

MJERENJE  
UKUPNE BETA-RADIOAKTIVNOSTI  
U PRIRODNIM VODAMA NOVOM METODOM  
UPARAVANJA

M. PICER

*Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada JAZU, Zagreb*

*(Primljeno 14. II 1968)*

Razrađen je veoma jednostavan, precizan, osjetljiv i relativno kratak postupak za određivanje ukupne beta radioaktivnosti u prirodnim vodama.

Pokusi su radeni s uzorcima kišnice, riječnih i cisternskih voda umjetno kontaminiranim sa smjesom Sr-90, Cs-137 i Ce-144 i na normalnim uzorcima prirodnih voda kontaminiranim radioaktivnim padavinama.

Postupak se sastoji u tome da se u uzorak vode od 1 litre doda izvjesna količina otopine kalcijeva acetata i vodena otopina 1 N citronske kiseline, odnosno 1% otopine kompleksona III, upari do malog volumena na plinskom kuhalu i kvantitativno prenese u planšete promjera 55 mm. Sadržaj planšeta ispari se do suha i mjeri pomoću protočnog GM brojača niskog osnovnog brojenja.

Preciznost metode je vrlo dobra, tako da se standardna relativna greška od mjerenja 10 paralelnih uzoraka kreće unutar greške brojenja. Brojenjem uzoraka kišnice i rijeka od 100 min. i osnovnog brojenja mjernog sistema oko 1.5 imp/min. greška iznosi oko 10%, a kod cisternske vode i manje.

U literaturi je opisano više metoda za određivanje ukupne beta-radioaktivnosti u vodi. Najčešće upotrebljavana metoda sastoji se od uparavanja većeg volumena vode do suha, te žarenja i brojenja ostatka (1, 2, 3). Opisane su i metode direktnog mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti uparene ili neuparene vode pomiješane s tekućim scintilatorom (4), ili mjerenje sa specijalno konstruiranim uređajima za kontinuirano praćenje radioaktivnosti tekuće vode (5).

U našoj se zemlji još od 1961. godine prati nivo radioaktivne kontaminacije biosfere kao posljedica testova nuklearnim oružjem (6). U većini naših centara za praćenje kontaminacije biosfere, za određivanje ukupne beta-radioaktivnosti prirodnih voda upotrebljava se metoda uparavanja uzoraka i brojenje alikvotnog izarenog ostatka (7). Međutim,

neka usporedna mjerenja beta-radioaktivnosti navedenom metodom pokazala su veoma velike varijacije rezultata zbog slabe preciznosti metode.

Radi pronalaženja prikladnije metode, pristupilo se istraživanjima o mogućnosti mjerenja opće beta-radioaktivnosti suhog ostatka prirodnih voda bez prethodnog žarenja i prenošenja izarenog ostatka. Na taj bi se način izbjegao gubitak radionuklida žarenjem i adsorpcijom na stijenka lončića za žarenje, koji je naročito izražen kod obrade uzoraka kišnice s malim sadržajem krutog ostatka.

## MATERIJAL I METODE

### *Priredivanje otopina reagensija*

U radu su upotrebljavane 1 N vodene otopine solne, dušične, sumporne, oksalne, octene, citronske, vinske, askorbinske i sulfosalicilne kiseline, te 1% otopina kompleksona III (dinatrijeva sol etilendiamintetraoctena kiselina) priređene na uobičajeni način.

Otopina 1 N salicilne kiseline te 1% kompleksona I (nitrilotrioctena kiselina) i kompleksona II (etilendiamintetraoctena kiselina) dobivene su otapanjem navedenih tvari u 0.1 N otopini amonijaka u vodi.

### *Radionuklidna smjesa*

Dodavana radionuklidna smjesa sastojala se od  $^{144}\text{Ce}$  (35.6%),  $^{90}\text{Sr}$  (38.5%) i  $^{137}\text{Cs}$  (25.6%). Sastav navedene smjese odgovara prema *Hunteru* (8) smjesi fisionih produkata starih oko 4 godine.

Budući da su se istraživanja vršila sredinom 1967. godine, a posljednji veliki pokusi s nuklearnim oružjem (površinske eksplozije) vršeni su tokom 1963. godine – to starost upotrijebljene fisione smjese relativno dobro odgovara starosti fisionih produkata u radioaktivnim padavinama.

### *Pripremanje uzoraka*

Istraživanja su vršena na čistim vodenim otopinama kalcijevog acetata, na kišnici, cisternskoj i riječnoj vodi. Vodena otopina kalcijevog acetata služila je kao nadomjestak prirodnih voda (3) u ispitivanjima efikasnosti prenošenja smjese radionuklida iz čaše za isparavanje u planšetnu za brojenje. Uzorci čistih otopina  $\text{Ca}(\text{CH}_3\text{COO})_2$  kontaminirani su neposredno prije analize dodavanjem radionuklidne smjese. Uzorci prirodnih voda, umjetno kontaminiranih, priređeni su tako da se u plastični kanister od 25 litara stavilo 20 litara kišnice, riječne ili cisternske vode i dodala određena količina radionuklidne smjese.

Prije svakog uzimanja uzorka, radi homogeniziranja sadržaja kanister se dobro potresao. Pošto je razrađena metoda na umjetno kontaminiranim uzorcima prirodnih voda, analizirani su i uzorci vode kontaminirani radioaktivnim padavinama.

### *Priredivanje uzoraka za brojenje*

U čašu od 600 ml stavi se 500 ml destilirane vode, 3 ml otopine kalijevog acetata 100 mg/ml i 5 ml otopine radionuklidske smjese 0.49 nCi/ml, pH 5. Zatim se stavi 10 ml otopine pojedinog dodatka. Kod obrade umjetno kontaminiranih prirodnih voda dodaje se samo kalcijev acetat i pojedini dodatak.

Sadržaj u čaši upari se na plinskom kuhlalu do malog volumena (10–15 ml) i uz pomoć staklenog štapića s gumicom ostatak se uz ispiranje sa 1% otopinom upotrijebljenog dodatka prenese kvantitativno u odvgnutu aluminijsku planšetu promjera 55 mm. Planšeta sa sadržajem stavi se pod infracrvenu svjetiljku i sadržaj ispari do suha. Suhi ostatak u planšeti poravna se pomoću metalnog, dobro uglačanog tučka koji tačno pristaje u planšetu. Nakon sušenja od oko 1 sat na 110° C, planšeta se ohladi, važe i broji. Kod nekih pokusa brojenje uzoraka izvodilo se radi usporedbe prije i poslije poravnavanja metalnim tučkom. U pokusima je obično obrađivano po 10 uzoraka.

### *Brojenje uzoraka*

Brojenje umjetno kontaminiranih uzoraka izvodilo se pomoću GM brojača s prozorom debljine 1.9 mg/cm<sup>2</sup>, efikasnosti 20.8% s obzirom na K-40 u KClO<sub>3</sub>.

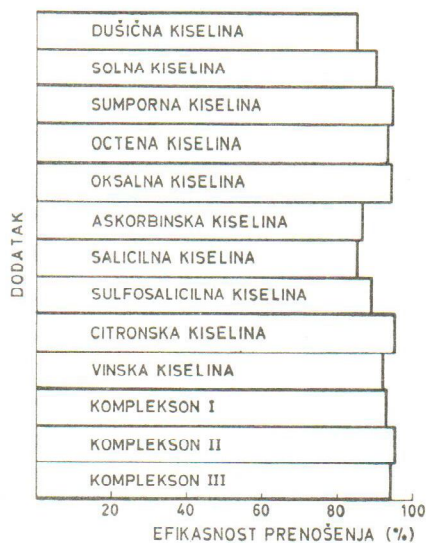
Prirodno kontaminirani uzorci brojeni su pomoću protočnog GM brojača s tankom folijom promjera 6 cm i visine 6 cm, efikasnosti 23.2%. Određivanje efikasnosti protočnog GM brojača vršeno je pomoću K-40 sadržanog u K<sub>2</sub>C<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. U pogledu sastava dodataka (kalcijev acetat, citronska kiselina odnosno komplekson III), taj oblik kalijeve soli relativno dobro odgovara sastavu ostataka brojenih prirodno kontaminiranih uzoraka. Pri računanju pravog broja impulsa umjetno i prirodno kontaminiranih uzoraka uzeta je u obzir veličina samoapsorpcije zračenja u samome izvoru.

## REZULTATI I DISKUSIJA

### *Utjecaj vrste dodataka na efikasnost prenošenja*

Već je otprije poznato da se dodavanjem nekih organskih i anorganskih kiselina te raznih kompleksirajućih agensa (3, 9) pospješuje dekontaminacija staklenog posuđa kontaminiranog fisionim produktima. Zbog toga se pristupilo ispitivanju efikasnosti prenošenja uparenog ostatka iz čaše u planšetu za brojenje, uz dodavanje raznih organskih i anorganskih kiselina te nekih kompleksirajućih agensa. Obrađivano je po pet paralelnih uzoraka; rezultati su srednje vrijednosti mjerenja pet uzoraka. Efikasnost prenošenja izračunata je na taj način da su uspoređene brzine brojenja isparenog prenesenog i sušenog ostatka uzorka s brzinom brojenja samo isparene iste količine radionuklidske smjese u planšeti.

Na slici 1 prikazane su u obliku histograma nađenc efikasnosti prenošenja radionuklida iz čaše u planšetu za brojenje s dodacima raznih organskih i anorganskih kiselina te kompleksirajućih agensa.



Sl. 1. Efikasnost prenošenja radionuklida iz čaše u planšetu za uparavanje

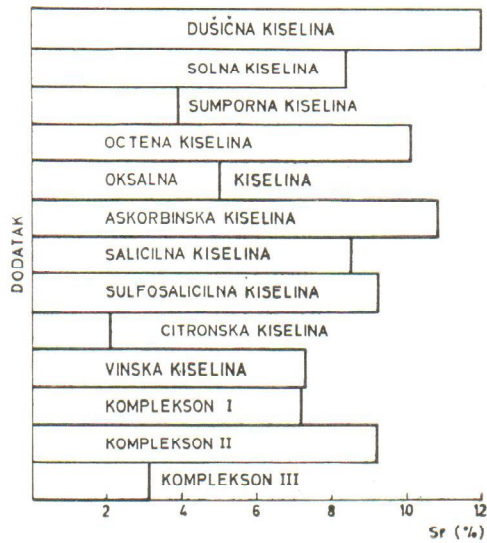
Efikasnost prenošenja kreće se od 85% – određena pri dodavanju dušične kiseline – pa do 95% – pri dodavanju citronske kiseline i kompleksona II.

Međutim, za odabiranje najpovoljnijeg dodatka nije važna samo vrijednost efikasnosti prenošenja, važno je i ponašanje uzorka za vrijeme isparavanja, oblik i količina ostatka nakon isparavanja i sušenja, te preciznost prenošenja, čime je definirana i sama preciznost metode. Tako je, npr., opaženo da su uzorci u koje su dodane otopine vinske i askorbinske kiseline potkraj uparavanja skloni prskanju.

Na slici 2 prikazane su standardne relativne greške ( $S_r$ ) prenošenja radionuklida iz čaše u planšetu uz razne dodatke.

Što se preciznosti prenošenja tiče, vidi se da su najpovoljniji ostaci nakon dodavanja otopina sumporne, citronske i oksalne kiseline, te otopine kompleksona III.

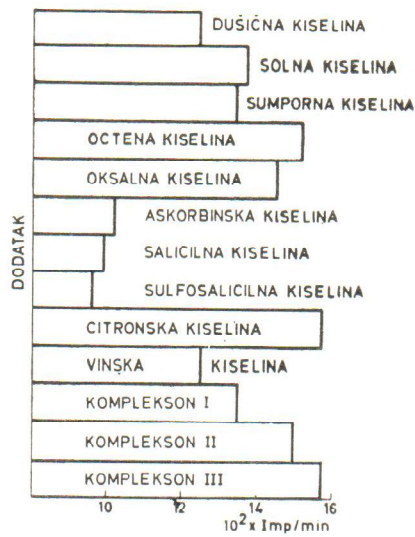
Pri brojenju uzoraka niske radioaktivnosti vrlo je važno da samoapsorpcija zračenja u uzorku bude što manja, da efikasnost brojenja bude što bolja. Na slici 3, na kojoj su prikazane brzine brojenja ostataka uzoraka obrađenih uz razne dodatke, jasno se vidi utjecaj apsorpcije na brzinu brojenja uzoraka.



Sl. 2. Preciznost prenošenja radionuklida iz čaše za uparavanje u planšet u razne dodatke

*Pokusi s umjetno kontaminiranim prirodnim vodama*

Nakon ispitivanja na sintetskim otopinama, istraživanja su nastavljena na umjetno kontaminiranim prirodnim vodama. Na tablici 1 prikazane su standardne relativne devijacije mjerenja radioaktivnosti i efikasnosti prenošenja umjetno kontaminiranih prirodnih voda, uz dodatke



Sl. 3. Brzina brojenja uparenog ostatka uz razne dodatke

Tablica 1  
*Preciznost i efikasnost prenošenja ostatka uparavanja umjetno kontaminiranih prirodnih voda*

Dodatak	S <sub>r</sub> (prije ravnanja)	S <sub>r</sub> (poslije ravnanja)	Efikasnost prenošenja
Kišnica bez kalcijeva acetata			
Citronska	8.4%	6.2%	94.1%
Oksalna	3.6%	3.5%	95.0%
Komplekson III	12.2%	11.1%	97.5%
Kišnica + 300 mg kalcijevog acetata			
Citronska	3.1%	1.8%	95.3%
Oksalna	4.0%	2.2%	94.3%
Komplekson III	7.2%	6.3%	97.0%
Cisternska voda + 200 mg kalcijevog acetata			
Citronska	4.7%	3.2%	95.0%
Oksalna	5.3%	4.5%	96.1%
Komplekson III	6.7%	6.0%	96.3%
Riječna voda			
Citronska	5.6%	4.3%	93.1%
Oksalna	3.4%	3.1%	96.0%
Komplekson III	2.5%	2.4%	97.0%

10 ml 1 N citronske i oksalne kiseline, te 1% otopine kompleksona III. Kišnica je obrađivana uz dodatak 300 mg kalcijevog acetata, kao i bez njega. U cisternsku vodu dodano je 200 mg kalcijevog acetata, dok u riječnu vodu nije dodavano kalcijevog acetata.

*Mjerenje radioaktivnosti prirodnih voda kontaminiranih radioaktivnim padavinama*

Iz rezultata istraživanja na umjetno kontaminiranim prirodnim vodama zaključeno je da se kod mjerenja radioaktivnosti prirodnih voda uzorcima voda dodaju slijedeći dodaci:

Na 1 litru kišnice 300 mg kalcijevog acetata i 10 ml 1 N vodene otopine citronske kiseline.

Na 1 litru cisternske vode 200 mg kalcijevog acetata i 10 ml 1 N citronske kiseline, a na 1 litru riječne vode samo 10 ml 1% vodene otopine kompleksona III.

Na tablici 2 prikazani su rezultati mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti prirodnih voda kontaminiranih radioaktivnim padavinama. Pokusi su rađeni sa 10 paralelnih uzoraka.

Tablica 2

*Rezultati mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti prirodnih voda*

Uzorak	Broj uzoraka	Spec. aktivnost	$S_r$	$s_r$
Kišnica	5	$(18.9 \pm 1.19)$ pCi/l	6.3%	5.6%
Cisternska voda	5	$(44.6 \pm 2.09)$ pCi/l	4.7%	3.6%
Riječna voda	5	$(11.0 \pm 0.79)$ pCi/l	7.2%	6.7%

Relativna standardna greška ( $S_r$ ) jest greška metode dobivena mjerenjem radioaktivnosti pet paralelnih uzoraka, dok je  $s_r$  relativna standardna devijacija brojenja radioaktivnosti (10).

#### ZAKLJUČAK

S obzirom na sam postupak obrade uzoraka, opisana metoda uparavanja je jednostavnija i brža od do sada upotrebljavane metode uparavanja za određivanje ukupne beta-radioaktivnosti u prirodnim vodama. Velika prednost ove metode pred prije opisanim metodama, gdje se ostatak žari, jeste i u tome što se gubitak radionuklida volatilacijom smanjio na minimum. Naime, u opisanom postupku najviša temperatura je 110° C, dok kod ostalih postupaka temperature žarenja iznose 500–600° C pa i više. Ta okolnost je od osobitog značaja kod mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti površinskih voda, gdje se mnogi radionuklidi vežu za organski materijal (npr. humusne kiseline), što dovodi do volatilacije tako vezanih radionuklida i kod relativno niskih temperatura žarenja. Preciznost metode je vrlo dobra, te su varijacije rezultata gotovo unutar grešaka brojenja radioaktivnosti. Jedina nezgodna strana metode je u potrebi protočnog antikoincidentnog GM brojača relativno velike površine za brojenje slabo aktivnih prirodnih voda.

*Literatura*

1. *Pazdernik, J.*: Isotopenpraxis, 1 (1965) 85.
2. *Aurand, K.*: Atomkernenergie, 10 (1965) 304.
3. *Haberer, K.*: Atomkernenergie, 8 (1963) 102.
4. *Haberer, K., Kõe, W.*: Atompraxis, 11 (1965) 1.
5. *Qiwk, E. J. M.*: Health Physics, 12 (1966) 1333.
6. Radioaktivnost životne sredine u Jugoslaviji, Podaci za 1961. godinu, RBIO 1/61, Beograd 1963.
7. *Popović, U.*: Analiza radioaktivnosti životne sredine. Elaborat za 1962. godinu. IMI-S-13.
8. *Hunter, H. F., Ballou, N. E.*: Nucleonics, 9 (1951) 5.
9. *Huft, M. C.*: A. E. C. U. S. Report IDO 14379.
10. *M. Picer*: Arh. hig. rada, 19 (1968) 217.

*Summary*

DETECTION OF GROSS BETA RADIOACTIVITY  
IN NATURAL WATERS BY A NEW EVAPORATION  
METHOD

A very simple, reproducible and relatively short evaporation procedure for detecting gross beta radioactivity of natural waters has been worked out.

The experiments were performed on the samples of rain, river and cystem waters artificially contaminated with 4-year-old fission products and on the samples of natural waters contaminated with the fall-out.

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

*Received for publication  
February 14, 1968*