at kolonnen kan brukes igjen etter eventuell regenerering, og at man kan forvente å få omtrent samme resultater som før regenerering. Det er heller ikke nødvendig å inkludere sitronsyre i den endelige regenereringsprosedyren, med mindre det er ønskelig å følge med på reduksjonen av mengde thorium på ionebytteren som funksjon av mengde oksalsyre tilsatt (slik det ble gjort her).

6.2.4 Optimal prosedyre for kolonnepreparering

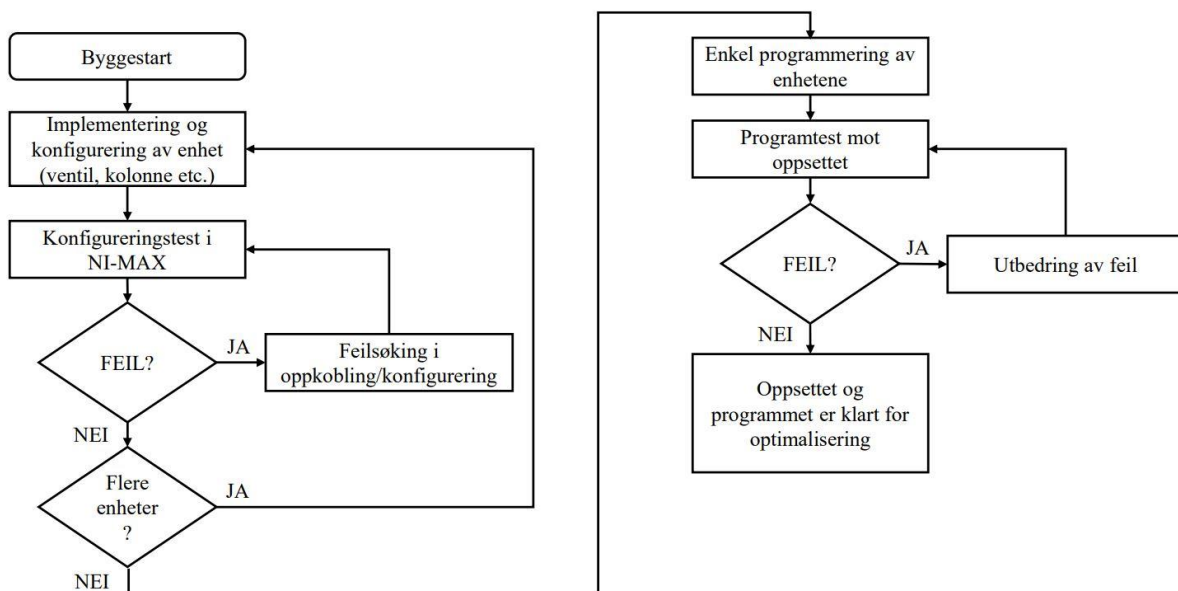
Basert på resultatene fra de manuelle forsøkene, ble Metode A valgt som den optimale prosedyren og skal brukes videre i testing av det fjernstyrte oppsettet. Prosedyren er som følger:

1. Kolonnen kondisjoneres med 10 ml 1 M HCl.
2. 35 ml UAc-løsning tilsettes til kolonnen.
3. Kolonnen vaskes først med 10 ml 1 M HCl, og deretter med 10 ml 10% sitronsyre.
4. Kolonnen fylles med 10% sitronsyre for inngroing.
5. 20 dråper elueres ut for måling.
6. Kolonnen regenereres med 400 ml 0,5 M oksalsyre dersom det skulle være behov for å bruke kolonnen på nytt. Før det begynnes på steg 1, vaskes kolonnen med 150 ml vann for å skylle ut resterende oksalsyre.

6.3 Optimalisering av det fjernstyrte oppsettet

6.3.1 Strategi

Det har blitt lagt stor vekt på å unngå logiske feil så tidlig som mulig i arbeidet. Slike feil kunne oppstå både i kildekoden, i konfigureringen av enhetene, og ikke minst i sammenkoblingen av det fysiske utstyret. For å gjøre senere feilutbedring enklest mulig ble det laget en teststrategi for å utelukke feil som kan oppstå i startfasen av oppbygging og programmering av oppsettet (Figur 6-6).



Figur 6-6: Teststrategi for startfasen av montering og programmering av nuklidegeneratoroppsettet.

6.3.2 Undersøkelse av flytmønsteret i den øvre delen av systemet

Siden det opereres med fem forskjellige løsninger, har det vært viktig å separere disse på best mulig måte i den øvre delen av systemet. De innledende undersøkelsene gikk hovedsakelig ut på uttenking og skissering av prototypen, med etterfølgende montering/demontering og utprøving, slik som beskrevet i 6.3.1. Det er for eksempel ikke ønskelig at sitronsyre tar med seg spormengder av UAc på veien til kolonnen. Ventilkonfigurasjonene for tilsetning av de fem løsningene (det skilles også mellom ikke-aktiv og aktiv saltsyre) ble etablert i innledende undersøkelser og er listet opp i Tabell 6-11. Ventiloppkoblingen kan ses i den detaljerte oppsettskissen i Figur 6-2. En generell forklaring på hvordan NC- og NO-type ventiler opereres finnes i Appendiks A2.3.

Tabell 6-11: Ventilkonfigurasjon for tilsetting av de ulike løsningene brukt i øvelsen. Ventilen må settes i HØY eller LAV tilstand dersom væsken skal flyte gjennom en NC-utgang eller NO-utgang, henholdsvis.

Løsning	Vann	Saltsyre	Saltsyre (aktiv)	UAc	Sitronsyre	Oksalsyre
Ventiler	2D – NC	2A – NC	2A – NC	1B – NC	3A – NC	4A – NC
	2B – NC	2B – NO	2B – NO	1C – NO	3B – NC	3B – NO
	4B – NC	4B – NC	4B – NC	3C – NC	4B – NO	4B – NO
	1C – NC	1C – NC	1C – NC		1C – NC	1C – NC
	3C – NC	3C – NC	3C – NC		3C – NC	3C – NC
	Kolonne	Kolonne	Kolonne	Kolonne	Kolonne	Kolonne
	4C – NO	4C – NO	4C – NO	4C – NO	4C – NO	4C – NO
	3D – NO	3D – NO	3D – NO	3D – NC	3D – NO	3D – NO
	1D – NC	1D – NC	4D – NO	4D – NC	4D – NO	4D – NO
	↓	↓	↓	↓	↓	↓
	Flaske 1	Flaske 1	Flaske 2	Flaske 3	Flaske 2	Flaske 2

Når kolonneinnholdet skal sendes til målekoppen, slippes trykkluft gjennom følgende ventilkonfigurasjon: 2C (NC) – 3C (NO) – Kolonne – 4C (NC) – 1A (NC). Trykkluften ble justert til lavest mulige verdi (1 bar) for å unngå at væsken sprutet ut under prøveledning.

Etter at ventilkonfigurasjonen har blitt etablert, ble prototypen flyttet til i avtrekkskapet og bygget inn etter skissen for det endelige oppsettet.

6.3.3 Undersøkelse av gjennomstrømningshastighet

6.3.3.1 Endringer i oppsettet før undersøkelse

Det ble utført en rekke innledende forsøk med prototypen der det ble observert brusing i kolonnen etter at tilsetningen ble avsluttet. Slike forstyrrelser på kolonnepakningen kan blant annet føre til kanalisering i resinmaterialet og bør derfor unngås. Årsaken til brusingen ble funnet å være forskjellig tykkelse på kolonnetuppene (fra produsent) som gjorde at luft kunne trenge inn i systemet og skape brå endringer i vakuumptrykket. Dette ble rettet opp ved å legge teflonteip rundt kolonnetuppen før den ble satt på plass i systemet slik at overgangen ble mer lufttett.

6.3.3.2 Operative innstillinger

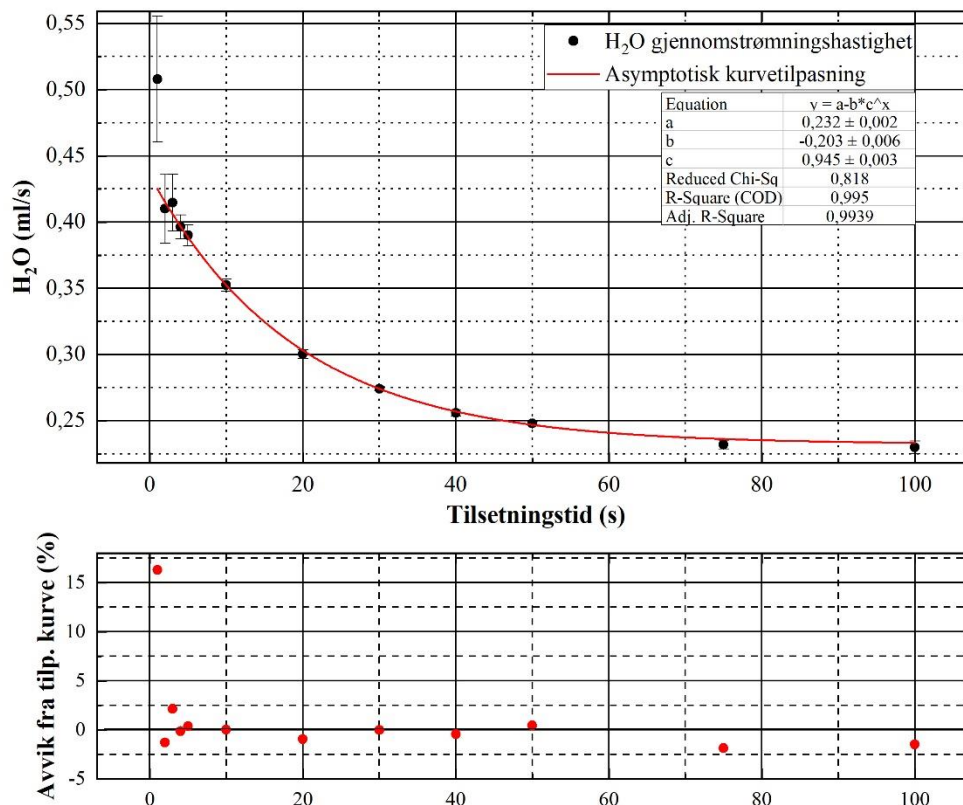
Rekkefølgen på åpning og stenging av ventilene, samt tiden det tar mellom åpning/stenging av en ventil og åpning/stenging av neste ventil, ble fastsatt i programkoden ved bruk av subrutinene beskrevet senere i kapittel 6.4.

6.3.3.3 Analyse og sammenligning av de ulike gjennomstrømningshastighetene

Alle løsningene som blir brukt i nuklidegeneratorforsøket er fortynnet og har en massetetthet som er relativt lik tettheten til vann (≈ 1 g/ml). Massetettheten til de aktuelle løsningene ble målt ti ganger per løsning og rådata er gitt i Appendiks A7.

Vann ble derfor, for enkelhetens skyld, valgt for å undersøke gjennomstrømningshastigheten (ml/s) ved ulike tilsetningstider gjennom flytmønstrene for de fem løsningene. Det ble utført fem paralleller per tilsetningstid (12 punkter), for hvert flytmønster. Kolonnen ble skiftet ut før registrering av en ny trendkurve (for neste flytmønster). Etter at hver tilsetning var slutt (ventilene ble satt til opprinnelig status), ble innholdet i kolonnen tømt til en passende avfallsflaske (se kapittel 6.3.4). Flaskene holdes stabilt på plass av en spesiallaget flaskeholder (Figur A2-1 i Appendiks A2) som er plassert på en digital vekt. Vekten brukes for å lese av den totale mengden væske som har blitt tilsatt til systemet i løpet av tilsetningstiden. Tømmingstiden, som på lik linje med tilsetningstiden kan endres på frontpanelet, ble holdt konstant gjennom hele undersøkelsen.

Undersøkelsene viste at gjennomstrømningshastighetene til flytmønstrene for alle løsningene synker med økende tilsetningstid. Dette er illustrert for flytmønstret for vann i Figur 6-7.

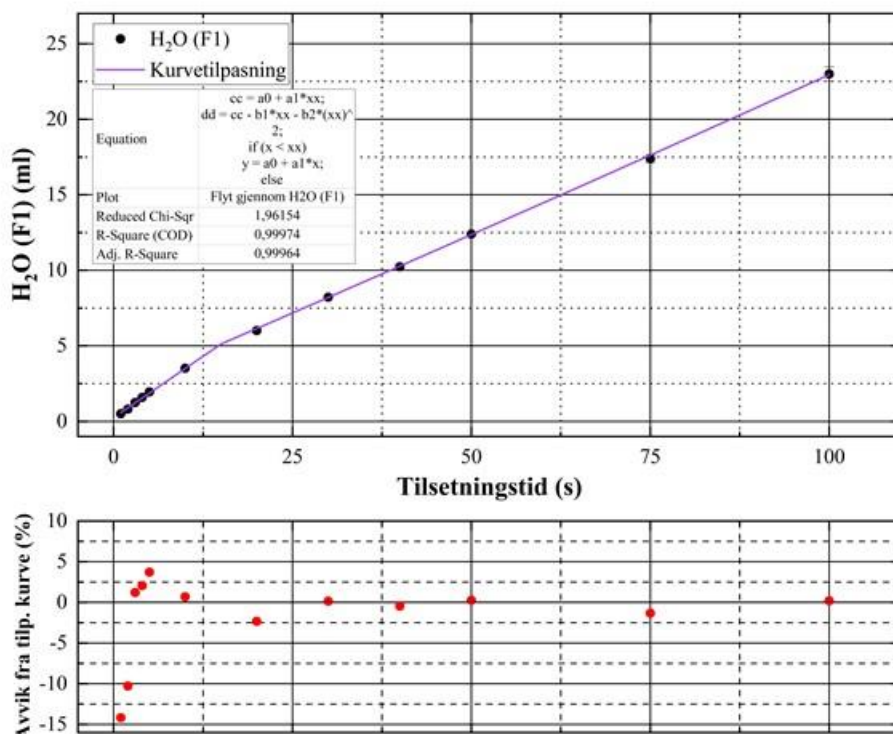


Figur 6-7: Gjennomstrømningshastigheten av vann gjennom flytmønsteret for vann som funksjon av tilsetningstid. Hvert punkt er en gjennomsnittlig verdi av fem parallelle målinger.

Det ble med en gang tydelig at gjennomstrømningshastigheten er høyere enn i de manuelle forsøkene. Den laveste gjennomstrømningshastigheten i Figur 6-7 er 0,22 ml/sek, og tilsvarer en økning på fem ganger fra den manuelle tilsetningstiden. Det ble ikke observert noen visuelt synlige endringer i kolonnepakningen under undersøkelsene av gjennomstrømningshastighetene (der en kolonne ble fylt og tømt totalt 5 x 12 ganger). Det var likevel viktig å følge med på mulige kanaliseringer i kolonnepakningen, samt vurdere om resultatene ble påvirket etter gjentagende melking av kolonnen, i senere funksjonstest av det fjernstyrte oppsettet (kapittel 6.5).

Fra residualplottet i Figur 6-7 (gitt som prosent avvik) kan det sees at måleserien gjort ved en tilsetningstid på ett sekund er en ekstremverdi. En forklaring kan være at en så kort tilsetningstid vil føre til brå trykkendringer i systemet, og det tilsatte volumet blir derfor ustabil. Dette kan også sees fra standardavvikene til de målte datapunktene i det nedre området av x-aksen.

Fra kalibreringskurvene (der tilsatt mengde væske i ml er plottet mot tilsetningstid i sekunder) i Figur 6-8 og i Appendiks A6 er det tydelig at de tilsatte mengdene er forskjellige, men også at de er konsistente. Som forventet skyldes forskjellene i gjennomstrømningshastigheten for de fem løsningene ulik lengde på PFA-slangene og ulik ventilkonfigurasjon.



Figur 6-8 Kalibreringskurve for mengde væske tilsatt (ml) til systemet i løpet av en tilsetningstid (s) hvis væsken skal trekkes gjennom flytmønsteret for H₂O til Flaske 1.

Kalibreringskurvene viser en lineær trend ved lange tilsetningstider og en ikke-lineær trend ved korte tilsetningstider. Derfor ble kalibreringskurvene parametrisert ved hjelp av en funksjon sammensatt av en første- og en andregradslikning. Slik sørges det for at man kan bruke disse kurvene for å estimere en tilsetningstid for å få et ønsket volum av den aktuelle væsken. Denne informasjonen implementeres inn i programkoden slik at RoboLab-brukeren kun trenger å forholde seg til mengder væske og ikke tilsetningstid. Vektavlesning vil fortsatt være tilgjengelig gjennom videooverføring.

6.3.4 Installering av ytterligere avfallsbeholdere

For å skille på aktivt (langlivet og kortlivet) og ikke-aktivt avfall har tre avfallsbeholdere blitt installert (se Figur 6-2). Disse er koblet til vakuumpumpen via 1/8" og T-koblinger slik at det kreves kun en pumpe for å lage vakuum i alle flaskene. Flaskene med kortlivet (Flaske 2) og langlivet (Flaske 3) avfall er koblet på til samme sluttventil, men separeres ved at disse løsningene har utgang via NO-port og NC-port, henholdsvis. UAc som samles i Flaske 3 kan gjenbrukes etter $\sim 10T_{1/2}$ av ^{234}Th .

Ikke-aktivt avfall flyter gjennom en egen sluttventil til Flaske 1. Flaskeholderen (nevnt i kapittel 6.3.3.3 og illustrert i Figur A2-2) forhindrer flaskene fra å velte på grunn av spenst i slangen og vektavlesningen blir mer sikker da vibrasjonsforstyrrelsene fra pumpen dempes av o-ringene montert i flaskeholderen.

6.3.5 Detektorskjerming

På grunn av sin høye tetthet og atomnummer ble bly valgt som skjerming rundt detektoren. Detektorrøret ble plassert i et sylindrerformet blytårn inne i avtrekksskapet. Videre ble en passasje for transportskinnen laget ved å plassere blyklosser under blytårnet. Undersiden av transportskinnen ble også skjermet ved detektorposisjonen. Alle glipper som kunne slippe inn bakgrunnsstråling (unntatt transportskinnepassasjen og et lite rom for å overvåke prøvekoppen) ble stengt igjen med bly.

Figur 6-9 viser det ferdigstilte og optimaliserte ^{234m}Pa -nuklidegeneratoroppsettet.



Figur 6-9: Det ferdigstilte oppsettet for generering av ^{234m}Pa via fjernstyring. Styringssystemet er ikke med i bildet.

6.4 Utvikling av serverprogrammet basert på RoboLab-mal

Funksjonaliteten til driverprogrammet går generelt ut på å operere I/O-grensesnittet i henhold til instruksjoner mottatt fra klient eller operatør av driverprogrammet, og oppdatere frontpanelet hos driver og klient.

Rammeverket til programkoden består av en flat sekvensstruktur som er delt opp i tre subdiagrammer (rammer). I en slik struktur vil subdiagrammene eksekveres sekvensielt fra venstre til høyre for å sørge for korrekt rekkefølge på dataflyten.

6.4.1 Initialisering

Det første subdiagrammet i sekvensstrukturen inneholder en initialiseringskode for de ulike parametrene brukt i programmet, og utføres når programmet blir startet opp av operatøren (brukeren). Koden i neste subdiagram vil altså ikke eksekveres før alle variablene er initialisert. Blant annet blir følgende utført i dette subdiagrammet:

- Alle boolske knapper settes FALSE. Slik sørges det for at ingen knapper er trykket hvis programmet skulle ha problemer ved oppstart.
- En HTTP-tilkobling til SystemLink-tjenesten konfigureres for å initialisere kommunikasjon med SystemLink Cloud ved bruk av en API-nøkkel som blir hentet fra skytjenesten på forhånd.
- Et abonnement på SystemLink-meldinger fra klienten settes opp.
- Referanser til serverens SystemLink-tagger blir opprettet.
- Hendelseshistorikken fra forrige sesjon nullstilles.
- Dataclusteret (Figur A10-1 i Appendiks A10) som inneholder boolske indikatorlys, telletall, m.m. nullstilles fra forrige sesjon.
- DAQmx-oppgaver overføres til kjøretilstand for å kunne starte datainnsamling.

6.4.2 Hovedprogrammet

Hovedprogrammet er basert på RoboLab-malen som ble beskrevet i kapittel 4, og er plassert i det andre subdiagrammet. Parallellbehandlingsprinsippet og kommunikasjonen mellom de ulike modulene er uendret fra det som ble nevnt tidligere (kapittel 4.2) og vil derfor ikke bli nevnt under dette delkapittelet.

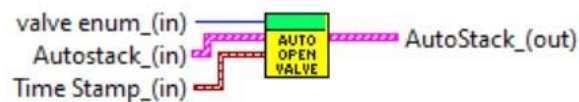
6.4.2.1 Utvalgte subrutiner

Under beskrives utvalgte subrutiner fra serverprogrammet til nuklidegeneratorøvelsen for å illustrere hvordan programmet mottar og håndterer konkrete brukerhendelser, og hvordan disse utføres.

Auto_Open_Valve_SubVI.vi og Auto_Close_Valve_SubVI.vi

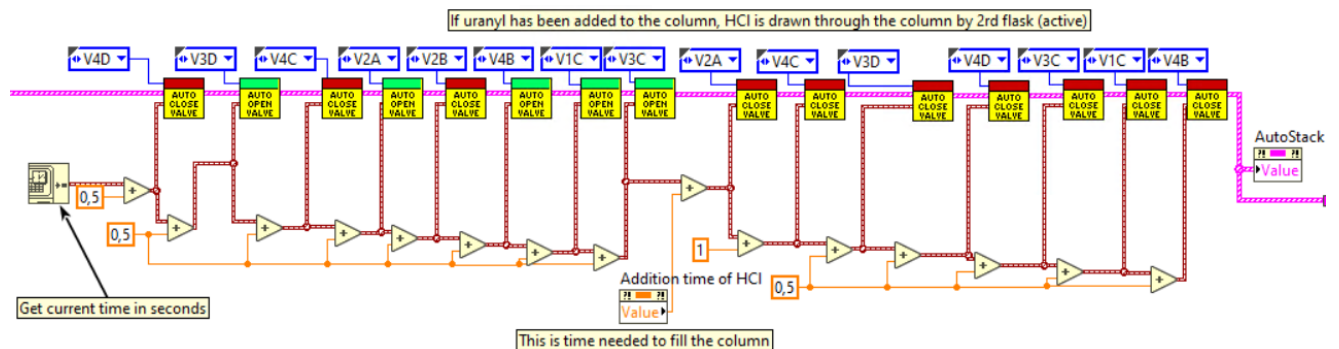
Når en av de hendelseshåndterende modulene mottar en melding om å utføre en prosedyre som involverer at ventiler skal åpnes og/eller stenges, for eksempel når brukeren trykker på en knapp for å tilsette en løsning til systemet (se Figur A10-2 i Appendiks A10), vil disse subrutinene hente informasjon

om de aktuelle ventilene fra en nummerert liste (definert som «enum»-parameter i LabVIEW) som inneholder strengetiketter med tilhørende heltallsverdier (se Tabell A3-1 i Appendiks A3). Informasjonen som tas inn av Auto_Open_Valve_SubVI.vi er vist i Figur 6-10. Samme koblinger gjelder for subrutinen Auto_Close_Valve_SubVI.vi, men kildekoden er noe annerledes. Når en ventil skal stenges vil subrutinen for dette gjøre heltallsverdien negativ før denne heltallsverdien, samt et tidsstempel og en kommando «Switch Valve», sendes til videre behandling av Insert_AutoCommandArray_SubVI.vi (beskrevet senere) som ligger pakket internt i de to overnevnte subrutinene.



Figur 6-10: Auto_Open_Valve_SubVI.vi. Koblingene som subrutinen tar inn er informasjon om ventiler (gjennom enum-liste), hendelsekø-clusteret AutoStack, og et tidsstempel med systemklokke. Når hendelsen er generert, vil den sendes ut med den oppdaterte AutoStack.

Et bestemt flytmønster kan konfigureres når disse subrutinene gjennom *wiring* kobles i serie, slik det er vist i Figur 6-11 for tilsetting av saltsyre.



Figur 6-11: Seriekobling av Auto_Open_Valve_SubVI.vi og Auto_Close_Valve_SubVI.vi for å tilsette saltsyre til kolonnen. I dette eksempelet blir løsningen trukket gjennom flytmønsteret for håndtering av kortlivet aktivt avfall til Flaske 2. Subrutinene tar utgangspunktet i verdiene fra systemklokken som hentes i begynnelsen av seriekoblingen og ventilene blir stort sett åpnet og stengt med 0,5 sekunders intervall. Hvor lenge løsninger blir trukket gjennom systemet, etter at alle nødvendige ventiler er åpnet, bestemmes av tilsetningstiden som brukeren/operatøren velger på frontpanelet.

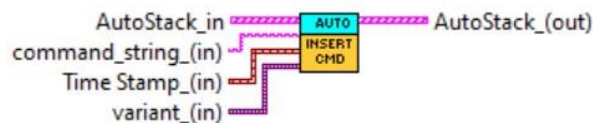
En viktig funksjonalitet i programmet oppnås med denne indirekte måten å styre ventilene på. En serie med åpne/stenge-kommandoer sendes til automatiseringsmodulen, som så vil gi beskjed til hovedmodulen om å utføre disse kommandoene på de valgte tidspunktene. På denne måten unngås det at båndbredde- og andre kommunikasjonsproblemer mellom server- og klientmaskinene medfører at ventilene holdes åpne eller stengt lenger enn det som er tiltenkt, noe som vil kunne gi stor usikkerhet i

volumene som pumpes gjennom systemet. Etter at den automatiserte sekvensen er lastet opp vil den utføres helt uavhengig av kommunikasjonshastighet mellom maskinene. Den parallelle strukturen til serverprogrammet vil videre også sørge for at eventuelle forsinkelser i for eksempel oppdatering av verdier til klientmaskinen ikke påvirker utførelser av sekvensen.

Insert_AutoCommandArray_SubVI.vi

Denne subrutinen brukes når det skal genereres en automatisk, tidsstyrt hendelsessekvens. For eksempel kan man igjen se på åpning og stenging av ventiler (se Figur 6-11). Informasjonen om den aktuelle ventilen (strengetikket og heltallsverdi) som ble etablert i de overnevnte subrutinene blir sendt til *Insert_AutoCommandArray_SubVI.vi* (Figur 6-12) i form av en variantdatatype. En variantdatatype er en generisk beholder for alle typer data i LabVIEW. Når data blir konvertert til en variant, lagres både data og datatypen internt i varianten, slik at LabVIEW på et senere tidspunkt kan konvertere den til originalen på en korrekt måte.

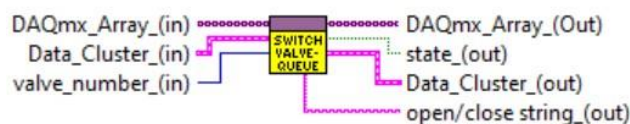
Varianten blir så, sammen med tidsstempelen og «Switch Valve»-kommandoen (i dette konkrete eksempelet), pakket inn i et cluster og satt inn i en «hendelseskø» – *AutoStack* (tidligere nevnt i kapittel 4.2). Den aktuelle ventilen vil åpnes/stenges av *SwitchValve_SubVI.vi* når tidsstempelen samsvarer med systemklokken.



Figur 6-12: *Insert_AutoCommandArray_SubVI.vi*. Denne subrutinen ligger pakket i subrutiner som genererer hendelser, for eksempel i *Auto_Open_Valve_SubVI.vi*.

SwitchValve_SubVI.vi

Når systemklokken tilsvarer tidsstempelen i hendelseskøen for åpning/stenging av ventiler, vil *SwitchValve_SubVI.vi* eksekveres (Figur 6-13). Denne subrutinen henter DAQmx-oppgaven for ventilstyring, dataclusteret som skal oppdateres med riktig ventilstatus, og nummeret til ventilen som skal åpnes/stenges. Når endringen er utført sender subrutinen ut et oppdatert datacluster der ventilstatusen vises i form av virtuelle LED-lys som brukeren kan følge med på frontpanelet. Hendeshistorikken (logg) vil også bli fylt ut med informasjon om hvilken ventil som ble åpnet/stengt, og når dette ble gjort (se Figur A10-3 i Appendiks A10).



Figur 6-13: Subrutinen SwitchValve_SubVI.vi eksekverer ventilhendelser som ble tidligere satt i hendelseskø. Variantdata som ble tatt inn i Insert_AutoCommandArray_SubVI.vi blir pakket ut og oversatt tilbake til 16-bit heltall før det føres inn i denne subrutinen.

6.5 Funksjonstest av det fjernstyrte systemet

Metode A ble – etter en rekke optimaliseringsforsøk – i kapittel 6.2.4 foreslått som den optimale prosedyren for kolonnepreparering. Denne prosedyren ble anvendt i funksjonstesten av det ferdigstilte, fjernstyrte nuklidegeneratorsystemet.

Kalibreringskurvene for tilsetningsvolumene fra Figur 6-8 og Appendiks A6 ble brukt for å finne passende tilsetningstid for hver løsning, slik at de tilsatte volumene ble korrekte. Totalt ble oppsettet brukt til å preparere seks kolonner (serier) som ble melket fem ganger hver, med unntak av siste kolonne som ble melket tre ganger. Telling av prøvene ble satt i gang etter 33 sekunder, slik som før, men nedtellingen ble her manuelt startet etter at knappen «Empty to Detector» på frontpanelet ble trykket³⁴. Tabell 6-12 oppsummerer halveringstidene som ble oppnådd ved bruk av det fjernstyrte RoboLab-systemet.

³⁴ Manuell start av nedtelling er en kilde til systematiske feil. Denne funksjonaliteten vil bli implementert inn i programmet i neste versjon.

Tabell 6-12: (RoboLab) Oversikt over halveringstider (oppgitt i sekunder) til ^{234m}Pa funnet i parallelle RoboLab-forsøk gjennomført ved å følge den optimale metoden *Metode A* som ble etablert gjennom manuelle laboratorieforsøk. En ny kolonne ble preparert for hver serie og kolonnen ble melket fem ganger i Serie 1-5 og tre ganger i Serie 6. En gjennomsnittlig halveringstidverdi \bar{x} og tilhørende usikkerhet ble beregnet. Usikkerhet er gitt som ett standardavvik (dekningsfaktor $k = 1$). Beregnet tellehastighet ved tid = 0 (R_0) er oppgitt under den beregnede halveringstiden.

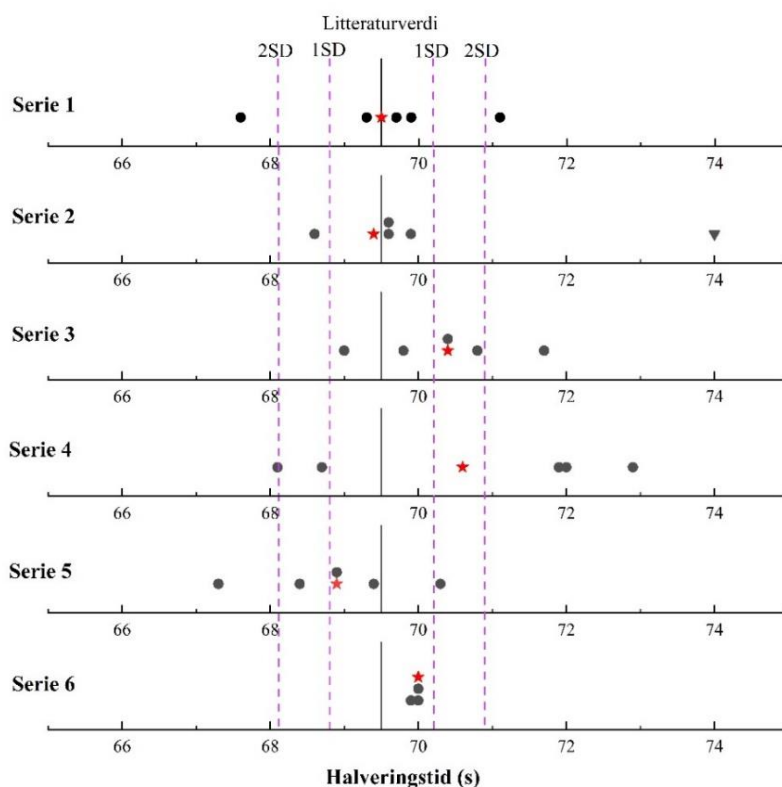
	Replikat					\bar{x}
	1	2	3	4	5	
Serie 1	69,3 ± 1,4 2037 ± 59	67,6 ± 1,8 2016 ± 77	69,7 ± 1,8 2071 ± 74	71,1 ± 1,6 1918 ± 59	69,9 ± 1,6 2039 ± 65	69,5 ± 1,6 2016 ± 67
Serie 2	74,0 ± 1,7 ¹ 1645 ± 51	69,9 ± 1,3 1952 ± 51	69,6 ± 1,5 1982 ± 61	69,6 ± 2,1 1901 ± 79	68,6 ± 1,5 1941 ± 59	70,3 ± 1,6 1884 ± 61
Serie 3	71,8 ± 1,2 2156 ± 52	69,8 ± 1,2 2436 ± 59	69,0 ± 1,3 2342 ± 64	70,8 ± 1,2 2310 ± 54	70,4 ± 1,1 2433 ± 54	70,4 ± 1,2 2335 ± 57
Serie 4	71,9 ± 1,6 2039 ± 64	68,1 ± 1,6 2193 ± 68	72,9 ± 1,8 1931 ± 66	71,2 ± 2,1 1967 ± 82	68,7 ± 1,9 1628 ± 64	70,6 ± 1,8 1952 ± 69
Serie 5	70,3 ± 1,5 2170 ± 67	69,4 ± 1,5 2081 ± 63	68,9 ± 1,8 2021 ± 75	68,4 ± 1,8 2093 ± 79	67,3 ± 1,8 2245 ± 87	68,9 ± 1,7 2122 ± 75
Serie 6	70,0 ± 1,1 1871 ± 43	70,0 ± 0,9 2051 ± 36	69,9 ± 1,4 2064 ± 59			70,0 ± 1,2 1995 ± 47

¹ Ekstremverdi bekreftet med Grubbs test (se Appendiks A4.4).

Det er med en gang tydelig at R_0 er tilnærmet halvert fra tellehastigheten ved $t = 0$ som ble observert under de manuelle eksperimentene gjort ved å følge samme prosedyre (se 6.2.2.2). Den sannsynlige årsaken til nedgangen er den raske gjennomstrømningshastigheten til væskene gjennom kolonnen i RoboLab-oppsettet (effekten av gjennomstrømningshastighet ble forklart i kapittel 3.2.2).

Andre mulige momenter som kan forårsake en nedgang i tellehastigheten kan være hvis mengden prøve eluert ut til prøvekoppen er under 20 dråper, slik det ble testet i 6.2.2.1. Dette ble utelukket ved å gjennomføre prøveelueringssteget gjentatte ganger, for å deretter veie den eluerte væsken (vann ble brukt til dette formålet). Beskrivelse av undersøkelsen, samt de registrerte mengdene, finnes i Appendiks A8. Gjennomsnittlig vekt på den eluerte mengden var $1,84 \pm 0,02$ g. Siden vann ble brukt er forholdet mellom gram og milliliter 1:1. Basert på antakelsen gjort i 6.2.3 der det ble antatt at det er 20 dråper i 1 ml, kan 1,84 g konverteres til ~35 dråper. Det bør også merkes at prøveelueringshastigheten er på 300 dråper/min.

Hvis verdiene fra Tabell 6-12 presenteres som et punktplott (eng.: *dot plot*)³⁵ (Figur 6-14) kan man gjøre en visuell vurdering av presisjonen og nøyaktigheten til målingene.



Figur 6-14: Punktplott for målinger av halveringstid for seriene 1-6. Gjennomsnittet av parallelle målinger innen samme serie er symbolisert med en rød stjerne. Litteraturverdien og dens standardavvik 1σ og 2σ er illustrert med vertikale linjer. Ekstremverdien fra serie 2 er symbolisert med en trekant.

I seriene 3, 4 og 5 er de parallelle halveringstidmålingene noe spredt, slik at presisjonen ikke er like god som i seriene 1, 2 og 6. Den beregnede verdien 74,0 i serie 2 er en ekstremverdi med hensyn til gjennomsnittlig halveringstid for serien som den hører til. Dette skyldes sannsynligvis en grov feil gjort under forsøket (trolig feil under tidtaking mellom eluering og start av telling), men ble allikevel tatt med i beregningen av gjennomsnittet. Totalt sett ser spredningen av data ut til å være forårsaket av tilfeldige feil (spredningen skjer i begge retninger fra den teoretiske halveringstidverdien), men systematiske feil kan ikke utelukkes.

Selv om presisjonen i flere av tilfellene er mindre god, ligger de gjennomsnittlige verdiene imidlertid veldig nær litteraturverdien funnet i NNDC, noe som viser at nøyaktigheten er god (Tabell 6-13). I fire

³⁵ Denne typen datapresentasjon ble valgt for å enkelt visualisere spredningen i de målte halveringstidene innen samme serie, samt for sammenligning av denne spredningen mellom de parallelle seriene.

av seks serier ligger den gjennomsnittlige halveringstiden innenfor ett standardavvik for litteraturverdien.

Tabell 6-13: Prosentavvik (gitt som absoluttverdi) av de målte gjennomsnittlige halveringstidene for ^{234m}Pa fra litteraturverdi.

	Avvik fra litteraturverdi (%)
Serie 1	0,0
Serie 2	1,1
Serie 3	1,3
Serie 4	1,6
Serie 5	0,9
Serie 6	0,7

Reproduserbarheten (presisjon mellom måleseriene) av gjennomsnittsverdien til halveringstiden er ansett å være svært tilfredsstillende, mens repeterbarheten (presisjon innenfor samme måleserie) ligger på et akseptabelt nivå for forsøkets formål. Brukeren av den fjernstyrte øvelsen vil – på samme måte som når øvelsen gjøres manuelt – forventes å utføre flere parallelle målinger for å oppnå troverdige resultater.

En tosidig t-test (ligning og forklaring finnes i Appendiks A4.3) ble utført for å sjekke om de gjennomsnittlige halveringstidene i de seks seriene i Tabell 6-12 er signifikant forskjellige fra den teoretiske verdien 69,5 sek. Følgende hypoteser ble definert:

$$\text{Nullhypotese} - H_0: \mu = 69,5 \text{ (eller } \mu - 69,5 = 0).$$

$$\text{Alternativ hypotese} - H_1: \mu \neq 69,5 \text{ (eller } \mu - 69,5 \neq 0)$$

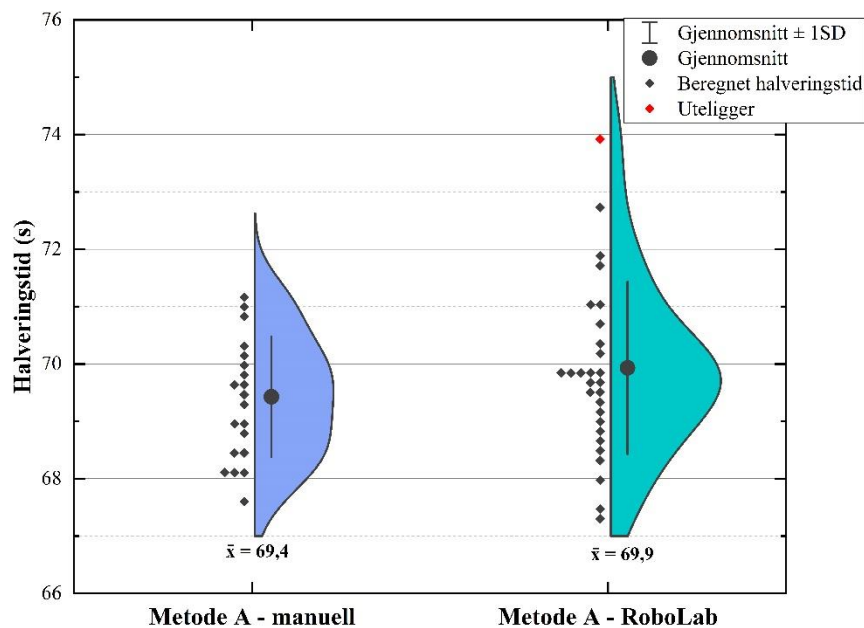
der μ er en forventningsverdi. Resultatene av t-testen er listet i Tabell 6-14 under.

Tabell 6-14: Tosidig t-test med signifikansnivå 5%, der t_{obs} er den observerte (beregnete) t-verdien. Frihetsgraden er 4 i serie 1-5 (den kritiske t-verdien $t_{\text{krit}} = 2,78$), og 2 i serie 6 ($t_{\text{krit}} = 4,30$).

	t_{obs}
Serie 1	0,00
Serie 2	1,12
Serie 3	1,68
Serie 4	1,37
Serie 5	0,79
Serie 6	0,72

I alle seriene var den observerte t-verdien t_{obs} mindre enn den kritiske t-verdien (t_{krit}) og nullhypotesen kan derfor ikke forkastes – på 5% signifikansnivå kan man ikke påstå at de målte verdiene er forskjellige fra den teoretiske verdien. Konklusjonen av t-testen stemmer godt overens med den visuelle vurderingen av dataene i Figur 6-14 og med prosentavvikene gitt i Tabell 6-13.

Et fiolinplott ble valgt for å sammenligne spredningen av de målte halveringstidene i RoboLab-oppsettet og i de manuelle forsøksseriene fra Metode A (se Tabell 6-4). Plottet er presentert i Figur 6-15. Samlet gjennomsnitt for de manuelle forsøkene og RoboLab-forsøkene er henholdsvis $69,4 \pm 1,2$ og $69,9 \pm 1,6$.



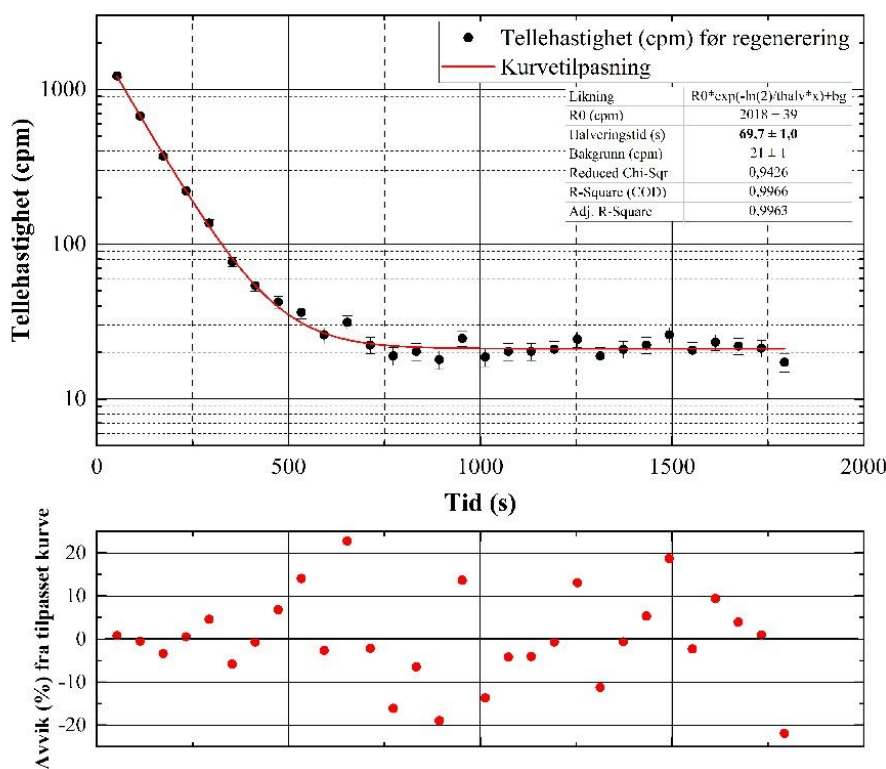
Figur 6-15: Fiolinplottet sammenligner fordelingen av de målte halveringstidene når Metode A ble benyttet i manuelle og fjernstyrte (RoboLab) forsøk.

En visuell vurdering av fiolinplottet tilsier at resultatene fra de to øvelsestypene er nokså like. Utførelse av en tosidig «pooled» t-test bekreftet at det ikke er noe signifikant forskjell mellom øvelsene på 5% signifikansnivå. Den konkrete testen som ble utført er beskrevet i Appendiks A4.3.

6.5.1 Regenerering i det fjernstyrte systemet

Tre nye kolonner (1R, 2R, 3R) ble preparert (etter Metode A) for å gjennomføre regenereringsforsøk i det fjernstyrte systemet. Bokstaven *R* bak kolonnennummeret symboliserer at kolonnen ble preparert ved bruk av RoboLab. Disse kolonnene ble melket tre ganger hver før de ble forsøkt regenerert. De tre telleparallelene for hver kolonne ble summert og middelverdiene ble plottet, slik som i Figur 6-16 for kolonne 1R. I denne figuren er måledataene fra melking av kolonne 1R presentert som en

desintegrasjonskurve for ^{234m}Pa . Det skal nevnes at en UAc-løsning som ble samlet i tidligere forsøk ble benyttet i regenereringsforsøkene, og tellehastigheten er derfor noe lavere³⁶ enn i de tidligere forsøkene i kapittel 6.



Figur 6-16: Desintegrasjonskurve for ^{234m}Pa som ble melket ut av den første kolonnen (1R), som senere skulle regenereres. Nederste graf viser hvordan de målte punktene avviker fra tilpasset kurve i prosent.

I Figur 6-16 ble halveringstiden bestemt til å være $69,7 \pm 0,1$ sekunder, mens R_0 er 2019 ± 39 cpm. Den gjennomsnittlige halveringstiden fra tre målinger av eluatet fra kolonner 2R og 3R var henholdsvis $69,6 \pm 1,4$ og $69,8 \pm 2,0$ sekunder. R_0 var for disse 1899 ± 55 og 1883 ± 75 .

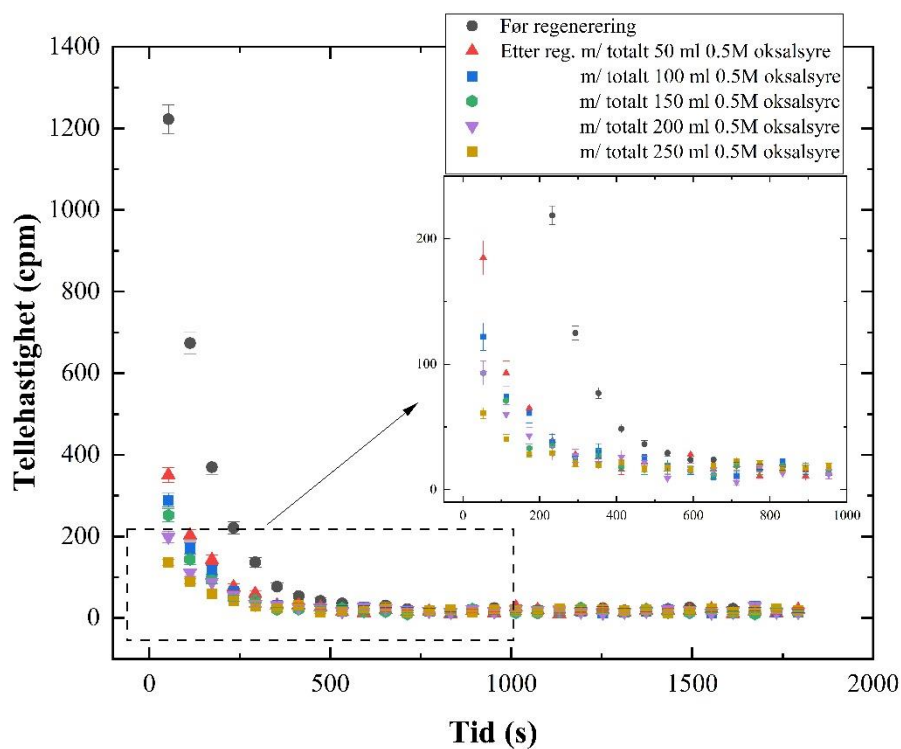
Kolonnene ble regenerert på samme måte som i de manuelle forsøkene, der mengden oksalsyre applisert til den første kolonnen ble økt gradvis for å finne en passende mengde. Totalt 250 ml 0,5 M oksalsyre ble applisert til hver kolonnene. Tabell 6-15 viser reduksjon i beregnet R_0 (også i prosent) som funksjon av mengde oksalsyre brukt til regenerering av kolonne 1R.

³⁶ Inngroing av ^{234}Th har ikke nådd metning på tidspunktet da løsningen ble brukt i regenereringsforsøk.

Tabell 6-15: Reduksjon (%) i beregnet R_0 (cpm) som følge av økning i mengde 0,5 M oksalsyre (ml) brukt til regenerering av kolonnen 1R i det fjernstyrte oppsettet. Hver R_0 -verdi er en middelværdi av tre målinger.

Oksalsyre (ml)	R_0 (cpm)	Reduksjon (%)
0 (opprinnelig)	2018 ± 39	-
50	544 ± 37	73
100	457 ± 31	77
150	401 ± 32	80
200	278 ± 24	86
250	198 ± 20	90

Regenereringsforløpet illustreres ved å måle desintegrasjonskurven til ^{234m}Pa etter hver eluering av ^{234}Th med et bestemt volum av elueringsmiddelet. Figur 6-17 viser desintegrasjonskurvene som ble registrert etter at kolonne 1R ble vasket med totalt 50, 100, 150, 200, og 250 ml oksalsyre.



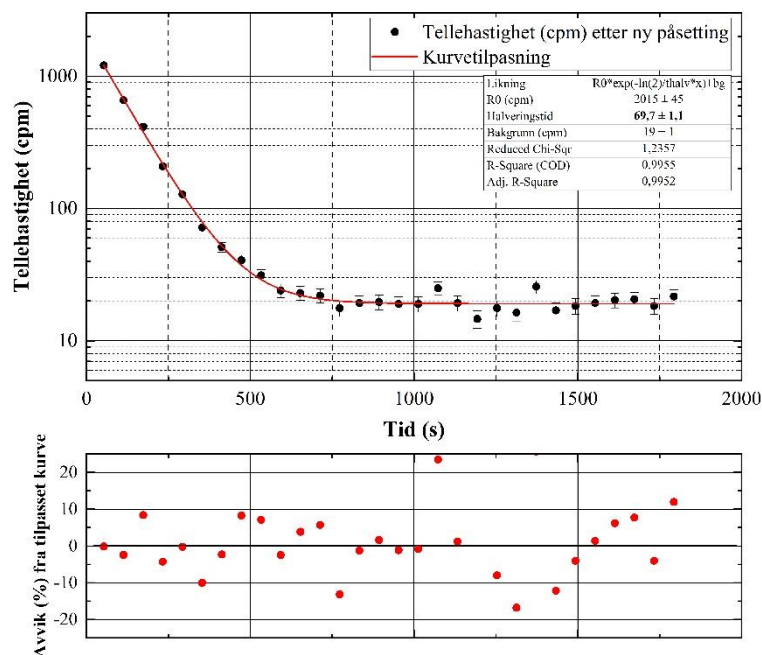
Figur 6-17: Endring i tellehastigheten til ^{234m}Pa i kolonne 1R som følge av fjernstyrt kolonneregenerering med totalt 50, 100, 150, 200, og 250 ml 0,5 M oksalsyre. Desintegrasjonskurvene for protactinium ble på denne måten brukt for å følge regenereringsforløpet.

I kolonne 2R og 3R ble protactiniums R_0 redusert til henholdsvis 167 ± 29 (91%) og 160 ± 20 (92%), etter applisering av 250 ml oksalsyre.

Siden påsetting av prøve til en ionebytterkolonne er mest effektiv når ionet som skal adsorberes holdes sterkere enn ionet som skal byttes ut, er det naturlig at kolonner vil bli operert under disse betingelsene. Følgelig er regenereringsprosessen vanskeligere og mindre effektiv. Fra den reversible naturen til en utbyttingsprosess vil desorpsjon av thorium finne sted i det konsentrasjonen av hydrogenionene økes. Til tross for dette vil fjerning av de siste spormengdene med thorium ta mye tid og kreve store mengder regenereringsmiddel, som nevnt i Tabell 3-1 for en sterk kationbytter.

Fjernstyrt regenerering av kolonnen viste seg å være gjennomførbart ved bruk av 0,5 M oksalsyre. 250 ml oksalsyre fjernet nok thorium til at spormengdene som ble igjen ikke forstyrret målingene av eluatet i den neste påsettingen ved å produsere registrerbare mengder protactinium. Oksalsyremengden som behøves er imidlertid mindre enn tidligere etablert under manuelle forsøk. En rimelig antakelse er at den raske gjennomstrømningshastigheten fysisk fjerner thoriumet som allerede har blitt kjemisk løst, men ikke eluert, fra resinet.

De regenererte kolonnene ble deretter preparert på nytt etter samme metode som før regenerering. Figur 6-18 viser desintegrasjonskurven som ble registrert for 1R. Denne kurven er plottet med totalt tre sammenlagte paralleller (kolonnen ble melket tre ganger), der middelverdien i hvert tellepunkt ble beregnet med ligningene A-6 og A-7 i Appendiks A4.1.



Figur 6-18: Resulterende desintegrasjonskurve etter gjenbruk av en kolonne som ble tidligere regenerert med totalt 250 ml 0,5 M oksalsyre. Kurven er plottet med middelverdiene av totalt tre paralleller.

Tabell 6-16 under oppsummerer og sammenligner de oppnådde halveringstidene og R_0 -verdiene fra fjernstyrte regenereringsforsøk gjort på kolonnene 1R, 2R, og 3R.

Tabell 6-16: Sammenligning av de målte halveringstidene og R_0 før regenerering og etter at den regenererte kolonnen ble preparert på nytt med Metode A, fjernstyrt. Hver oppgitt halveringstid og R_0 er en middelvei av tre paralleller.

	Før regenerering		Etter ny påsetting	
	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)	Beregnet $T_{1/2}$ (s)	R_0 (cpm)
Kolonne 1R	$69,7 \pm 1,0$	2018 ± 39	$69,7 \pm 1,1$	2015 ± 45
Kolonne 2R	$69,6 \pm 1,4$	1899 ± 55	$69,8 \pm 1,7$	1887 ± 65
Kolonne 3R	$69,8 \pm 2,0$	1883 ± 75	$69,8 \pm 1,4$	1863 ± 49

Det er klart at resinkapasiteten i den følgende påsettingen var tilnærmet fullstendig gjenopprettet, slik som under tilsvarende manuelle forsøk (Tabell 6-9).

Tatt de økonomiske momentene i betraktning, vil en utskiftning av kolonnen koste omtrent like mye som å regenerere den med oksalsyre, men vil være mer tidsbesparende for brukeren. En slik utskiftning vil derimot kreve at noen er fysisk til stede i laboratoriet der nuklidegeneratoren er satt opp. Regenereringssteget fjerner behovet for fysisk innblanding og gjør øvelsen fullstendig fjernstyrt, og repeterbar.

6.5.2 Oppsummering av funksjonstesten

Den optimale prosedyren for generering av ^{234m}Pa , tidligere etablert i kapittel 6.2.4, viste seg å være kompatibel med det fjernstyrte RoboLab-oppsettet.

Det har i tidligere laboratoriebeskrivelser for nuklidegeneratorforsøket, utført som en del av kurset KJM5912, blitt oppgitt at den bestemte halveringstiden til ^{234m}Pa skal være $\sim 1,2$ min (72 sek). Denne halveringstiden ble også bestemt til å være 1,2 min da Seelmann-Eggebert, Keller, og Zundel (1961) demonstrerte en forsøksprosedyre som ligner på den brukt i kurset. Denne verdien har vært et nyttig utgangspunkt for planlegging og optimalisering av de fjernstyrte forsøkene.

Slik det ble nevnt tidligere, er litteraturverdien til halveringstiden for ^{234m}Pa $1,159 \pm 0,011$ min ($69,54 \pm 0,66$ sek). Det er en alminnelig regel at målinger ikke skal utføres mer nøyaktig enn nødvendig i forhold til de kravene som stilles, og det er derfor bestemt at en halveringstidverdi som ligger mellom litteraturverdien og den aksepterte verdien for et manuelt forsøk (utført med et enkelt oppsett) skal regnes som et akseptabelt resultat i RoboLab-øvelsen.

Et gjennomsnitt av totalt 26 halveringstider målt med RoboLab-oppsettet (fra Tabell 6-12) ga en halveringstid på $69,9 \pm 1,6$. Dette tilsvarer et avvik på 0,5% fra litteraturverdien. En ytterligere

skjerpelse av krav til målt halveringstid vil medføre at RoboLab-oppsettet krever vesentlig mer utstyr (blant annet for trykkregulering) og bearbeidelse.

7 Konkluderende bemerkninger og videre arbeid

RoboLab kan betraktes kun som et verktøy for å hente inn data (Omtvedt, et al. 2009). For å oppnå best mulig læringsutbytte har det vært høyt fokus på den pedagogiske tilnærmingen til den aktuelle RoboLab-øvelsen. De fire karakteristiske trekkene ved pedagogisk bruk av digital teknologi i undervisning som Schmid, et al. (2014) fremhevet i sin studie av forskningslitteratur (se kapittel 1.1.3) ble brukt som viktige utgangspunkter for planlegging og utvikling den fjernstyrte ^{234m}Pa -nuklidegeneratorøvelsen, og skal fortsettes å brukes under utvikling av en nettapplikasjon for øvelsen.

En simulert ^{234m}Pa -nuklidegenerator ble utviklet for å gi studentene en grunnleggende forståelse av teorien bak en slik generator og forberede dem på eventuelle feil som kan skje under den fysiske, men også den fjernstyrte øvelsen. Slik vil også studentenes læringsprosess settes i gang. Underveis i simuleringen blir det gitt grundige tilbakemeldinger og beskrivelser av hvert enkelt steg i prosedyren. Et interaktivt brukergrensesnitt i simuleringen sikter også på å øke informasjonsformidlingen.

Ifølge evalueringer og tilbakemeldinger fra studenter har de fjernstyrte øvelsene, spesifikt NAA-øvelsen og den simulerte ^{234m}Pa -nuklidegeneratorøvelsen, vært gode verktøy for undervisning av radio- og kjernekjemi ved Universitetet i Oslo. Under den begrensede tilgangen til campus demonstrerte RoboLab fleksibiliteten som tilbys av å ha digitale metoder og hjelpemidler i undervisningsverktøykassen, og viste seg også å være et verdifullt alternativ til fysisk opplæring. Slik tidligere nevnt, er RoboLab imidlertid ikke å anse som en erstatning for slik opplæring.

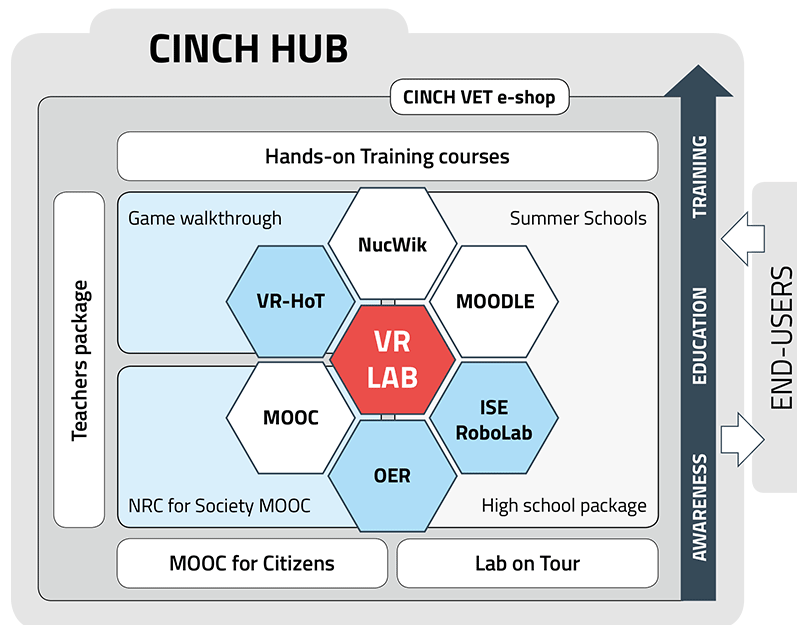
En generell mal for serverprogrammet som kan brukes til utvikling av fremtidige RoboLab-øvelser, samt for å oppdatere eksisterende programmer, har blitt etablert og er forventet å ha et svært tids- og ressursbesparende potensiale.

Utviklingen av det nyeste RoboLab-verktøyet, en fjernstyrt ^{234m}Pa nuklidegenerator, anses å være vellykket ferdigstilt – program- og maskinvaremoduler har blitt satt sammen til et robust, lekkasjesikkert rammeverk. Desintegrasjonskurvene i kapittel 6 viser at ^{234m}Pa som blir produsert via RoboLab desintegrerer med dens karakteristiske halveringstid, og systemet opererer dermed i henhold til øvelsens formål.

En innovasjon er en kontinuerlig prosess med mange faser og veien til avslutningsfasen skal være lang. I skrivende stund er den fjernstyrte nuklidegeneratorøvelsen klar til å brukes i radio- og kjernekjemikurs for brukeraksepttesting, og vil – i nærmeste fremtid – bli utgitt som en nettapplikasjon for generell bruk. Det ble ikke rom til utvikling av en nettapplikasjon innen arbeidet som beskrives her, men vil gjennomføres som en del av A-CINCH prosjektet.

Hvis man ser tilbake til faktorene nevnt i innovasjonssirkelen i Figur 1-7, er det klart at RoboLab fremmer kompetanseutvikling og dekker kravet om relevans og kvalitet.

Fritt tilgjengelige ressurser er ikke alltid godt synlige og markedsførte. Derfor har CINCH-prosjektet høyt fokus på å tilrettelegge for enkel tilgjengelighet og sørge for å synliggjøre RoboLab for målgruppen gjennom sine sosiale medier, konferanser, skolebesøk, sommerskoler og mye mer. Før utgangen av 2023 skal alle RoboLab-øvelsene, samt mange andre ressurser som promoterer NRC, bli pakket inn i et digitalt knutepunkt «CINCH Hub» (Figur 7-1) (A-CINCH Consortum 2021).



Figur 7-1: CINCH Hub (A-CINCH Consortum 2021).

Som en del av bidraget til å synliggjøre slike ressurser, ble arbeidet med denne masteroppgaven presentert på 19th Radiochemical Conference (RadChem 2022) i Tsjekia og på Second International Conference on Application of Radiation Science and Technology (ICARST-2022) ved IAEAs hovedkvarter i Wien. I forbindelse med RadChem ble det også skrevet en artikkel som er akseptert for publisering i Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (postprint er vedlagt i Appendiks B).

Til slutt er det verdt å nevne at selv om samarbeidsprosjekter som CINCH jobber hardt for å fremme NRC, må det i større grad anerkjennes at det ønskede resultatet vil ta tid å oppnå da det krever store endring i holdningen som den generelle befolkningen har mot fagfeltet.

Referanser

- A-CINCH Consortum. 2021. «*CINCH tools and teaching techniques*». Funnet 25 mai, 2022.
<https://www.cinch-project.eu/default-title-1/cinch-tools-and-teaching-techniques>.
- Bjørnstad, Tor. 2021. «Forelesningskompedium - Introduksjon til ionebytting.» Forelesningskomp., Universitetet i Oslo.
- . u.d. «*Production and Measurement of Pa-234m Nuclide Generator*». Funnet 23 januar, 2022.
<https://nucwik.com/exercises/laboratory-exercises/lab-exercises---radiochemistry-techniques-and-methods/Production-and-Measurements-of-a-234mPa-Nuclide-Generator/>.
- Boddy, Richard, og Gordon Smith. 2009. *Statistical Methods in Practice: for Scientists and Technologists*. Chichester: John Wiley & Sons.
- Browne, Erica, og Jagdish K. Tuli. 2007. «Nuclear Data Sheets for A = 234.» *Nuclear Data Sheets* 108 (3): 681-772. <https://doi.org/10.1016/j.nds.2007.02.003>
- . 2015. «Nuclear Data Sheets for A = 238.» *Nuclear Data Sheets* 127: 191-332.
<https://doi.org/10.1016/j.nds.2015.07.003>.
- Choppin, Gregory, Jan-Olov Liljenzin, Jan Rydberg, og Christian Ekberg. 2013. *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*. 4. Amsterdam: Elsevier.
- Cirillo, Roberta. 2022. «A-CINCH Deliverable D6.6 - First Public Report.» Prosjektrapport, A-CINCH.
- Cohen, Jacob. 1988. *Statistical Power Analysis for the Behavioral Sciences*. 2. Hillsdale, N. J: Laurence Erlbaum.
- Dash, Ashutosh, F. F. Knapp, og M. R. A. Pillai. 2013. «Industrial radionuclide generators: a potential step towards accelerating radiotracer investigations in industry.» *RSC Advances* 3 (35): 14890-14909. <http://doi.org/10.1039/C3RA41639A>.
- Diamond, R. M., K. Street Jr., og G. T. Seaborg. 1954. «An Ion-exchange Study of Possible Hybridized 5f Bonding in the Actinides.» *Journal of the American Chemical Society* 76 (6): 1461-1469. <http://doi.org/10.1021/ja01635a001>.
- Djurfeldt, Ralph, og Olof Samuelson. 1950. «Utilization of Ion Exchangers in Analytical Chemistry.» *Acta Chemica Scandinavica* 4: 164-184.
- Dyrssen, David. 1950. «The Preparation of Carrier-free 234-Th (UX1) by Ion Exchange.» *Svensk Kemisk Tidskrift*, 62., 153-164.
- Finansdepartementet. «*Tilleggsbvilgninger og omprioriteringer i statsbudsjettet 2022*.» Revidert statsbudsjett, Prop. nr 115 S (2021-2022), Oslo: Finansdepartementet, 2022. Funnet 20 juli, 2022. https://www.stortinget.no/no/Saker-og-publikasjoner/Saker/Sak/?p=89361&fbclid=IwAR2_sWMffEMl3zj473eM034uB7efXkGhbDMnR-MohAv6csaT9b_OJOBbpXo.

- Fournier, Claudia, og Jon Petter Omtvedt. 2016. «CINCH-II Deliverable D3.4 - Six nuclear chemistry remote controlled experiments ready for use.» Prosjektrapport, CINCH-II.
- Geiger, Hans, og Walther Müller. 1928. «Elektronenzählrohr Zur Messung Schwächster Aktivitäten.» *Die Naturwissenschaften* 16: 617-618.
- Grindler, James E. 1962. «The Radiochemistry of Uranium.» Teknisk rapport, LBNL.
- Helfferrich, Friedrich. 1962. *Ion Exchange*. New York: McGraw-Hill Book Company, Inc.
- Holland, Jason P., Matthew J. Williamson, og Jason S. Lewis. 2010. «Unconventional Nuclides for Radiopharmaceuticals.» *Molecular Imaging* 9(1): 1-20.
- Holtebekk, Trygve, og Inger Lise A. Delphin. 2021. «tracer.» i *Store Norske Leksikon*. Funnet 20 mai, 2022. <https://snl.no/tracer>.
- Holtebekk, Trygve, og Tor Bjørnstad. 2020. «radioaktivitet.» i *Store Norske Leksikon*. Funnet 22 januar, 2022. <https://snl.no/radioaktivitet>.
- Hyde, E. K. 1960. «The Radiochemistry of Thorium.» Teknisk rapport, LBNL.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 1998. «Experience in the Use of Systematic Approach to Training (SAT) for Nuclear Power Plant Personnel.» Teknisk rapport *IAEA-TECDOC-1057*, IAEA.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 2013. «Radiotracer Generators for Industrial Applications.» Teknisk rapport *IAEA Radiation Technology Series*, IAEA.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 2021. «Systematic Approach to Training for Nuclear Facility Personnel: Process Methodology and Practices.» Teknisk rapport *IAEA Nuclear Energy Series (NG-T-2.8)*, IAEA.
- Jitmanee, Kritsana, Norio Teshima, Tadao Sakai, og Kate Grudpan. 2010. «DRCtrade mark ICP-MS coupled with automated flow injection system with anion exchange minicolumns for determination of selenium compounds in water samples.» *Talanta* 73(2): 352-357.
- John, Jan. 2013. «CINCH Deliverable D6.10 - Final Report.» Prosjektrapport, CINCH-I.
- Jurisson, Sylvia S., og John D. Lydon. 1999. «Potential Technetium Small Molecule Radiopharmaceuticals.» *Chemical Reviews* 99(9): 2205-2218.
<https://doi.org/10.1021/cr980435t>
- Keller, Cornelius. 1971. *The Chemistry of the Transuranium Elements*. 3.: Verlag Chemie GmbH.
- Knapp, Alex. 2011. «National Instruments Is Leading a Quiet Technological Revolution.» *Forbes*. 12 oktober. Funnet 2 juli, 2022. <https://www.forbes.com/sites/alexknapp/2011/10/12/national-instruments-is-leading-a-quiet-technological-revolution/?sh=43a841835c22>.
- Knapp, F. F., Mra Pillai, J. A. Osso Jr, og Ashutosh Dash. 2014. «Re-emergence of the important role of radionuclide generators to provide diagnostic and therapeutic radionuclides to meet future research and clinical demands.» *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 302: 1053-1068. <https://doi.org/10.1007/s10967-014-3642-8>.
- Knoll, Glenn F. 2000. *Radiation Detection and Measurement*. 3. New York: John Wiley & Sons, Inc.

- Koran, Petr. 2013. «CINCH-II Deliverable D4.1 - Project Presentation.» Prosjektrapport, CINCH-II.
- Korkisch, Johann. 1989. *Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry*. 1. Boca Raton: CRC Press.
- . 1989. *Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry*. 2. Boca Raton: CRC Press.
- Korseberg, Lene, Ann Cecilie Bergene Svartefoss, og Elisabeth Hovdhaugen. 2022. *Pedagogisk bruk av digital teknologi i høyere utdanning*. Oslo: Nordisk institutt for studier av innovasjon, forskning og utdanning NIFU.
- L'Annunziata, Michael F. 2012. *Handbook of Radioactivity Analysis*. 3. Amsterdam: Elsevier.
- Losito, Roberto, og Alessandro Masi. u.d. «CERN Uses NI LabVIEW Software and PXI Hardware to Control World's Largest Particle Accelerator.» *ni.com*. Funnet 2 juli, 2022. <https://www.ni.com/en-no/innovations/case-studies/19/cern-uses-ni-labview-software-and-pxi-hardware.html>.
- Luqman, Mohammad. 2011. *Ion-exchange Technology I*. 1. Dordrecht: Springer Netherlands.
- Miller, James N., og Jane C. Miller. 2010. *Statistics and Chemometrics for Analytical Chemistry*. 6. Harlow: Pearson Education Limited.
- National Instruments Corp. 2022. «Application Design Patterns: State Machines.» *ni.com*. Funnet 27 august, 2022. <https://www.ni.com/en-no/support/documentation/supplemental/16/simple-state-machine-template-documentation.html>.
- . 2022. «LabVIEW NXG - Life-Cycle Dates.» *ni.com*. Funnet 10 juli, 2022. <https://www.ni.com/en-no/shop/labview/labview-nxg.html>.
- . 2022. «PCIe-6351 and USB-6351 Specifications.» *ni.com*. Funnet 25 juli, 2022. <https://www.ni.com/docs/en-US/bundle/pcie-usb-6351-specs/page/specs.html>.
- . 2022. «Shift Registers: Passing Values between Loop Iterations.» *ni.com*. Funnet 22 mai, 2022. https://www.ni.com/docs/en-US/bundle/labview/page/lvconcepts/shift_registers_concepts.html.
- NRC Network. u.d. «The European Network on Nuclear and Radiochemistry Education and Training.» *NRC Network*. Funnet 3 januar, 2022. <https://nrc-network.org/index.html>.
- O'Flaherty, Jacqueline, og Craig Phillips. 2015. «The use of flipped classrooms in higher education: A scoping review.» *The Internet and Higher Education* 25: 85-95.
- Omtvedt, Jon Petter, Liv Stavsetra, Frøydis Schulz, og Karsten Opel. 2009. «Laboratorieøvelser som fjernundervisning - Erfaringer fra utvikling av det fjernstyrte laboratoriumet Robolab.» *Ringer i vann. Lenge leve fleksibel læring ved Universitetet i Oslo*: 49-58.
- OriginLab Corporation. u.d. «Origin and OriginPro.» *OriginLab Corp*. Funnet 13 juni, 2022. <https://www.originlab.com/index.aspx?go=Products/Origin>.
- Paolone, Mario, Fedele Tegarelli, Simone Rametti, og Denis Tudor. u.d. «The EPFLoop: Using CompactRIO to Control a SpaceX Hyperloop Pod Prototype.» *ni.com*. Funnet 2 juli, 2022.

- <https://www.ni.com/en-no/innovations/case-studies/19/the-epfloop-using-compactrio-to-control-a-spacex-hyperloop-pod-prototype.html>.
- Powsner, Rachel A. 2022. *Essentials of nuclear medicine physics, instrumentation, and radiation biology*. 4. Newark: John Wiley & Sons.
- Press, William H., Brian P. Flannery, Teukolsky Saul A., og William T. Vetterling. 1986. *Numerical recipes : the art of scientific computing*. Cambridge: Cambridge University Press.
- Ratzlaff, Kenneth L. 1987. *Introduction to computer-assisted experimentation*. New York: John Wiley & Sons.
- Reiman, William, og Harold F. Walton. 1970. *Ion exchange in analytical chemistry*. Pergamon Press Inc.
- Ryabchikov, D. I., og E. K. Golbraikh. 1963. *The Series on Analytical Chemistry: The Analytical Chemistry of Thorium*. 10. London: Pergamon Press Ltd.
- Salmon, J. E., og D. K. Hale. 1959. *Ion Exchange - A Laboratory Manual*. London: Butterworths Scientific Publications.
- Samuelson, Olof. 1952. *Ion exchangers in analytical chemistry*. Stockholm: Almqvist & Wiksells.
- Schmid, Richard F., Robert M. Bernard, Eugene Borokhovski, Rana M. Tamim, Philip C. Abrami, Michael A. Surkes, C. Anne Wade, og Jonathan Woods. 2014. «The effects of technology use in postsecondary education: A meta-analysis of classroom applications.» *Computers & Education* 72: 271-291.
- Seelmann-Eggebert, W., C. Keller, og G. Zundel. 1961. «Radiochemische Demonstrationversuche - Abtrennung Kurzlebiger Nuklide Nach Verschiedenen Methoden.» Vitenskapelig rapport nr. KFK-41, Karlsruhe: Kernreaktor Bau- und Betriebs-Gesellschaft m.b.H.
doi:10.5445/IR/270000243.
- Spectrum Techniques Inc. u.d. «GM Tube Pulse Inverter Model GPI - Operating Instructions.» *spectrumtechniques.com*. Funnet 8 mai, 2022. <https://www.spectrumtechniques.com/wp-content/uploads/2016/12/GPI-Manual.pdf>.
- Strålevernsforskriften. 2016. «Forskrift om strålevern og bruk av stråling.» *Vedlegg om unntaksgrenser, jf. § 2 sjette og syvende ledd*. Fastsatt ved kgl.res. 16. desember 2016.
https://lovdata.no/dokument/SF/forskrift/2016-12-16-1659/KAPITTEL_9#KAPITTEL_9.
- Svartdal, Frode. 2020. «sosial læringsteori.» i *Store Norske Leksikon*. Funnet 25 mai, 2022.
https://snl.no/sosial_1%C3%A6ringsteori.
- Synnevåg, Marit C. 2008. *Deling av digitale læringsressurser i høyere utdanning: en caseanalyse*. Tromsø: Norgesuniversitetet.
- Tuli, Jagdish K., og Erica Browne. 2017. «Nuclear Data Sheets for A = 99.» *Nuclear Data Sheets* 145: 25-340.
- . 2019. «Nuclear Data Sheets for A = 82.» *Nuclear Data Sheets* 157: 260-494.

- United States Nuclear Regulatory Commission. 2021. «Natural uranium». *nrc.gov*. Funnet 12 juni, 2022. <https://www.nrc.gov/reading-rm/basic-ref/glossary/natural-uranium.html>.
- Vose, Peter B. 1980. *Introduction to nuclear techniques in agronomy and plant biology*. London: Pergamon Press Ltd.
- Webb, Andrew. 2002. *Introduction to Biomedical Imaging*. 9. Hoboken, New Jersey: Wiley-Interscience.
- Ørstavik, Finn. 2022. «innovasjon.» i *Store Norske Leksikon*. Funnet 26 mai, 2022. <https://snl.no/innovasjon>.

Appendiks

Appendiks A Generelle vedlegg

- A1. Risikovurdering
- A2. Utstyrsoversikt
 - A2.1 Spesiellaget utstyr
 - A2.2 Skjematisk tegning av GM Pulse Inverter
 - A2.3 Magnetventiler
- A3. Utstyrskonfigurering i NI-MAX
- A4. Formler og beregninger
 - A4.1 Standardavvikformeler
 - A4.2 Residualer
 - A4.3 T-test
 - A4.4 Grubbs test
- A5. Beregninger for UAc
- A6. Kalibreringskurver for mengde tilsatt løsning til kolonne
- A7. Tetthetsmålinger
- A8. Måling av mengde eluert prøve i RoboLab-oppsettet
- A9. Distribusjonskoeffisientene til U og Th
- A10. Utsnitt fra serverprogrammets UI

Appendiks B Konferanseartikkel (postprint)

Appendiks A - Generelle vedlegg

A1. Risikovurdering

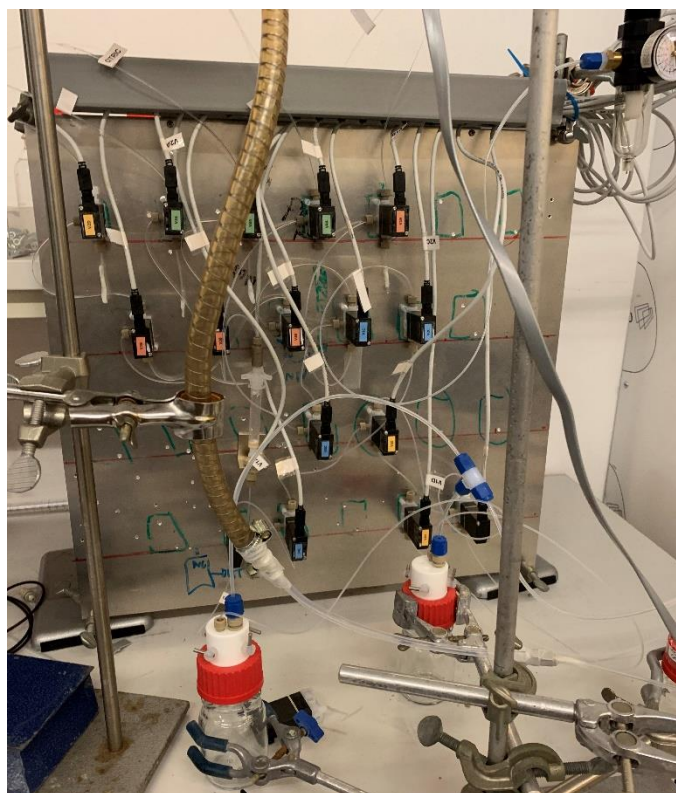
I samarbeid med prosjektveileder og strålevernskoordinator ble farene knyttet til arbeidsmateriell, kjemikalier og arbeidsmetoder evaluert, og nødvendige tiltak iverksatt.

Personrisikoene som er forbundet med de kjemiske løsningene gjelder for UAc, 1 M saltsyre, 10% sitronsyre og oksalsyre. Disse risikoene er listet opp i Tabell A1-1.

Siden det arbeides med en åpen radioaktiv kilde, er det svært viktig å ha gjort seg kjent med gjeldende lover og forskrifter på forhånd. En detaljert plan for arbeidet ble utarbeidet før oppstart, og en egnet arbeidsplass ble klargjort. Prototypen av nuklidegeneratorsystemet (Figur A1-1) ble kaldtestet.

Den nedre grensen for å regne avfall som inneholder uran som radioaktivt er 1 Bq/g. Det vil si at tilnærmet alt avfall som blir produsert under forsøkene må markeres som radioaktivt avfall.

Tekniske faremomenter som er forbundet med det endelige oppsettet, og hvordan disse ble forebygget, er beskrevet i Tabell A1-2.



Figur A1-1: Prototype av det fjernstyrte nuklidegeneratoroppsettet. Prototypen ble brukt under innledende programmering, optimalisering og uttesting av system før et endelig oppsett kunne bygges.

Tabell A1-1: Risikovurdering av kjemikaliene brukt i nuklidegeneratorforsøket.

Kjemikalie	CAS-nr.	Faresetninger	Sikkerhetssetninger
Saltsyre, 1M	7647-01-0	H314 Gir alvorlige etseskader på hud og øyne. H335 Kan forårsake irritasjon av luftveiene	P264 Vask hender grundig etter bruk. P271 Brukes bare i et godt ventilert område. P280 Benytt verneutstyr. P301+P330+P331 VED SVELGING: Skyll munnen. ikke framkall brekning. P303+P361+P353 VED HUDKONTAKT: Tilsølte klær må fjernes. Skyll/eller dusj huden med vann. P304+P340 VED INNÅNDING: Flytt personen til frisk luft og sørg for at vedkommende har en stilling som letter åndedrettet. P305+P351+P338 - VED KONTAKT MED ØYNENE: Skyll forsiktig med vann i flere minutter. Fjern eventuelle kontaktlinser dersom dette enkelt lar seg gjøre. Fortsett skyllingen. Kontakt lege.
Uranylacetat	6159-44-0	H301 Giftig ved svelging. H332 Farlig ved innånding. H412 Skadelig, med langtidsvirkning, for liv i vann.	P261 Unngå innånding av damp/aerosoler. P271 Brukes bare i et godt ventilert område. P273 Unngå utslipp til miljøet. P301+P310 VED SVELGING: Kontakt umiddelbart lege. P304+P340 VED INNÅNDING: Flytt personen til frisk luft og sørg for at vedkommende har en stilling som letter åndedrettet.
Sitronsyre, 10%	77-92-9	H319 Gir alvorlig øyeirritasjon.	P264 Vask hendene grundig etter bruk. P280 Benytt verneutstyr. 7P305+P351+P338 VED KONTAKT MED ØYNE: Skyll forsiktig med vann i flere minutter. Fjern eventuelle kontaktlinser dersom dette enkelt lar seg gjøre. Fortsett skyllingen.
Oksalsyre	144-62-7	H302 Farlig ved svelging. H312 Farlig ved hudkontakt.	P280 Benytt verneutstyr. P264 Vask hender grundig etter bruk. P305 + P351 + P310 VED KONTAKT MED ØYNENE: Skyll forsiktig med vann i flere minutter. Kontakt umiddelbart lege. P301 + P312 VED SVELGING: Kontakt lege ved ubehag. P302 + P352 VED HUDKONTAKT: Vask med mye såpe og vann.

Tabell A1-2: Sikkerhetsvurdering av utstyret.

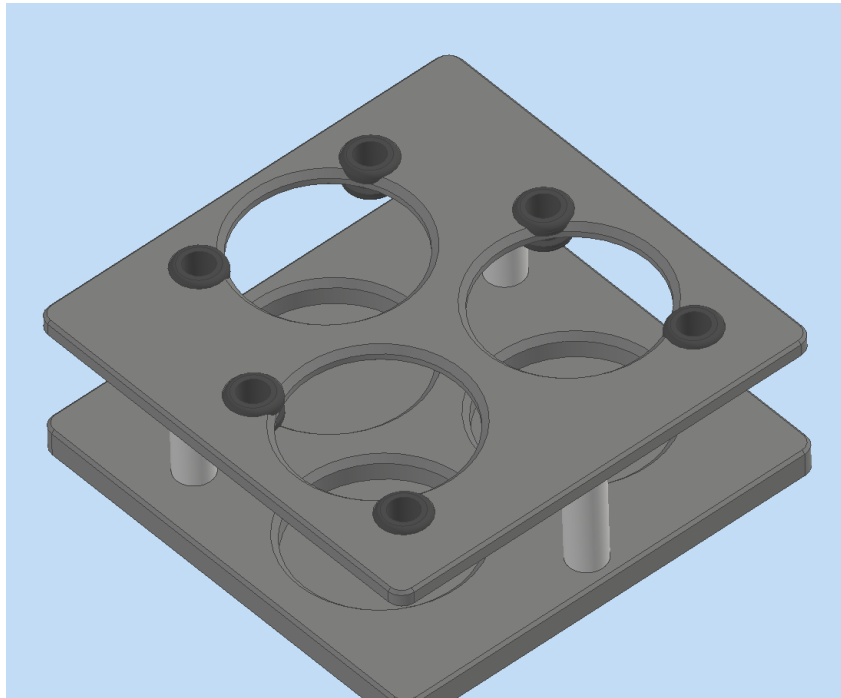
Hvor	Fare-/uhellmomenter	Forebygging og tiltak
Slangekoblinger	Lekkasje fra koblingspunktene.	Før koblingen til ventilen/kolonnen/flasken strammes, er bruk av en slangekutter med riktig diameter et avgjørende steg mot et lekkasjesikkert system. Et rettvinklet kutt sørger for at ferrulen sitter riktig rundt slangen. Alle koblinger skal strammes godt, men ikke for hardt. Oppsettet har blitt lekkasjetestet og -sikret.
Avfallsflasker	(1) Velting på grunn av slangetyngde/vibrasjoner. (2) Hvis fulle: overflyt og påfølgende pumping av væske.	(1) Tyngre flaskeholdere har blitt spesiallaget for flaskekonfigurasjonen. (2) Dersom en eller flere av avfallsflaskene blir fulle under forsøket og vakuumpumpen begynner å pumpe væske, vil pumpen kunne bli ødelagt og potensielt skape brannfare. For å sikre at dette ikke skjer, ble en større flaske installert mellom pumpen og avfallsflaskene slik at overflødig væske fanges opp før den når pumpen.
Trykkregulering	Sprut ved prøveeluering.	Trykket som brukes for å eluere prøven til prøvekoppen skal være minimalt, og holdes på standardinnstillingen for oppsettet. Oppsettet er plassert i et lukket avtrekkskap slik at det er ingen fare for kontaminering på utsiden.
Elektriske komponenter	Systemskade forårsaket av rust.	Alle (oksidierende) løsninger skal oppbevares med lokk på når systemet ikke er i bruk. Alle 230V tilkoblinger for egenutviklet utstyr er utført av fagpersoner ved instituttets elektronikkverksted og plassert i avlukkede bokser.
Oppsettets plassering	Utslipp av gasser, Kontaminering utenfor skapet.	Oppsettet ble installert inne i et spesiallaget skap som senere ble koblet opp til rommets ventilasjonsanlegg for å ha avtrekk. Utløpet til vakuumpumpen som står utenfor ble dirigert inn i avtrekkskapet ved hjelp av en gummislange slik at gassene som blir pumpet ut av avfallsflaskene ikke siver ut i rommet. Etter at oppsettet ble ferdigbygget, ble det montert plexiglass utenpå skapet for å beskytte mot avgasser og løsemidler.

A2. Utstyrsoversikt

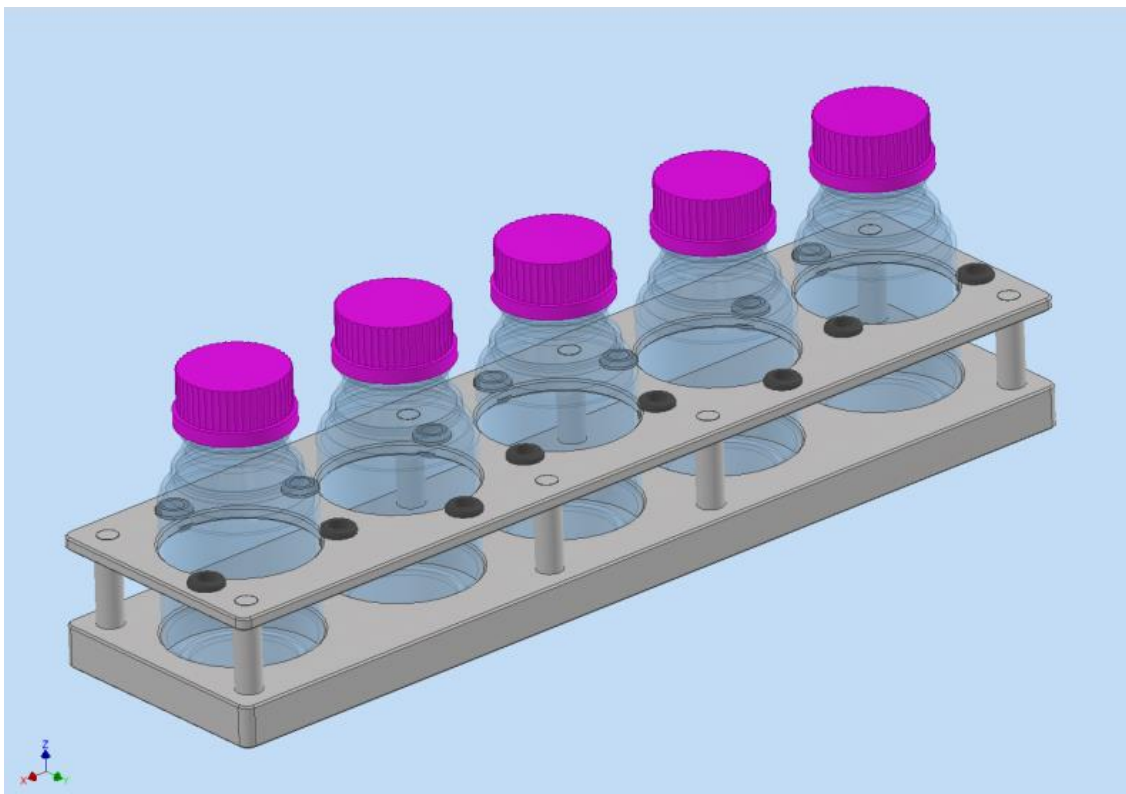
Tabell A2-1: Oversikt over hvilke deler nuklidegeneratoroppsettet består av. Verktøy som ble brukt for å bygge oppsettet er ikke listet i denne tabellen. Maskinvare som er nevnt tidligere er heller ikke inkludert.

Utstyr	Produktnr.	Produsent	Bruksområdet
Koaksialkabel	RG 174	Bedeia	I/O ↔ PCI
BNC hann-kontakt	R141 075 161W	Radiall®	I/O ↔ PCI
Ø8mm polyuretan slange	PU2-0508025C	IMI Norgren	Trykksystemet
Pirani vakuummåler	APG100-XLC	Edwards	Vakuumsystemet
Active Digital Controller	D39591000	Edwards	Vakuumsystemet
Diafragma vakuumpumpe	N 86 KT.18	KNF LABOPORT®	Vakuumsystemet
PFA union tee	PFA-220-3	Swagelok	Vakuumsystemet
PFA hann-kontakt	PFA-220-1-2	Swagelok	Vakuumsystemet
Glassflasker, 250 ml	215-4262	VWR	Vakuumsystemet
Magnetventiler	Type 6606, A og T	Bürkert	Ventilsystemet
LED-diode	AL8M-P1G	IDEC	Ventilsystemet
Apparatkontakt Ø1/16" og Ø1/8"	Type 2505 XP-235	Bürkert Upchurch Scientific	Ventilsystemet ↔ I/O Ventilsystemet,
PEEK-nøtt + ETFE ferrule	P-200		vakuumsystemet
Ø1/16" PFA slange	1507L	Upchurch Scientific	Ventilsystemet, vakuumsystemet
Glassflasker, 500 ml	215-4263	VWR	Øvre del – flasker for væskeuttak
Flaskelokk med åpning for Ø1/16" slange	A-630	Upchurch Scientific	Øvre del – flasker for væskeuttak
Geiger–Muller-rør	Eldre utstyr: ingen informasjon tilgjengelig		Detektorsystemet
GM Pulse Inverter	GPI	Spectrum Techniques Inc.	Detektorsystemet
Høyspenningskilde	Model 3002	Canberra	Detektorsystem
Dual Counter/Timer	Model 2071A	Canberra	Detektorsystem

A2.1 Spesiallaget utstyr

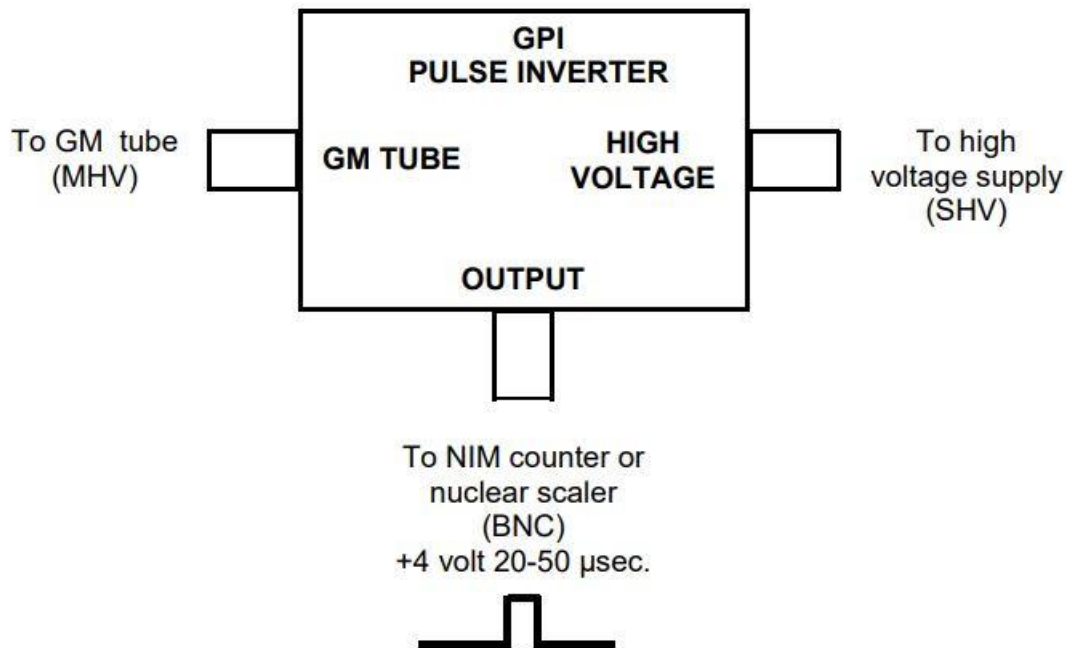


Figur A2-1: Spesiallaget flaskeholder for avfallsflaskene. Formålet er økt stabilitet under veieforsøk og generell sikkerhet under arbeid med radioaktivitet. O-ringene forhindrer vibrasjonsforstyrrelser på vekten grunnet pumpen.



Figur A2-2: Spesiallaget flaskeholder for flaskene som inneholder løsninger for tilsetting til kolonnen.

A2.2 Skjematisk tegning av GM Pulse Inverter



Figur A2-3: Skjematisk tegning av en GPI GM Pulse Inverter fra Spectrum Techniques (Spectrum Techniques Inc. u.d.).

A2.3 Magnetventiler

I denne masteroppgaven brukes 2/2-veis og 3/2-veis ventiler for å styre løsningsenes bevegelse i riktig retning. Det første tallet i 2/2 og 3/2 indikerer hvor mange tilkoblingsmuligheter en ventil har (antall porter), mens det andre tallet (2) angir antall stillinger/posisjoner ventilen kan være i. Egenskapene til disse ventilene er listet i Tabell A2-2.

Tabell A2-2: Egenskapene til 2/2- og 3/2-veis ventiler.

2/2-veis ventiler	3/2-veis ventiler
2 porter – NC/NO og utløp	3 porter – NC, NO, innløp/utløp
2 stillinger/posisjoner	2 stillinger/posisjoner
Én strømningsvei	To strømningsveier
Brukes som stengeventil	Brukes som styringsventil

En NC-port vil normalt være lukket (*normally closed*) og ingen væske vil kunne flyte gjennom porten hvis ventilstatusen er PÅ (spenningstilstanden er HØY). En NO (*normally open*)-port er normalt åpen, og vil væske kunne strømme gjennom så lenge ventilstatusen er AV (spenningstilstanden er LAV).

Valget av NC- eller NO-porter er gjort slik at systemet skal automatisk gå til en sikker tilstand dersom det oppstår strømbrudd eller datakrasj.

I denne masteroppgaven ble NC- og NO-portene brukt både som inngangs- og utgangsporter for væskestrømmen (både i 2/2 og 3/2-veis ventiler) (se oppsettskissen i Figur 6-2). Kun NC-type 2/2-veis magnetventiler ble brukt som stengeventiler i oppsettet. Det var ikke hensiktsmessig å bruke NO-type 2/2-veis ventiler.

A3. Utstyrskonfigurering i NI-MAX

Tabell A3-1: Ventilkonfigurering i NI-MX.

Ventilnavn (strengetikket)	Fysisk kanal	Rekkefølge/heltallsverdi
V1A	port2/line2	1
V2A	port0/line1	2
V3A	port0/line2	3
V4A	port0/line3	4
V1B	port0/line4	5
V2B	port0/line5	6
V3B	port0/line6	7
V4B	port0/line7	8
V1C	port1/line0	9
V2C	port1/line1	10
V3C	port1/line2	11
V4C	port1/line3	12
V1D	port1/line4	13
V2D	port1/line5	14
V3D	port1/line6	15
V4D	port1/line7	16

A4. Formler og beregninger

A4.1 Formler for standardavvik

I denne masteroppgaven er alle usikkerhetene til de enkelte målingene angitt som én verdi av standardavviket s – det vil si at målt verdi (x) $\pm s$ vil med 68% sannsynlighet inneholde det sanne gjennomsnittet \bar{x} . Standardavvik og usikkerhet blir derfor brukt om hverandre, med mindre noe annet er spesifisert.

Formel for beregning av gjennomsnittlig standardavvik

Standardavvikene for de individuelle målingene av halveringstid og tellehastighet ved $t = 0$ (R_0) er automatisk bestemt i OriginLab etter programmets kurvetilpasning. For å finne standardavviket for gjennomsnittsverdien i en måleserie ble ligning (16) brukt. Denne ligningen beregner samlet (eng.: *pooled*) estimat av standardavviket s og er hentet fra *Statistical Power Analysis for the Behavioral Sciences* (Cohen 1988).

Standardavvik for veide mengder

I de vanligste tilfellene blir ikke de individuelle måledataene oppgitt med et spredningsmål. Beregning av standardavvik for gjennomsnittet av veide mengder ble gjort etter formelen for standardavvik fra ligning A-1. Empirisk varians betegnes med s^2 og empirisk standardavvik med s :

$$s^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N - 1} \quad s = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2}{N - 1}} \quad (\text{A-1})$$

der N er antall paralleller. Når \bar{x} skal beregnes, tar man summen av alle x -verdiene og deler med N . Dermed mistes en frihetsgrad og man må dividere med $N - 1$ i ligningen over.

Standardavvik for talletall

I tellestatistikk representerer x et enkelt talletall som antas å være hentet ut av en populasjon der fordelingsfunksjonen er forutsatt av enten Gauss- eller Poisson-fordeling. Siden verdien til enkeltmålingen x er den eneste tilgjengelige informasjonen om den teoretiske fordelingen til populasjonen antas det at gjennomsnittet av fordelingen er lik denne verdien, eller $\bar{x} = x$. Da antas det også at den utvalgsvariansen s^2 er omtrent lik den forventende variansen σ^2 , eller $s^2 \cong \sigma^2$. Samtidig er $\sigma^2 = \bar{x}$ i Gauss- og Poisson-fordeling (Knoll 2000). Fra dette konkluderes det at

$$\sqrt{s^2} \cong \sigma = \sqrt{\bar{x}} \quad (\text{A-2})$$

Standardavviket til et talletall er derfor gitt som kvadratroten av talletallet, $\sqrt{\bar{x}}$ – det vil si at $\sigma = \sqrt{\bar{x}}$. Dette gjelder kun hvis x representerer antall hendelser over en gitt observasjonstid registrert av en detektor. Man kan dermed ikke assosiere standardavviket med kvadratroten av et tall som ikke er et direkte målt antall tellinger (en direkte måling). Knoll (2000) lister opp eksempler på tall som ikke er direkte målinger: tellehastigheter, summer/differanser av tellinger og gjennomsnitt av uavhengige tellinger (indirekte/sammensatte målinger).

I denne oppgaven ble tellingene registrert med ett-minutts telleintervall, i 30 minutter. Disse råtellingene kan derfor oppgis som tellehastighet (cpm), men anses likevel å være direkte målinger. Kvadratroten av talletallet ble derfor brukt til å regne ut standardavviket til hver enkel telling, slik som vist i Figur A4-1.

	A(X)	B(Y)	C(yEr±)
Long Name	1/3telletid+starttid	Tellinger	Usikk.
Units	s	(cpm)	(cpm)
Comments			
F(x)=			sqrt(B)
1	53	2456	49,558
2	113	1440	37,9473
3	173	805	28,3725
4	233	415	20,3715
5	293	258	16,0624
6	353	137	11,7047
7	413	78	8,8318
8	473	59	7,6811
9	533	34	5,831
10	593	29	5,3852
11	653	25	5
12	713	19	4,3589
13	773	17	4,1231
14	833	17	4,1231
15	893	22	4,6904
16	953	14	3,7417
17	1013	21	4,5826
18	1073	18	4,2426
19	1133	20	4,4721
20	1193	16	4
21	1253	21	4,5826
22	1313	13	3,6056
23	1373	6	2,4495
24	1433	20	4,4721
25	1493	19	4,3589
26	1553	18	4,2426
27	1613	23	4,7958
28	1673	12	3,4641
29	1733	25	5
30	1793	19	4,3589

Figur A4-1: Eksempel på hvordan data ble ført inn i regnearket før bearbeidelse. Antall tellinger (kolonne B, satt som y-akse) registrert med ett-minutts telleintervall, i 30 minutter (kolonne A, x-akse). Usikkerheten til hvert telletall er gitt som kvadratroten av telletallet. Dataene presentert i dette eksempelet gjelder for replikat 1 fra serie 1 i Tabell 6-3 (Metode O).

Beskrivelse av fremgangsmåtene for å finne standardavvik i indirekte målinger som innebærer tellinger er gitt under og er hentet fra kapittel 3 i «*Radiation Detection and Measurement*» (Knoll 2000, 86-92). Det er også nevnt hvordan disse ble benyttet i denne oppgaven.

Addering eller subtrahering av tellinger

Hvis $u = x + y$ eller $u = x - y$, gjelder følgende formel for beregning av standardavvik:

$$\sigma_u = \sqrt{\sigma_x^2 + \sigma_y^2} \tag{A-3}$$

Denne beregningsmåten ble benyttet der antall oppnådde tellinger fra strålingskilden måtte korrigeres for tellinger som er forårsaket av bakgrunnsstrålingen, for eksempel under kalibrering av detektorrøret.

Multiplisering eller dividering med en konstant, A

Hvis $u = Ax$ blir

$$\sigma_u = A\sigma_x \quad (\text{A-4})$$

Hvis $v = \frac{x}{B}$, der B er en konstant, blir formelen for standardavviket til v

$$\sigma_v = \frac{\sigma_x}{B} \quad (\text{A-5})$$

Formelen over ble benyttet for å regne ut standardavviket når antall tellinger over 5 minutters telletid ble konvertert til tellinger/minutt (cpm) for videre plotting av kalibreringskurve for detektorrøret.

Gjennomsnittlig verdi av uavhengige målinger

Hvis det antas at det ble gjort N parallelle målinger av samme kilde og over samme tid, blir summen av målingene

$$\Sigma = x_1 + x_2 + x_3 \dots x_N$$

Gjennomsnittet uttrykkes da som

$$\bar{x} = \frac{\Sigma}{N} \quad (\text{A-6})$$

Standardavviket til \bar{x} blir

$$\sigma_{\bar{x}} = \frac{\sigma_x}{\sqrt{N}} \quad (\text{A-7})$$

Denne formelen ble blant annet brukt for å presentere en «gjennomsnittlig» $^{234\text{m}}\text{Pa}$ -desintegrasjonskurve bestående av flere melkinger (se Figur 6-16 og Figur 6-18).

A4.2 Residualer

Residualer ble brukt for å regne ut prosent avvik fra tilpasset kurve på følgende måte:

$$\text{Residual} = \text{observert verdi} - \text{tilpasset verdi} \quad (\text{A-8})$$

$$\text{Avvik fra tilpasset kurve i prosent} = \frac{\text{residual}}{\text{observert verdi}} \times 100 \quad (\text{A-9})$$

A4.3 T-test

Metoder for t-test er hentet fra «*Statistics and Chemometrics for Analytical Chemistry*» (Miller og Miller 2010, 37-56).

Forskjell mellom målt halveringstid og litteraturverdi

Tosidig t-test ble utført for, blant annet, å sjekke om de målte halveringstidene er signifikant forskjellige fra litteraturverdien. Følgende formel ble brukt:

$$\frac{|\bar{x} - \mu|\sqrt{N}}{s_{\bar{x}}} \quad (\text{A-10})$$

der \bar{x} er middelverdien av de målte halveringstidene, μ er litteraturverdien, N er antall paralleller, og $s_{\bar{x}}$ er standardavviket til middelverdien. De kritiske t-verdiene ble hentet fra Excel gjennom funksjonen TINV(0,05; frihetsgrader).

Forskjell mellom to metoder

T-test ble også brukt for å sammenligne de gjennomsnittlige halveringstidene oppnådd gjennom den fjernstyrte og den manuelle øvelsen. Kolonneprepareringsmetoden Metode A ble brukt i begge. Nullhypotesen i dette tilfellet var at begge øvelsestypene resulterer i samme halveringstid, i.e. $H_0: \mu_1 = \mu_2$.

Dataene som ble brukt til å finne et overordnet gjennomsnitt og standardavvik for øvelsene (Tabell A4-1) bestod henholdsvis av alle parallellene fra serie 1-4 i Tabell 6-4 (manuell Metode A) og alle parallellene fra serie 1-6 i Tabell 6-12 (fjernstyrt Metode A).

Tabell A4-1: Overordnet gjennomsnitt og standardavvik for den manuelle øvelsen og den fjernstyrte øvelsen (RoboLab), der halveringstiden for $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ble henholdsvis målt 20 og 28 ganger.

Øvelse	n	\bar{x}	s
Metode A – manuell	28	69,4	1,2
Metode A – RoboLab	20	69,9	1,6

Før t-testen ble utført, ble det sjekket om standardavvikene til de to øvelsestypene er signifikant forskjellige ved å gjøre en tosidig F-test:

$$F = \frac{s_1^2}{s_2^2} \quad (\text{A-11})$$

der superskriptene 1 og 2 er plassert slik at F alltid ≥ 1 .

Standardavvikene var ikke signifikant forskjellige ($F_{\text{obs}} < F_{27, 19}$) og et samlet estimat av s ble beregnet ved følgende formel (Cohen 1988):

$$s = \sqrt{\frac{(n_1 - 1)s_1^2 + (n_2 - 1)s_2^2}{n_1 + n_2 - N}} \quad (\text{A-12})$$

der $N = 2$. Formelen for samlet estimat av s som benyttes her er forskjellig fra formelen oppgitt i ligning (16) fordi gruppene som standardavvikene samles fra er av forskjellig størrelsesorden ($n_1 = 20$ og $n_2 = 28$). Merk at antall paralleller i ligning A-12 (og i A-13 under) betegnes med liten n , mens N representerer antall grupper (parallellene grupperes inn i «manuell»- og «RoboLab»- type forsøk). Dette gjelder kun for de overnevnte ligningene.

Signifikansen i forskjellen mellom \bar{x}_1 og \bar{x}_2 ble da beregnet fra

$$t = \frac{\bar{x}_1 - \bar{x}_2}{s \sqrt{\frac{1}{n_1} + \frac{1}{n_2}}} \quad (\text{A-13})$$

der t har $n_1 + n_2 - 2$ frihetsgrader.

T-verdien som ble beregnet er 1,22 og er mindre enn den kritiske t-verdien ved 46 frihetsgrader og ved 5% signifikansnivå, i.e. 2,01. Nullhypotesen kan dermed ikke forkastes.

A4.4 Grubbs test

Grubbs test ble brukt for å sjekke om de subjektivt ekstreme verdiene er faktiske ekstremverdier. Følgende formel ble brukt:

$$\frac{|x - \bar{x}|}{s_{\bar{x}}} \quad (\text{A-14})$$

der x er den mest ekstreme verdien når det gjelder avvik fra gjennomsnittet, \bar{x} er gjennomsnittet (inkl. ekstremverdien), og $s_{\bar{x}}$ er standardavviket til gjennomsnittet.

Den første beregnede halveringstidverdien i serie 2 i RoboLab-eksperimentene (Tabell 6-12) ble funnet å være en ekstremverdi fordi den resulterende Grubbs-testverdien 2,31 er større enn tabellverdien 1,71 (4 frihetsgrader ved 5% signifikansnivå, se Tabell A4-2 under).

Tabell A4-2: Grubbs test for ekstremverdier (Boddy og Smith 2009, 219).

Frihetsgrader	Signifikansnivå 5% (0,05)
2	1,15
3	1,48
4	1,71
5	1,89
6	2,02
7	2,13
8	2,21

A5. Beregninger for UAc

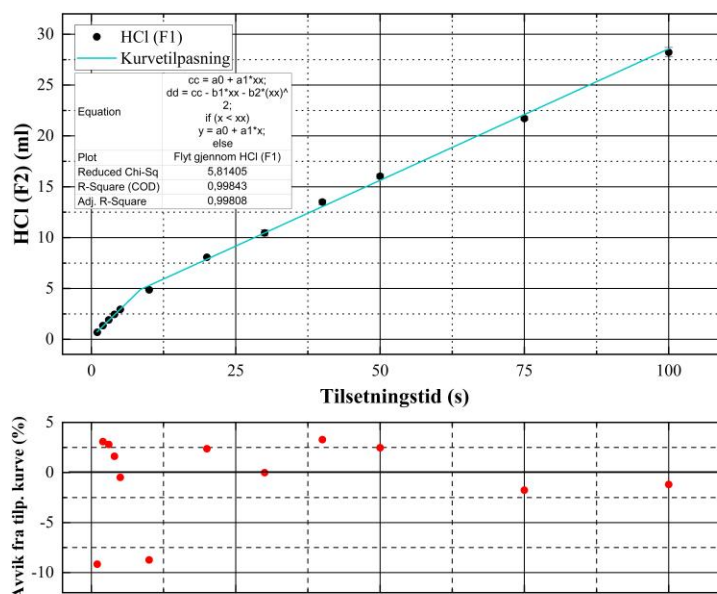
Ligning (2) ble løst for m for å bestemme mengden (g) UAc som må veies ut for å lage en løsning som følger unntaksgrensene for naturlig uran i et laboratorium av Type C:

$$A = \lambda N_{U-238} = \lambda \times N_A \times \frac{m(UAc)}{M(UAc)} \times \text{forekomst } ^{238}\text{U} (\%) \quad (\text{A-15})$$

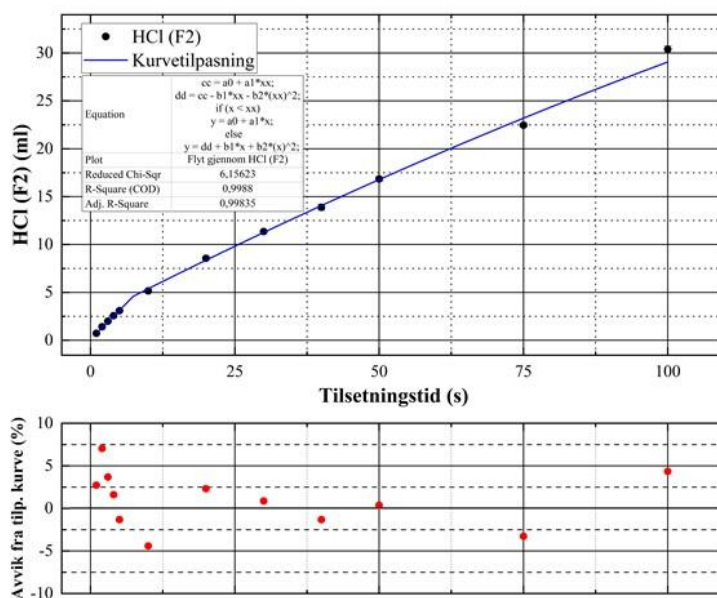
Molarmasse (UAc)	424,146 g/mol	
ln(2)	0,693	
Halveringstid ^{238}U	1,40996E+17 sec	
Forekomst ^{238}U	99,3 %	
Desintegrasjonskonstant λ	4,916E-18 s⁻¹mol⁻¹	ln(2)/T _{1/2, U-238}
Avogadros tall (N _A)	6,022E+23 mol⁻¹	
N _{U-238}	2,045E+21 atomer	N _A · n _{UAc}
Løsningsvolum V _{løsning}	1000 ml	

Utveid UAc (m)	<u>14,4</u> g	
Aktivitet A	101 kBq	N _{U-238} · λ
Aktivitet A _{ab.corr} (forekomst-korr.)	<u>100</u> kBq	A · (forekomst/100)
Aktivitetskonsentrasjon	<u>100</u> Bg/g	A _{ab.corr} /V _{løsning}

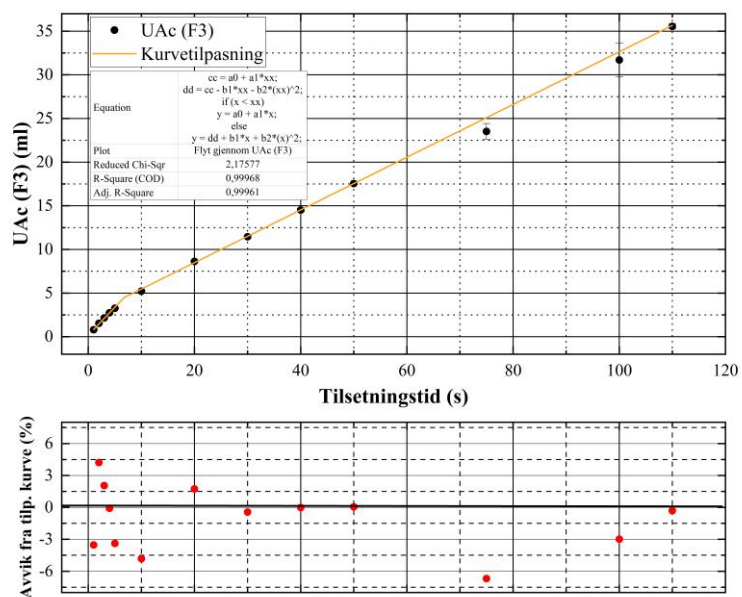
A6. Kalibreringskurver for mengde tilsatt løsning til kolonne



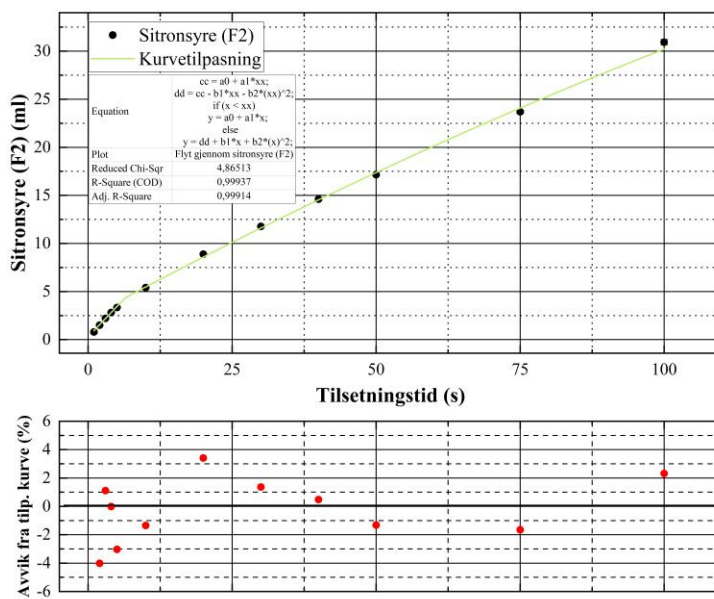
Figur A6-1: Kalibreringskurve for mengde HCl tilsatt til kolonnen som funksjon av tilsetningstid. Væsken trekkes til (og gjennom) kolonnen gjennom vakuum fra Flaske 1 (F1).



Figur A6-2: Kalibreringskurve for mengde saltsyre tilsatt til kolonnen som funksjon av tilsetningstid. Væsken trekkes til (og gjennom) kolonnen gjennom vakuum fra Flaske 2 (F2).



Figur A6-3: Kalibreringskurve for mengde UAc tilsatt til kolonnen som funksjon av tilsetningstid. Væsken trekkes til (og gjennom) kolonnen gjennom vakuüm fra Flaske 3 (F3).



Figur A6-4: Kalibreringskurve for mengde sitronsyre tilsatt til kolonnen som funksjon av tilsetningstid. Væsken trekkes til (og gjennom) kolonnen gjennom vakuüm fra Flaske 2 (F2).

A7. Tetthetsmålinger

Tabell A7-1: De gravimetrisk målte tetthetene for løsningene som blir anvendt i eksperimentet: 1 ml ble veid ut 10 ganger for hver løsning. Usikkerheten til pipetten og den digitale vekten ble ikke tatt hensyn til da dette ikke er av betydning for formålet.

	Tetthet (g/ml)									
Vann (T2)	1,01	1,00	1,00	1,00	1,01	1,01	1,00	1,00	0,99	1,00
Saltsyre, 1M	1,02	1,02	1,02	1,02	1,02	1,01	1,02	1,03	1,01	1,02
Sitronsyre, 10%	1,04	1,04	1,04	1,05	1,04	1,05	1,04	1,05	1,04	1,05
Oksalsyre, 0.5M	1,03	1,03	1,03	1,04	1,03	1,04	1,03	1,04	1,04	1,03
Uranylacetat (løsning)	1,04	1,04	1,03	1,05	1,04	1,05	1,04	1,04	1,04	1,05

A8. Måling av mengde eluert prøve i RoboLab-oppsettet

Mengde væske som blir eluert ut fra kolonnen til prøvekoppen i det siste steget der brukeren skal melke ut protactinium (og deretter sende prøvekoppen til detektoren) ble målt. Til dette formålet ble vann brukt. Kolonnen ble fylt gjennom flytmønsteret til sitronsyre, siden dette er løsningen som normalt brukes for å eluere protactinium. Kolonnens innhold ble så tømt ut i koppen, og veid på vekten i avtrekkskapet. Vekten til den tomme prøvekoppen (22,52 g) ble trukket fra den totale massen. Målingene ble gjentatt 80 ganger, og standardinnstillingene i programmet ble brukt (5 sekunders tilsetning av væske til inngroing, 7 sekunders tømning til prøvekoppen) i alle tilfellene.

Etter 40 målinger ble vakuumpumpen skrudd av, vakuumflaskene tømt, og programmet omstartet. Dagen etter ble systemet skrudd på igjen, og 40 nye utveiinger ble foretatt. Registrerte mengder, samt gjennomsnittet av disse, er oppgitt i Tabell A8-1 under. Standardavviket ble beregnet etter formel A1-1, og usikkerheten til vekten ble ikke tatt hensyn til da denne ikke vil gi et betydelig bidrag til usikkerheten til den veide mengden væske.

Tabell A8-1: Mengde væske (g) eluert til prøvekoppen.

Mengde eluert (g)	1,81	1,83	1,81	1,81	1,87	1,83	1,83	1,80	$\bar{x} = 1,84 \pm 0,02$
	1,86	1,85	1,86	1,86	1,85	1,80	1,81	1,87	
	1,81	1,83	1,82	1,84	1,81	1,88	1,86	1,84	
	1,84	1,87	1,88	1,87	1,83	1,87	1,84	1,82	
	1,83	1,84	1,84	1,83	1,86	1,83	1,82	1,82	
Mengde eluert (g) etter omstart	1,83	1,82	1,81	1,89	1,83	1,82	1,83	1,84	$\bar{x} = 1,84 \pm 0,02$
	1,85	1,88	1,82	1,88	1,84	1,88	1,88	1,85	
	1,84	1,85	1,84	1,82	1,84	1,88	1,86	1,88	
	1,83	1,83	1,82	1,89	1,83	1,83	1,85	1,81	
	1,86	1,82	1,83	1,85	1,82	1,83	1,84	1,89	

A9. Distribusjonskoeffisientene til U og Th

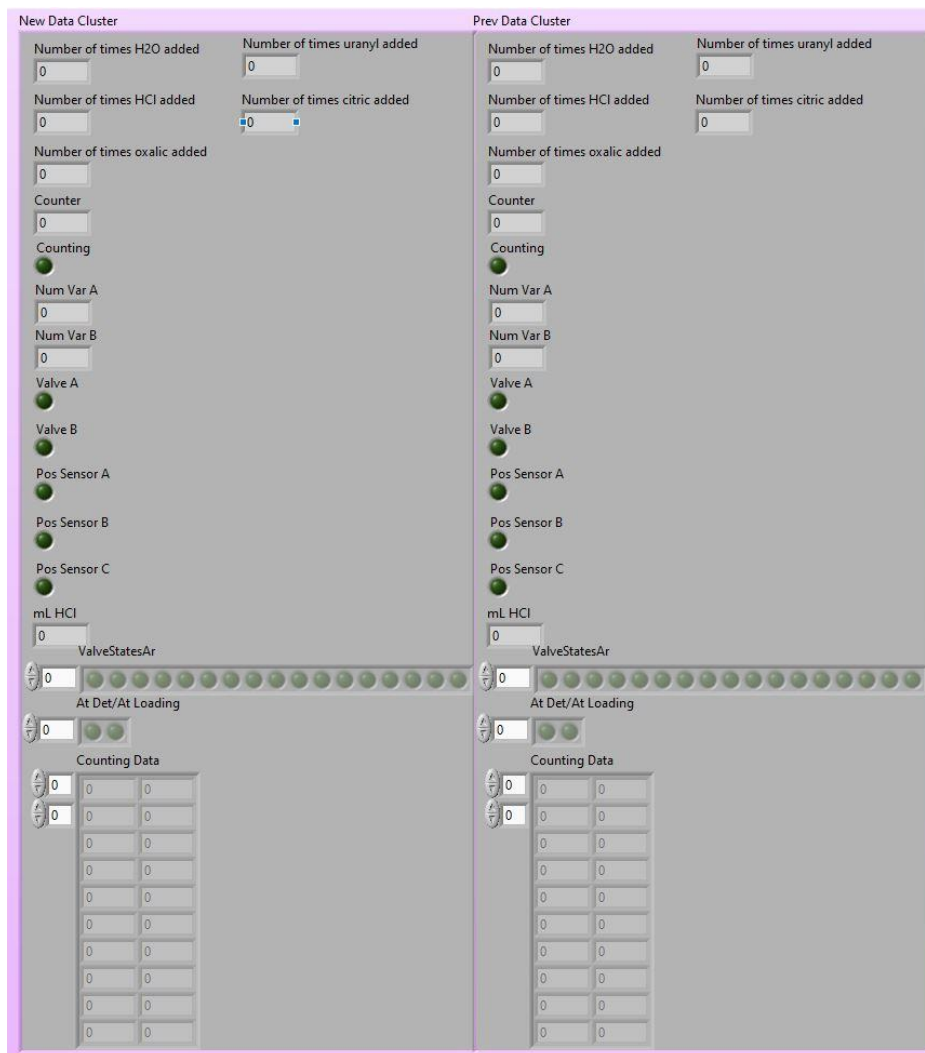
Tabell A9-1: Distribusjonskoeffisientene (K_d) for U og Th mellom en typisk kationbytter og syremedia. I 1M HCl er distribusjonskoeffisientene for U og Th $19,2$ og $>10^3$, henholdsvis. (Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry 1989, 219).

Table 125
DISTRIBUTION COEFFICIENTS OF U, Th, AND OTHER METAL IONS BETWEEN BIO-RAD® AG50W-X8 AND MINERAL ACID MEDIA¹⁰¹⁶

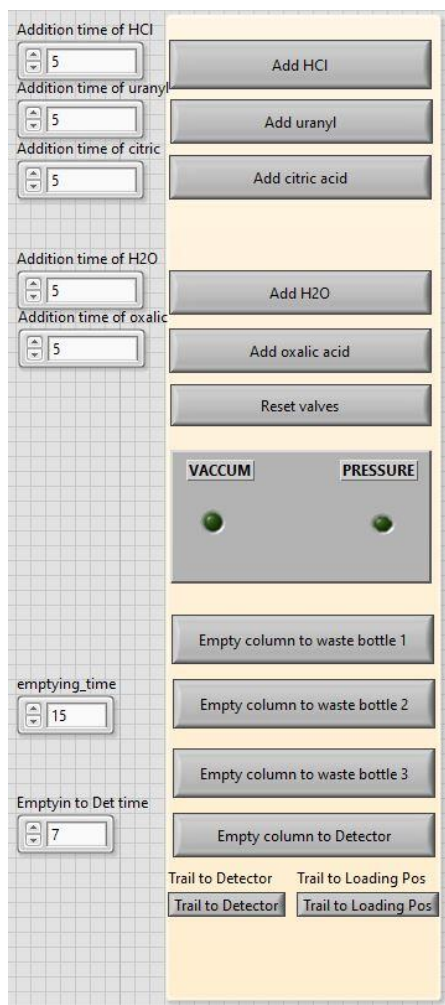
Metal ion	Normality of acid														
	0.1			0.5			1.0			2.0			4.0		
	HCl	HNO ₃	H ₂ SO ₄	HCl	HNO ₃	H ₂ SO ₄	HCl	HNO ₃	H ₂ SO ₄	HCl	HNO ₃	H ₂ SO ₄	HCl	HNO ₃	H ₂ SO ₄
UO ₂ (II)	5400	659	596	102	69	29.2	19.2	24.4	9.6	7.3	10.7	3.2	3.3	6.6	1.8
Th(IV)	>10 ⁵	>10 ⁴	>10 ⁴	~10 ⁴	>10 ⁴	263	>10 ³	~10 ³	52	239	123	9.0	67	20.8	1.8
Ca(II)	3200	>10 ³	*	151	113	*	42.3	35.3	*	12.2	9.7	*	5.0	1.8	*
Mg(II)	1720	794	1300	88	71	124	21	23	41	6.2	9.1	13.0	3.5	4.1	3.4
Fe(III)	9000	>10 ⁴	>10 ⁴	225	362	255	35.4	74	58	5.2	14.3	13.5	2.0	3.1	1.8
Al(III)	8200	>10 ⁴	>10 ⁴	318	392	540	61	79	126	12.5	16.5	27.9	2.8	5.4	4.7
Co(II)	1650	1260	1170	72	91	126	21.3	28.8	43	6.7	10.1	14.2	3.0	4.7	5.4
Ni(II)	1600	1140	1390	70	91	140	21.8	28.1	46	7.2	10.3	16.5	3.1	7.3	2.8
Zn(II)	1850	1020	1570	64	83	135	16.0	25.2	43.2	3.7	7.5	12.2	1.6	3.6	4.0
Cd(II)	510	1500	1420	6.5	91	144	1.5	32.8	45.6	1.0	10.8	14.8	—	3.4	4.3
Cu(II)	1510	1080	1310	65	84	128	17.5	26.8	41.5	4.3	8.6	13.2	1.8	3.1	3.7
Mn(II)	2230	1240	1590	84	89	165	20.2	28.4	59	6.0	11.4	17.4	2.5	3.0	5.5
Ce(III)	>10 ⁵	>10 ⁴	>10 ⁴	>10 ³	>10 ³	10 ³	265	246	318	48	44.2	66	10.5	8.2	11.8
Cr(III)	1130	5100	198	73	418	126	26.7	112	55	7.9	27.8	18.7	2.7	10.0	0.2
Bi(III)	*	893	>10 ⁴	<1	79	>10 ³	1.0	25.0	235	1.0	7.9	32.3	1.0	3.0	6.4
Pb(II)	—	>10 ⁴	*	—	183	*	—	35.6	*	—	9.8	*	—	4.5	*

* Precipitation.

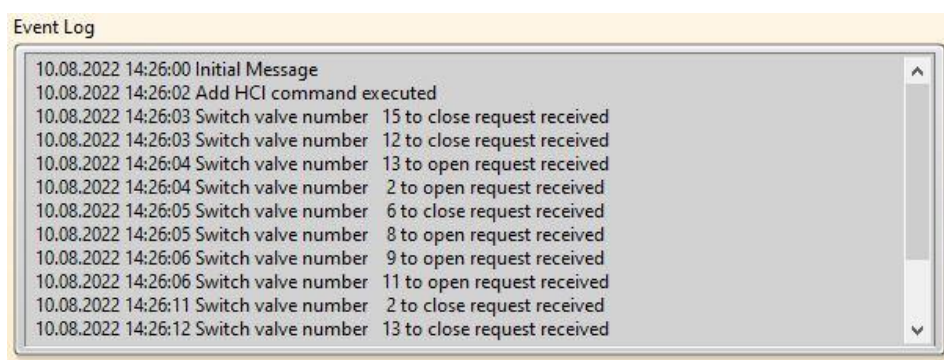
A10. Utsnitt fra serverprogrammets UI



Figur A10-1: Dataclusteret som inneholder alle verdier som skal oppdateres. «New Data Cluster» inneholder de nyeste verdiene, og skal brukes av Remote Client Update-modulen for å spore hvilke verdier som har blitt oppdatert eller ikke, slik det ble beskrevet på i kapittel 4.2.



Figur A10-2: Styringsknappene for tilsetning av løsninger til systemet, samt for å tømme kolonnens innhold til avfallsflaskene/prøvekoppen. «Train to Detector» og «Trail to Loading Pos» brukes for å flytte prøvekoppen til og fra detektoren. Tilsetningstidene velges til venstre for knappene.



Figur A10-3: Et loggvindu på programmets frontpanel der alle brukerhendelser logges. I dette konkrete eksempelet ble saltsyre tilsatt til systemet i 5 sekunder. Hvilke ventiler som ble åpnet og stengt, og når, kan leses herfra.

Appendiks B – Konferanseartikkel (postprint)

(Den vedlagte artikkelen inneholder resultater som kan avvike fra resultatene som er oppgitt i hovedteksten i denne masteroppgaven. Årsaken til det er at artikkelen ble sendt til vurdering mens det eksperimentelle arbeidet fortsatt pågikk. Mye rådata var samlet, men enda ikke prosessert.)

RoboLab – Providing Remote Access to a Physical Radiochemistry Laboratory for Teaching and Training

Olga N. Salina¹, Terje Grønås¹, Vivien Pottgießer³, Mojmír Němec², Jan-Willem Vahlbruch³,
Clemens Walther³, Jon Petter Omtvedt¹

¹Department of Chemistry, University of Oslo, P.O. Box 1033 – Blindern, NO-0315 Oslo,
Norway

²Department of Nuclear Chemistry, Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering,
Czech Technical University in Prague, Brehova 7, 115 19 Prague, Czech Republic

³Institute of Radioecology and Radiation Protection, Leibniz Universität Hannover,
Herrenhäuser Straße 2, 30419, Hannover, Germany

Abstract

RoboLab enables students to perform real radiochemistry experiments without being physically present in a laboratory. Remotely controlled experiments are accessed through a web interface to a physical laboratory. The laboratory equipment is interfaced to a computer that both controls the equipment and provides feedback to the web user. A generic software template, using a cloud service, was developed to facilitate easy communication between the web browser and the control system. The sixth and most recent RoboLab, aiming at the production and measurement of $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ($T_{1/2} = 1.16$ min), has been successfully developed and implemented using this template.

Keywords

RoboLab, $^{234\text{m}}\text{Pa}$ nuclide generator, remotely controlled experiment, radiochemistry teaching.

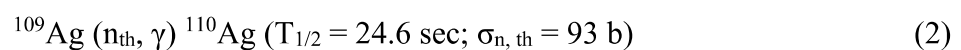
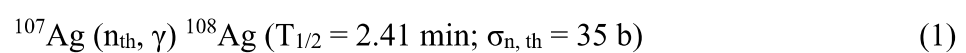
Introduction

While simulations and remote control can never substitute hands-on experiments and experience, remote control experiments provide added flexibility and options in teaching and training radiochemists. Since RoboLab is based on remotely controlled equipment, the experiments can be done without the usual safety training required to enter facilities classified for radioactive work. Furthermore, institutions without suitable laboratories can perform experiments they otherwise would not be able to conduct.

42 RoboLab remotely controlled experiments are accessed through a web browser interface to a
43 physical laboratory hosting the experiment. The RoboLab concept was originally developed as
44 a pilot project at the University of Oslo (UiO) [1] before it was further expanded as a part of
45 the EU-funded project series CINCH (CINCH-II, MEET-CINCH, and A-CINCH) [2]. The
46 software has gone through several generations, exploiting the functionalities of the rapidly
47 evolving IT industry and how society adapts to digital technology. Right from the start, the
48 system has been based on the LabView graphical programming language developed by National
49 Instruments Corp. (NI) [3]. Although it is a general-purpose programming language, LabView
50 is frequently used for instrument control and monitoring, greatly helped by the ease with which
51 the system is connecting to NI hardware and firmware to interface experimental hardware.

52 NI's LabView development system provides the possibility to quickly and easily develop web-
53 based “virtual instruments” connected to real hardware. For remote monitoring and/or control
54 several options exist. For RoboLab, the cloud-based SystemLink platform was selected to
55 establish communication between the users and the server. This way, there are no restrictions
56 on where a RoboLab user is located, provided reliable internet is available. Furthermore,
57 SystemLink allows easy interfacing between a web application and the laboratory equipment
58 without any firewall access issues. Firewalls gradually made the previous versions of RoboLab
59 practically useless as institutions and software providers upgraded their security to withstand
60 increasing threats.

61 The very first RoboLab system that was put to use was developed at the University of Oslo. It
62 allows students to perform neutron activation of silver by means of an isotopic neutron source
63 and measure the resulting gamma emissions. Through this, the students get an opportunity to
64 learn the basic principles of neutron activation analysis by performing an irradiation experiment
65 from their local computer. A 22 g silver disk, mounted on a holder that slides on a transportation
66 rail, is transferred between n-irradiation and detection sites by applying suction from the
67 destination end. Neutron activation of the stable silver isotopes with thermal neutrons
68 (thermalised with paraffin) yields two short-lived silver isotopes according to the following
69 nuclear reactions:



70 When the pre-set irradiation time is reached, the silver disk is automatically returned to the
71 detector end. The detector is a sodium iodide γ -detector connected to a single-channel analyser
72 that measures gammas in the 600-700 keV energy range from the silver isotopes produced in
73 Eq. (1) and (2) (multichannel spectra are not measured). The pre-set energy range covers both
74 633 keV from ^{108}Ag and 658 keV from ^{110}Ag . By measuring the emission rate as a function of
75 time in suitable (user-selected) time intervals the resulting decay curve of the two isotopes can
76 be deconvoluted. The exercise provides insight into nuclear reactions, neutron activation,
77 disintegration properties, measurement of γ rays, and more. The web application used by the
78 student can be adapted to the desired learning outcome without changing the RoboLab setup in
79 the physical lab.

80 Another remotely controlled exercise developed at UiO deals with the absorption and detection
81 of γ radiation. Three pneumatically operated rails with various shielding materials are placed
82 between a ^{137}Cs source and a γ -detector. Thus, γ absorption can be measured as a function of
83 material type and thickness (mm). The system is prepared for expansion to use three different
84 γ -ray sources (e.g. ^{57}Co , ^{137}Cs , and ^{60}Co), but this will require measurement of the complete γ -
85 ray spectrum by a multi-channel analyser and not simply the count rate in a hardware selected
86 energy region as done by the current setup.

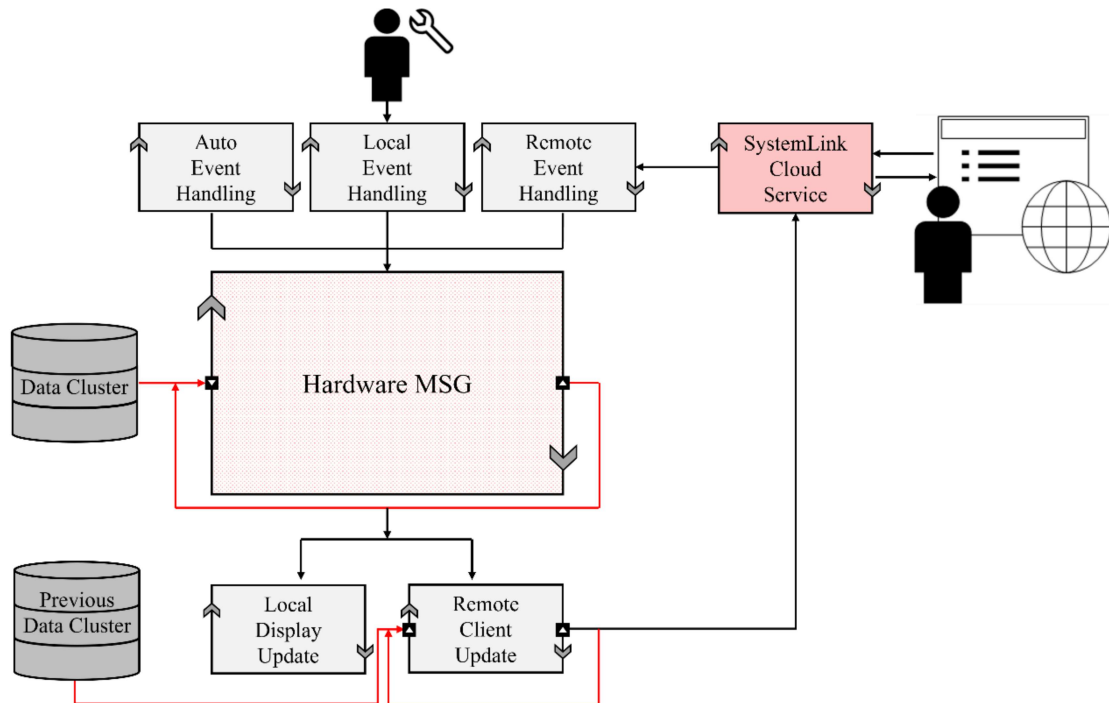
87 Three additional RoboLab setups were developed and implemented at the University of
88 Hannover. These exercises offer experiments with high-resolution γ -spectroscopy of
89 environmental samples, measurement of auto-deposition of for instance ^{99}Tc on different metals
90 like iron and copper, and an ion-exchange column with on-line detection.

91 Below is the newest version of the RoboLab software briefly described together with a
92 description of the construction of a sixth RoboLab system, physically situated at the University
93 of Oslo. The new system provides the remote user the opportunity to make a radionuclide
94 generator by pumping selectable solvents through a cation exchange column. Once prepared,
95 the column can be used to elute 1.2-minute $^{234\text{m}}\text{Pa}$ and measure its half-life.

96 **The New RoboLab Software Template**

97 The program structure is based on the compartmentalization of tasks. LabView has built-in
98 parallel processing capabilities that make such compartmentalization relatively easy to
99 implement. Each task is written as a standalone module that runs completely on its own and

100 deals only with a certain aspect of the overall system. The modules communicate with the others
101 through messages and system variables. Fig. 1 shows the general logic behind the server
102 application template.



103

104 **Fig. 1** Schematic diagram of server system flow. The connection to the firmware is not
105 illustrated. The person icon with a wrench illustrates the user overseeing the experiment (if
106 needed) and the person icon with the globe is the remote user.

107 The core of the application is the hardware message module. This module will control the
108 laboratory equipment and report status and results. It acts on messages issued by other modules
109 and does not interact with the local or remote user directly. Such interactions are exclusively
110 handled by the local and remote event handling modules. Events for the latter module are
111 received through the cloud service. These two modules will translate user interactions into
112 messages. Hence, a command e.g. to start counting will be handled identically regardless of if
113 it is given locally (from the keyboard of the server computer) or received remotely (through the
114 web client who sends messages via the cloud service). In both cases, the result of the command
115 will be an identical message sent to the hardware module to start counting. A third module is
116 also able to send commands to the hardware module and is constructed as an automation
117 module. It has a stack of commands individually tagged with a time stamp. The command will
118 be sent when the time stamp matches the system clock. In this way, the hardware module will
119 only need to act on the command (e.g. start counting) and does not need to take into

120 consideration the origin of the command. This keeps the system simple, modularized, and easy
121 to maintain.

122 Feedback to the user is also compartmentalized. The hardware module updates a "cluster"
123 variable (a term in LabView used to describe a variable that can hold different kinds of data).
124 Thus, the hardware module never directly updates the data or system status on either the local
125 computer screen or the remote web console. Instead, these are updated by their assigned
126 modules. Again, this ensures simplicity and easy maintenance of the system – there is only one
127 place in the program where data and status are sent to the cloud/web console, and there is only
128 one place where the local screen is updated.

129 Apart from compartmentalization, this solution makes it easy to adopt the updating frequency
130 to suit the bandwidth of the client communication. The local computer is typically updated with
131 a 20 Hz frequency, regardless of if the values have changed or not. Such an update frequency
132 cannot be handled by the cloud service, which has a rather slow bandwidth. Therefore, only the
133 recently changed values are sent to the cloud service and only with a frequency of between 0.5-
134 2 Hz.

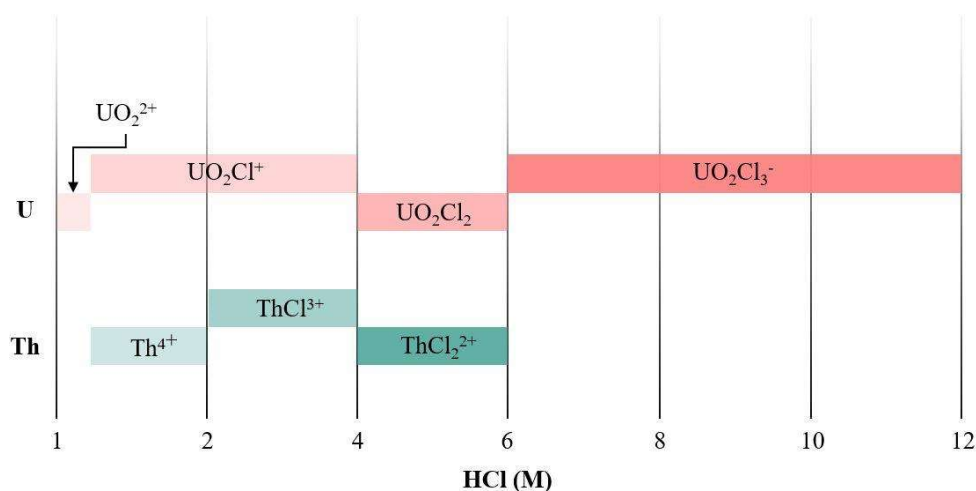
135 **The New Radionuclide Generator RoboLab**

136 As briefly described in the introduction, the purpose of the new RoboLab exercise is to make a
137 $^{234\text{m}}\text{Pa}$ radionuclide generator. Eluted 1.2-minute $^{234\text{m}}\text{Pa}$ can be measured with a Geiger-Müller
138 detector. If it suits the learning goals of a particular usage, short-time half-life measurement and
139 determination can also be performed. Essentially, the RoboLab system can cater for a range of
140 different student exercises, adapted both to the learning level and different issues related to
141 making and using radionuclide generators.

142 **Chemistry of the radionuclide generator**

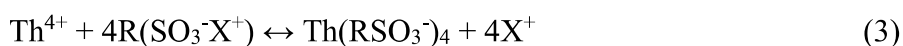
143 The $^{234\text{m}}\text{Pa}$ radionuclide is obtained from a generator system made from a uranyl solution. ^{234}Th
144 ($T_{1/2} = 24.1\text{-day}$), produced by the decay of ^{238}U , is loaded on a cation exchange column.
145 Ideally, the uranyl solution should be at least 240 days old to allow maximum in-growth of
146 ^{234}Th . ^{234}Th decays into $^{234\text{m}}\text{Pa}$ and equilibrium is reached in about 12 minutes. Thus, once the
147 generator is made it can be used repeatedly for e.g. half-life measurements of $^{234\text{m}}\text{Pa}$.

148 Uranyl acetate (or any other suitable uranyl salt), where ^{234}Th is in radioactive equilibrium, is
 149 dissolved in 1 M HCl and flushed through a cation exchange column. The dominating species
 150 of uranium and thorium in hydrochloric media at different concentrations are given in Fig. 2.

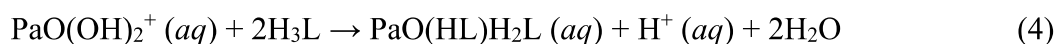


151
 152 **Fig. 2** Dominating species of U and Th in hydrochloric media at different concentrations. The
 153 figure is based on information provided by Korkisch [4, pp. 4-5].

154 The hexavalent uranium is nearly not absorbed onto a strong cation exchanger from a 1 M HCl
 155 solution and will pass through the column undisturbed (distribution coefficient D of UO_2
 156 between a typical cation exchanger and 1 M HCl is 19.2 [4, p. 219]). Thorium, present as Th^{4+} ,
 157 has a distribution coefficient of $>10^3$ and will therefore be strongly retained on the sulfonated
 158 cation exchange column:



159
 160 where X^+ is the counter ion from the ion exchanger. Once thorium is attached to the column,
 161 the solvent is changed to citric acid. Citric acid will form a neutral complex with protactinium
 162 and is therefore used as the elution agent:



163
 164 **Hardware for Remote Control**

165 For pumping liquids through the system either vacuum or pressure is applied. All that is needed
 166 are remotely controlled valves to select the feed bottle and path through the experimental setup.
 167 3/2-way solenoid valves from Bürkert (type 6606) were selected for this purpose [5]. A simple
 168 diaphragm pump able to produce a vacuum of around 100 mBar is used. The cation exchange

169 column is Bond Elut Plexa PCX from Agilent [6]. The transportation rail for collecting eluted
170 samples in a cup and measuring them with a Geiger-Müller tube is a LECP2 rail with a stepping
171 motor from SMC Corporation [7]. Driver electronics for switching the valves by a TTL control
172 signal were made by an in-house electronics workshop. All interconnections are made with
173 Upchurch 1/8" – 1/16" (ID) perfluoroalkoxy alkane (PFA) tubes and connectors. Feed flasks
174 contain uranyl acetate (100 Bq/g) in 1 M HCl solution, 1 M HCl solution, 10% citric acid
175 solution, 0.5 M oxalic acid solution, and water. The oxalic acid can be used to remove thorium
176 from the column and thus reset the system for a new user [8]. For flushing the solution from the
177 column into the sample collection cup, pressurized air is used. A suitable pressure is selected
178 by a manual pressure regulator.

179 **Software**

180 Most of the electronic components mentioned above are connected to programmable inputs or
181 outputs of a digital I/O device (USB-6351 made by NI [9]). The input/output ports and counters
182 of this device are controlled by the previously mentioned hardware control module.

183 The flow path of the solvents is directed by the user input and controlled by the mechanism of
184 the 3/2-way solenoid valves. When an action-specific configuration of open valves is selected,
185 the vacuum in the waste flasks forces a solution from a selected supply bottle to be sucked up
186 and typically flow into or through the column. The solution in the column can be emptied into
187 a waste container (by suction) or a sample dish (by pressure). This dish can be moved between
188 positions for filling, detection, and emptying.

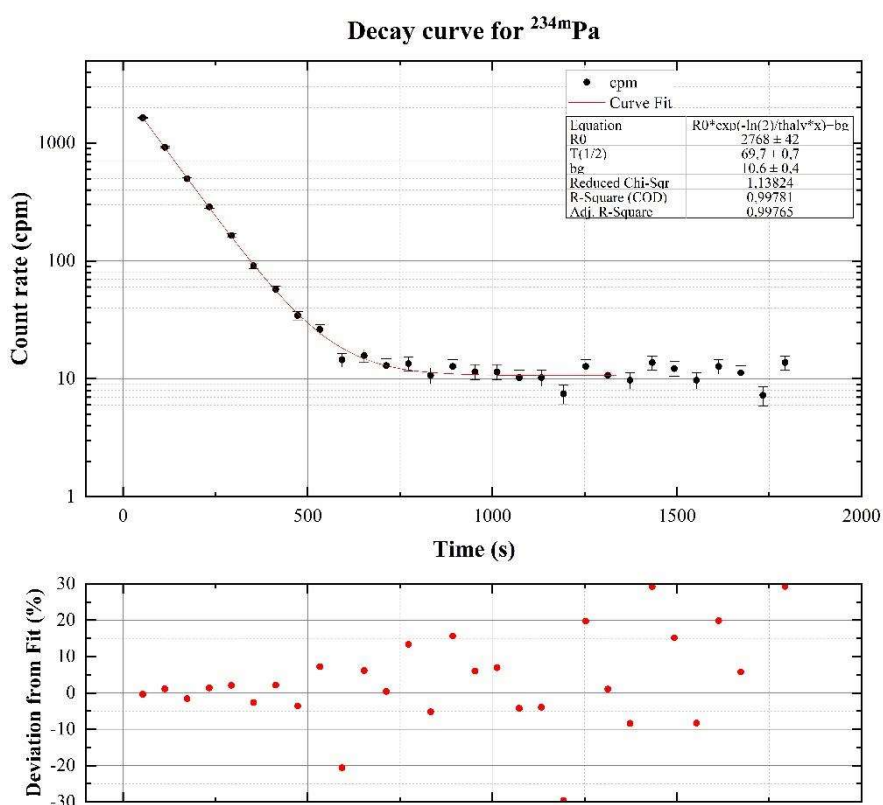
189 A total of three waste bottles are installed to separate non-active, short-lived, and long-lived
190 radioactive waste produced during the experiment. The vacuum pump ensures that the vacuum
191 is maintained in the waste containers.

192 The amount of solution added to or pumped through the column is determined by a preset time
193 (s). Tables of volume as a function of valve open times have been made. If needed, a balance
194 can be placed under the waste bottles, thus allowing direct reading of the amount of liquid
195 pumped through the system. This must be adapted to the targeted learning outcome and
196 experience of the students. Standard procedures (e.g. open times) have been worked out for the
197 different tasks. The user is urged to follow the recommended operational procedure to achieve
198 good results.

199 **Results**

200 A general LabVIEW-based template that can be used for updating old and constructing new
 201 RoboLabs has been created and applied to develop the nuclide-generator exercise. A test-driven
 202 approach to both hardware and software development has been used to ensure a reliable end-
 203 product and that every part of the physical setup and the code is performing its designated
 204 function. The physical environment has been extensively tested to identify and eliminate any
 205 risk of operational accidents such as leakage and overflow. An operational procedure has been
 206 suggested based on the results.

207 Applying the suggested procedure, the half-life of ^{234m}Pa – determined from the fitting of a total
 208 of 15 decay curve measurements (protactinium was milked 5 times per column) – was found to
 209 be 1.16(1) minutes (Fig. 3).

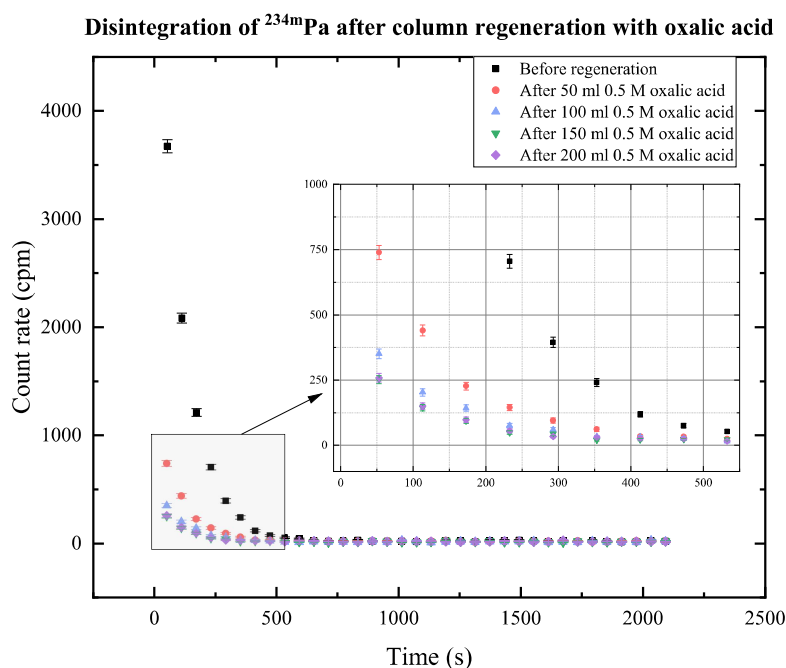


210
 211 **Fig. 3** Decay curve of ^{234m}Pa recorded after column preparation and loading according to the
 212 proposed procedure. Deviation (%) of count rates from the fitted curve is given.

213 The uncertainties of the fitted parameters are calculated through Levenberg-Marquardt method
 214 for non-linear curve fitting in OriginLab [10]. This result complies with the half-life value of

215 1.159(16) min reported by The National Nuclear Data Center [11]. The average experimental
216 standard deviations of parallel measurements from the same column and different columns are
217 1.1% and 1.1%, respectively

218 Regeneration of the cation exchange resin by elution of tetravalent thorium was done using 0.5
219 M oxalic acid as a complexing agent. As briefly mentioned above, the purpose of this step is to
220 “reset” the column to allow the next remote user to perform the experiment (from the beginning)
221 by reusing the exact same column. The course of regeneration was observed by recording
222 disintegration curves of ^{234m}Pa as a function of thorium elution, and the count rate of
223 protactinium was reduced by 93% after 200 mL 0.5 M oxalic acid was applied (Fig. 4).



224

225 *Fig. 4 Disintegration of ^{234m}Pa as a function of volumes of oxalic acid applied for*
226 *regeneration of cation exchange resin.*

227 Reuse of the previously regenerated column has shown that this 93% reduction is sufficient to
228 not cause any disturbances in future half-life determinations. However, the retention factor of
229 thorium in subsequent column loading is somewhat reduced and it is therefore recommended
230 to change the column, if possible.

231 **Proposed procedure**

232 35 ml of pre-made uranyl acetate is added to a cation exchange column previously conditioned
233 with 2 mL of 1 M HCl and washed with 2 mL of water so that ^{234}Th will be fixed on the column.
234 The uranyl is subsequently eluted and removed with 10 mL of 1 M HCl. The column is washed
235 with 10 mL of 10% citric acid to elute the chloride ions. After ingrowth, $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (along with
236 ^{234}Pa which is not considered relevant for this experiment) is eluted with 3 mL of 10% citric
237 acid. The eluted protactinium, collected in an open dish, is moved to the detector and measured.
238 A new elution is possible after about 12 minutes. If the same column is to be loaded again, 200
239 mL of 0.5 M oxalic acid is sufficient for the regeneration of the column, as previously explained.

240 **Discussion and conclusion**

241 The learning outcome rests mostly on the pedagogical approach of how a RoboLab setup is
242 used. The system itself can only be considered as a tool for retrieving data. Therefore, to cast
243 light upon important aspects of nuclear chemistry, one of the main goals has been to develop
244 an engaging and comprehensive plan for the exercises. This is achieved by creating detailed
245 operational procedures, implementing e-learning modules to guide students through data
246 analysis, and investing additional effort into creating an interactive user interface.

247 According to evaluations and feedback from students, the remotely operated exercises have
248 been great tools for teaching NRC¹ at the University of Oslo. During the restricted access to
249 campus, RoboLab demonstrated the flexibility provided by the addition of digital methods to
250 the teaching toolbox and proved to be a viable alternative to physical hands-on training.
251 However, RoboLab is not to be regarded as a substitution for such training.

252 Development and implementation of the newest RoboLab tool, a $^{234\text{m}}\text{Pa}$ nuclide generator, is
253 considered successfully finalised – software and hardware modules have been joined into a
254 robust, leak-proof framework. The exercise is ready to be applied in NRC courses for user
255 acceptance testing and will soon be released as a web application for general use.

256 **Acknowledgments**

¹ Nuclear and Radiochemistry

257 The author acknowledges the support received through funding from the EURATOM Research
258 and Training Programme under grant agreement N° 94530 and from the Norwegian Research
259 Council under grant agreement N° 313053.

260 **References**

- [1] J. P. Omtvedt, L. Stavsetra og F. O. K. Schultz, «Kan laboratorieøvelser gis som fjernundervisning? Erfaringer fra utvikling av det fjernstyrte laboratoriumet Robolab",» *Ringer i vann. Lenge leve fleksibel læring ved Universitetet i Oslo*, pp. 49-58, 2009.
- [2] A-CINCH Consortium, "Augmented Cooperation in Education and Training in Nuclear and Radiochemistry," [Online]. Available: <https://www.cinch-project.eu/>. [Accessed 10 June 2022].
- [3] National Instruments Corp., "LabVIEW programming software suite," [Online]. Available: <https://www.ni.com/en-no/shop/labview.html>. [Accessed 18 Jun 2022].
- [4] J. Korkisch, Handbook of ion exchange resins: Their application to inorganic analytical chemistry, vol. 2, Boca Raton: CRC Press, 1989.
- [5] Bürkert Fluid Control Systems, "Type 6606 - 2/2 or 3/2 way Rocker-Solenoid Valve with separating diaphragm," [Online]. Available: <https://www.burkert.co.uk/en/type/6606>. [Accessed 11 September 2022].
- [6] Agilent Technologies, Inc., "Bond Elut Plexa PCX," [Online]. Available: <https://www.agilent.com/en/product/sample-preparation/solid-phase-extraction-spe/bond-elut-plexa-pcx>. [Accessed 18 Jun 2022].
- [7] SMC Corporation, "Programless Controller for LEM - LECP2," [Online]. Available: <https://www.smc.eu/en-eu/products/programless-controller-for-lem-lecp2~134071~cfg>. [Accessed 11 September 2022].
- [8] D. Dyrssen, «The Preparation of Carrier-free ²³⁴Th (UX1) by Ion Exchange,» *Svensk Kemisk Tidsskrift*, pp. 153-164, 1950.
- [9] National Instruments Corp., "USB-6151," [Online]. Available: <https://www.ni.com/en-no/support/model.usb-6351.html>. [Accessed 11 September 2022].

[10] OriginLab Corporation, «Origin and OriginPro,» [Internett]. Available:
<https://www.originlab.com/index.aspx?go=Products/Origin>. [Funnet juni 13 2022].

[11] E. Browne og J. K. Tuli, «Nuclear Data Sheets for A = 234,» i *Nuclear Data Sheets*, vol. 108, 2007, p. 681.

261

262