

USPOREDBA METODA ZA ODREĐIVANJE UKUPNE BETA-RADIOAKTIVNOSTI U KISNICI, CISTERNSKOJ I RIJEČNOJ VODI

M. PICER

Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada JAZU, Zagreb

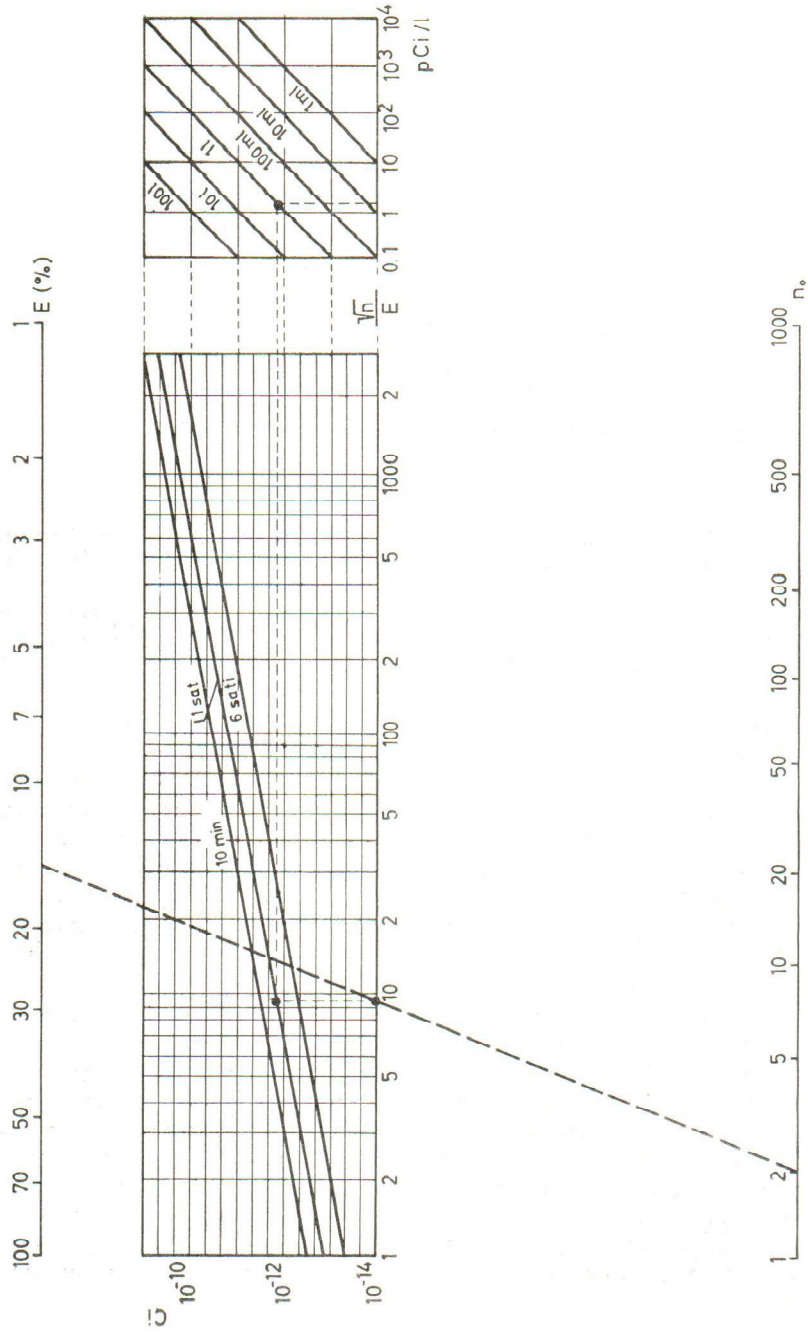
(Primljeno 19. IX 1967)

Među sobom su uspoređene tri metode određivanja ukupne beta-radioaktivnosti u prirodnim vodama kontaminiranim radioaktivnim padavinama.

Dat je kratak opis i razmatrane su prednosti i mane pojedinih metoda. S obzirom na jednostavnost izvedbe, tačnost, preciznost i mogućnost mjerenja radioaktivnosti, najboljom se pokazala metoda koncentriranja radionuklida na sloju anionske ionsko-izmjenjivačke smole.

U našoj se zemlji već od 1961. godine prati nivo radioaktivne kontaminacije biosfere kao posljedica testova s nuklearnim oružjem (1). U sklopu ovih mjerenja prati se i nivo kontaminacije prirodnih voda mjerenjem ukupne beta-radioaktivnosti. U našem Laboratoriju za mjerenje radioaktivnosti biosfere, kao i u još nekim centrima za praćenje radioaktivnosti biosfere, za mjerenje ukupne beta-radioaktivnosti u prirodnim vodama upotrebljava se metoda uparavanja uzoraka vode i brojenje alikvotnog izarenog ostatka (2). Međutim, neka su usporedna mjerenja istovrsnih uzoraka navedenom metodom pokazala veoma velike varijacije rezultata, što je ukazivalo na malu preciznost metode.

Da bi se pronašle pogodnije metode mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti u vodi, pristupilo se istraživanjima u dva pravca. Prvo je razrađena metoda mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti u vodi pomoću GM brojača za tekućine (3), čime se dobila brza i jednostavna ali manje osjetljiva metoda za mjerenje većih koncentracija radionuklida u vodi pri izvanrednim uvjetima prodora radioaktivnog oblaka u slučaju velikih nuklearnih nesreća ili eksplozije nuklearnog oružja. Za mogućnost osjetljivog i tačnog određivanja ukupne beta-radioaktivnosti razrađene su dvije metode: metoda uparavanja i direktnog brojenja uparenog ostatka (4) i metoda koncentriranja radionuklida na sloju ionoizmjenjivačke smole (5).



Sl. 1. Nomogram za dobivanje osjetljivosti metode kod poznate efikasnosti i osnovnog brojanja

Svrha ovog rada jest međusobno uspoređivanje navedenih metoda za određivanje niskih nivoa radioaktivne kontaminacije prirodnih voda. Tako će se upozoriti na najpovoljniju metodu, koja se kasnije može usvojiti u svim centrima za mjerenje radioaktivnosti biosfere u našoj zemlji.

MATERIJAL I METODE

Priredivanje uzorka

Da bi se metode mogle usporediti, morali su biti priređeni istovrsni uzorci. Kišnica sakupljena u toku više dana stavljena je u plastični kanister od 15 litara. Prije svakog uzimanja uzorka, kišnica u kanisteru dobro je izmiješana snažnim potresanjem. Na sličan način priređeni su i istovrsni uzorci cisternske i riječne vode.

Kratak opis metoda

Metoda uparavanja, koja se rutinski upotrebljava u većini centara za praćenje nivoa radioaktivnosti biosfere u našoj zemlji, odvija se na slijedeći način (2): u jednu litru uzorka vode doda se 5 ml koncentrirane dušične kiseline i uparava na plinskom kuhalu do volumena od oko 15 ml. Upareni ostatak kvantitativno se prenese u odvagane lončice za žarenje i ispari pomoću infracrvene svjetiljke do suha. Lončić sa sadržajem žari se dva sata na 750 °C, te se nakon hlađenja izžareni ostatak prebaci u ahatni tarionik, gdje se fino izmrvi i centrifugiranjem u rasklopnoj metalnoj kiveti nanese na odvagnutu plastičnu planšetu. Tako priređeni uzorci broje se antikoincidentnim GM brojačem s prozorom. U daljem tekstu ta je metoda označena kao metoda I.

Novom metodom uparavanja (4) određivanje ukupne beta-radioaktivnosti odvija se na slijedeći način: u jednu litru kišnice doda se 10 ml 1 N citronske kiseline i 3 ml otopine $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ koncentracije 100 mg/ml; u cisternsku vodu doda se 5 ml 1 N citronske kiseline i 2 ml otopine $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2$. Pri određivanju riječne vode dodaje se samo 10 ml 1%-tne vodene otopine kompleksona III. Voda se ispari do malog volumena i upareni ostatak prenese kvantitativno u odvagnutu aluminijsku planšetu promjera 5.5 cm. Sadržaj u planšeti upari se pomoću IR lampi do suha, zatim suši na 110 °C, ohladi, vagne i broji s pomoću protočnog antikoincidentnog GM brojača s tankim prozorom. U daljem je tekstu ta metoda označena kao metoda II.

Postupak za određivanje ukupne beta-radioaktivnosti u vodi metodom koncentriranja radionuklida na sloju ionskoizmjenjivačke smole (5) sastoji se u ovom: jedna litra analizirane vode propusti se preko sloja kationske ionskoizmjenjivačke smole koja se nalazi na filtrir-papiru. Nakon završenog propuštanja, filtrir-papir sa smolom prebaci se na aluminijski tanjurić za brojenje, malo posuši, zalijepi trakom selotejpa i broji pomoću protočnog antikoincidentnog GM brojača tankog prozora. U daljem je tekstu ta metoda označena kao metoda III.

REZULTATI I DISKUSIJA

Usporedba analitičkih postupaka

Na tablici 1 prikazana je usporedba vremena utrošenog za analizu uzoraka 1 litre prirodne vode, ne računajući vrijeme brojenja.

Tablica 1

Usporedba potrebnog vremena za analizu uzoraka od 1 litre prirodne vode (bez brojenja)

Metoda	Broj paralelno obrađivanih uzoraka	Vrijeme trajanja neprekidne analize	Prakt. trajanje analize u radnim danima	Utrošak direktnog rada po uzorku
I	12	29-30 sati	3 dana	100-110 min.
II	12	17-18 sati	2 dana	70- 80 min.
III	zavisno o broju uređaja, praktički oko 20	7-10 sati	1 dan	oko 10 min.

Iz tablice se vidi da je s obzirom na utrošeni direktni rad kao i na samo vrijeme trajanja metode, svakako najpovoljnija metoda koncentriranja radionuklida na sloju ionskoizmjenjivačke smole. Prednost te metode, s obzirom na utrošeni direktni rad, dolazi naročito do izražaja, jer se propuštanje uzoraka kroz uređaje za filtriranje može vršiti bez ikakve kontrole.

Usporedba brojanja uzoraka

Na tablici 2 dane su osobine pojedine metode i vrste uzorka s obzirom na mjerenje radioaktivnosti.

Efikasnosti brojenja su različite, kako za razne metode tako i za različite uzorke. Osobito su visoke razlike između praktične efikasnosti za različite vrste uzoraka voda obrađivanih metodom I. Do toga dolazi zbog velikih razlika u efikasnosti prebacivanja izarenog ostatka iz lončića za žarenje na planšetu za brojenje. Kod analize uzoraka kišnice varijacija alikvotnog faktora osobito je izražena, tako da su opažene vrijednosti od 1.7 do 28.

Osjetljivosti metoda za razne vrste voda izračunate su iz nomograma na slici 1, koji je konstruiran iz jednadžbe za mogućnost detekcije minimalne količine radioaktivnosti (6).

$$A_{\min} = \frac{1}{t} \times \frac{\sqrt{n}}{E} \times 10^{-12},$$

gdje je

Tablica 2
Usporedba metoda i uzoraka s obzirom na mjerenje radioaktivnosti obradenih uzoraka

Brojač	Metoda i uzorak	O. B. imp/min.	Alikvotni faktor prenošenja	Praktična efikasnost brojača	Osjetljivost metode; brojenje 60 min.
Antikoicidentni GM brojač s prozorom	Metoda I kišnica	0.70	9.7	3.4%	5 pCi/l
	cisterna voda			8.0%	2 pCi/l
	riječna voda			23.2%	0.5 pCi/ml
Protočni antikoicidentni GM brojač tankog prozora	Metoda II kišnica	1.38	1	19.3%	1 pCi/l
	cisterna voda			19.2%	1 pCi/l
	riječna voda			19.7%	1 pCi/l
Protočni antikoicidentni GM brojač tankog prozora	Metoda III kišnica	2.07	1	14.2%	2 pCi/l
	cisterna voda			22.8%	1 pCi/l
	riječna voda			19.9%	1 pCi/l

- A_{\min} = minimalna količina detektirane radioaktivnosti izražene u kirijama
 t = vrijeme brojenja uzorka u minutama
 E = efikasnost brojača
 n = brzina brojenja uzorka u imp/min.

Na nomogramu je prikazano dobivanje osjetljivosti metode III u slučaju analize 1 litre kišnice i brojenja u toku 60 minuta.

Usporedba rezultata analize prirodnih voda

Na tablici 3 prikazani su rezultati analize četiriju paralelnih uzoraka kišnice, cisternske i riječne vode metodama uparavanja i ionske izmjene.

Tablica 3
Usporedba rezultata analize istovrsnih uzoraka

Metoda	Uzorak	Vrijeme brojenja	S_r	s_r	Specifična aktivnost
I	kišnica	6 sati	65,0%	5,2%	(14,5 ± 6,9) pCi/l
	cisternska voda	5 sati	40,8%	5,5%	(18,8 ± 7,7) pCi/l
	riječna voda	5 sati	39,8%	6,1%	(3,1 ± 1,2) pCi/l
II	kišnica	2 sata	6,7%	5 %	(7,71 ± 0,52) pCi/l
	cisternska voda	2 sata	4,5%	4,2%	(19,45 ± 0,87) pCi/l
	riječna voda	4 sata	4,2%	6,6%	(3,94 ± 0,28) pCi/l
III	kišnica	2,5 sata	10,3%	7,7%	(7,71 ± 0,52) pCi/l
	cisternska voda	1,5 sati	23,4%	4,7%	(19,4 ± 4,5) pCi/l
	riječna voda	3 sata	33,4%	9 %	(3,9 ± 1,3) pCi/l

Relativna standardna devijacija pojedinih metoda, dobivena paralelnom analizom četiriju uzoraka, jest S_r , dok je s_r relativna standardna devijacija brojenja izračunata prema jednadžbi (7):

$$s_r = \frac{\sqrt{\frac{n + n_0}{t} + \frac{n_0}{t_0}}}{n}$$

gdje je

- n = brzina brojenja uzorka u imp/min.
 n_0 = brzina brojenja osnovnog brojenja u imp/min.
 t = vrijeme brojenja uzorka u minutama
 t_0 = vrijeme brojenja osnovnog brojenja u minutama.

Iz tablice 3 opaža se slaba preciznost metode uparavanja, koja se upotrebljava kao rutinska metoda za određivanje ukupne beta-radioaktivnosti u prirodnim vodama. Ta nepreciznost naročito je naglašena kod analize uzoraka kišnice. Tako su brojenjem izarenog ostatka iste kišnice dobivene vrijednosti od 0.1 do 2.27 imp/min., što se odnosi kao 1 : 22.7. To jasno govori da je navedena metoda općenito neprikladna, a naročito za uzorke kišnice. Vjerojatno je najvažniji razlog takve slabe preciznosti mala efikasnost prebacivanja izarenog ostatka iz lončića na planšetu za brojenje. Taj bi se nedostatak mogao otkloniti dodavanjem neke u vodi topljive tvari koja bi žarenjem dala lako prenosivi ostatak.

Nesigurnost metode očituje se i u velikoj razlici između rezultata analize kišnice dobivenih ovom metodom i metodama II i III. Važno je spomenuti da su ove analize vršene na uzorcima voda u vrijeme kada je prošlo već više godina od moratorija nadzemnih nuklearnih pokusa pa se znatno smanjio udio tzv. vrućih čestica u ukupnoj radioaktivnosti. Vjerojatno bi uz prisutnost većeg broja vrućih čestica, u periodima nakon eksplozija nuklearnih oružja, varijacije rezultata bile još i veće.

Nova metoda uparavanja veoma je precizna i svakako mnogo pogodnija od prethodne metode, samo ima lošu stranu što je za brojenje uzoraka potreban brojač velike površine, a izvedba takvih brojača u anti-koincidentnom sklopu prilično je skupa.

Gledajući u cjelini, s obzirom na brzinu analize, na utrošeni rad po uzorku, jednostavnost izvedbe, utrošeni materijal, izvođenje mjerenja radioaktivnosti – najveću prednost ima svakako metoda mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti u vodi pomoću metode koncentriranja radionuklida na sloju kationske ionskoizmjenjivačke smole. U ovom je radu radioaktivnost reteniranih radionuklida na sloju smole mjerena antikoincidentnim protočnim GM brojačem. Međutim, mjerenje aktivnosti smole može se mjeriti i običnim antikoincidentnim GM brojačem.

Literatura

1. Radioaktivnost životne sredine u Jugoslaviji, podaci za 1961. godinu, RBIO 1/61, Beograd 1963.
2. Popović, U.: Analiza radioaktivnosti životne sredine. Elaborat za 1962 godinu, IMI-S-13.
3. Picer, M., Popović, U.: Arh. hig. rada, 18 (1967) 179.
4. Picer, M.: Saopćenje na simpoziju »Merenja i instrumentacija u zaštiti od jonizujućeg zračenja«, 23. oktobar 1967, Banja Luka.
5. Picer, M.: Saopćenje na istom simpoziju.
6. Haberer, K.: Atompraxis, 8 (1962) 148.
7. Gusev, N. G., Margulis, U. Ja., Marej, A. N., Tarasenko, N. Ju., Štukkenberg, Ju. M.: Dozimetričke i radiometričke metodiki, Atomizdat, Moskva 1966, str. 263.

*Summary*COMPARISON OF THREE METHODS
FOR DETERMINATION OF GROSS BETA ACTIVITY
IN NATURAL WATERS

Two evaporation and an ion-exchange method for determination of gross beta activity in natural waters are compared.

The analytical procedure of the three methods is described and the time of analysis as well as the handling of analyzed samples are discussed.

Results of analysis of gross beta activity obtained by these methods in naturally contaminated rain, cystem and river waters are given.

Simplicity, accuracy and reproducibility of each method are discussed and the method of concentrating radionuclides on a thin ion-exchange resin bed is commended as optimum.

*Institute for Medical Research,
Yugoslav Academy of Sciences and Arts,
Zagreb*

*Received for publication
September 19, 1967.*