

MOGUĆNOST I OSJETLJIVOST ODREĐIVANJA NEKIH RADIONUKLIDA I NJIHOVIH SMJESA POMOĆU GM-BROJAČA ZA TEKUĆINE

M. PICER i V. POPOVIĆ

*Institut za medicinska istraživanja i medicinu rada Jugoslavenske akademije
znanosti i umjetnosti, Zagreb*

(Primljeno 28. IU 1967)

Opisana je mogućnost upotrebe vrlo brze i jednostavne metode za određivanje ukupne beta-aktivnosti u vodi pomoću GM-brojača za tekućine. Izmjerena je efikasnost brojača za 10 radionuklida s raznim energijama beta-zračenja od 0.44 MeV (Ce-141) do 2.98 MeV (Pr-144), te smjese radiološki najopasnijih fisionih produkata. Zbog svoje jednostavnosti i brzine, metoda je prikladna za mjerenje ukupne beta-aktivnosti u vodi za piće, kao i u drugim vodama u izvanrednim uvjetima većih nuklearnih nesreća ili eksplozije nuklearnog oružja.

Kod većine nesreća na nuklearnim postrojenjima ili prilikom eksplozije nuklearnog oružja dolazi do većeg ili manjeg prodora, uglavnom beta i gama aktivnih radionuklida u životnu okolinu čovjeka. Zbog toga je praćenje nivoa opće beta-radioaktivnosti u zraku, padavinama i površinskim vodama od velikog značaja kako za mogućnost da se prati kretanje nastalog radiaktivnog oblaka tako i za ocjenu njegove opasnosti (1).

U literaturi je opisano više metoda za određivanje ukupne beta-aktivnosti u vodi. Najčešće upotrebljavana metoda sastoji se od uparavanja većeg volumena vode do suha, te žarenje i brojanje ostatka (2, 3, 4). Opisane su i metode direktnog mjerenja ukupne beta-radioaktivnosti uparene ili neuparene vode pomiješane s tekućim scintilatorom (5), ili mjerenje sa specijalno konstruiranim uređajima za kontinuirano praćenje nivoa radioaktivnosti tekuće vode (6).

Navedene metode vrlo su osjetljive, i pomoću njih se mogu otkrivati vrlo male količine radioaktivnih tvari u vodi. Međutim, njihova negativna strana je ili dužina trajanja metode ili upotreba kompliciranih i skupih aparatura.

U izvanrednim uvjetima, u slučaju većih nesreća na nuklearnim postrojenjima ili zbog eksplozije nuklearnog oružja, moraju se tolerirati mnoge veće koncentracije radionuklida u životnoj okolini od onih u normalnim uvjetima. Imajući to na umu željeli smo istražiti mogućnost uvođenja metode za mjerenje ukupne beta-radioaktivnosti vode, koja je dovoljno osjetljiva za koncentracije radionuklida koje su tolerantne u izvanrednim uvjetima, a da sama metoda bude što brža i jednostavnija.

MATERIJAL I METODE

1. GM-brojač za tekućine

U našem radu služili smo se GM-brojačem za tekućine 20 Century Electronics, kojega se fotografija nalazi na slici 1. Ovaj tip brojača spada u tzv. niskonaponske GM-brojače (7) kojih se plato nalazi između 300 i 400 volti. Neka usporedna mjerenja vršena su i na GM-brojaču za tekućine domaće proizvodnje kojega su karakteristike vrlo slične prije spomenutom brojaču.

Za praćenje stabilnosti brojačkog uređaja upotrijebili smo otopinu KCl kojoj je nizom od 10 mjerenja određena srednja brzina brojenja. Prije svake serije mjerenja mjerila se i brzina brojenja standardizirane otopine KCl i iz omjera brzine brojenja dobili su se korekcionni faktori stabilnosti uređaja.

Kapacitet brojača je nešto veći od 10 ml, tako da su uzorci uzimani pipetom od 10 ml. Greška uzimanja uzoraka bila je nesignifikantna s obzirom na greške mjerenja radioaktivnosti, a iznosila je manje od 1%.

2. Mjereni radionuklidi

Eksperimenti su vršeni s otopinama K-40 (KCl) Cs-137, J-131, Ce-141, Ce-144, Sr-89, P-32, Ca-47, Cl-36 i Co-60.

Mjerenja otopina Cs-137, J-131, Ce-141, Ce-144 i Sr-89 vršena su zbog toga jer su to jedni od najvažnijih radionuklida mogućih kontaminatora životne okoline kod nuklearnih nesreća.

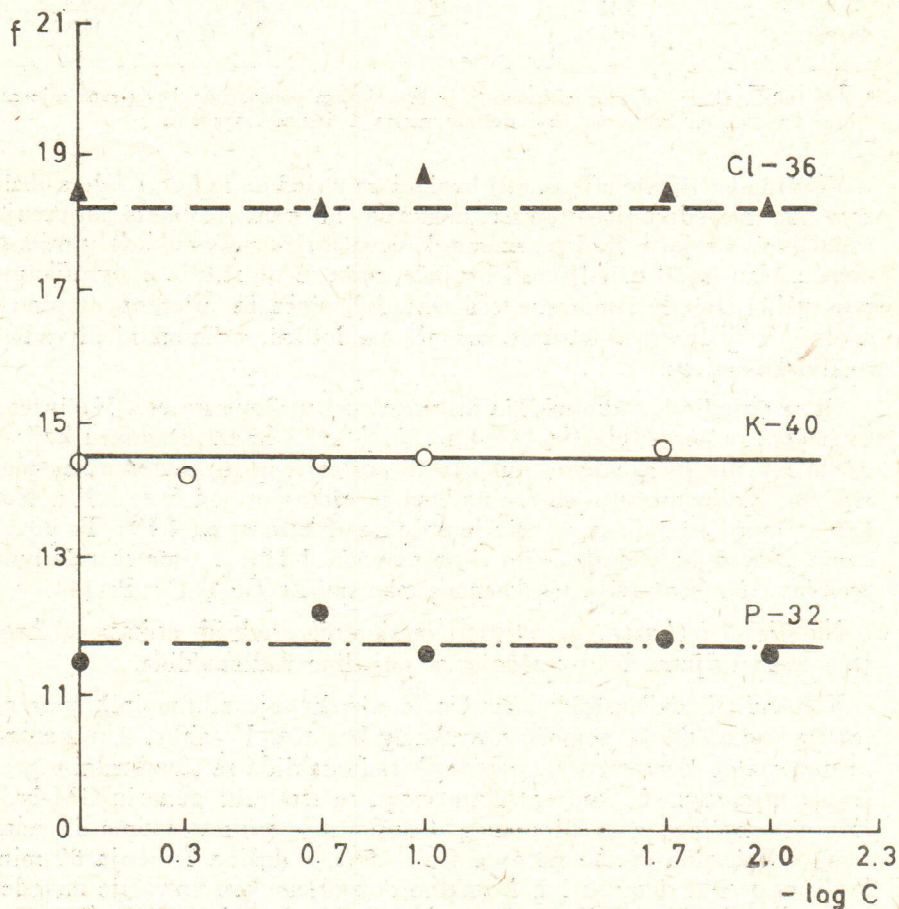
P-32, Ca-47 i Cl-36 upotrebljavaju se u biološkim i medicinskim istraživanjima, a time dolazi i do mogućnosti radioaktivne kontaminacije tim radionuklidima. Iz istog razloga vršeni su eksperimenti i sa Co-60, koji se upotrebljavaju za praćenje tehnoloških procesa. Važno je spomenuti da su radionuklidi Cs-137, Ce-144, Cl-36, P-32 i Co-60 dobiveni kao apsolutni standardi.

REZULTATI

Efikasnost brojača mjerili smo za pojedine radionuklide i radionuklidske smjese kod raznih nivoa koncentracija. Od izvorne otopine načinjene su razređivanjem otopine: 1 : 2, 1 : 5, 1 : 10, 1 : 50, 1 : 100 i 1 : 500, već prema tome kakva je bila aktivnost izvorne otopine. Na slici 2 prikazane su varijacije faktora efikasnosti brojača s obzirom na nivo aktivnosti K-40, P-32 i Cl-36.

U dijagramu je nivo aktivnosti prikazan u obliku padajućih koncentracija radionuklida, što je dobiveno spomenutim razređivanjem izvorne otopine. Slični dijagrami varijabilnosti efikasnosti načinjeni su i za ostale radionuklide.

U tablici 1 prikazane su efikasnosti i faktori efikasnosti, kao i standardne i relativne standardne greške faktora efikasnosti za pojedine radionuklide.



Sl. 2. Varijabilnost efikasnosti brojača za otopine K-40, P-32 i Cl-36

Tablica 1.

Efikasnost i varijabilnost efikasnosti GM-brojača za tekućine mjerenih radionuklida

Radio-nuklid	\bar{E} (%)	\bar{F}_x	S_F	S_r (%)
K-40	6.95	14.5	0.15	1.0
Cs-137	1.98	50.4	1.1	2.6
J-131	1.61	62.1	2.1	3.4
Ce-144	14.7	6.3	0.3	9.2
Ce-141	0.69	145	19.7	13.6
Sr-89	7.71	12.7	0.3	2.5
P-32	8.54	11.7	0.3	2.6
Ca-47	3.06	32.7	1.6	4.9
Cl-36	5.51	18.2	0.4	2.2
Co-60	1.41	70.9	8.1	11.5

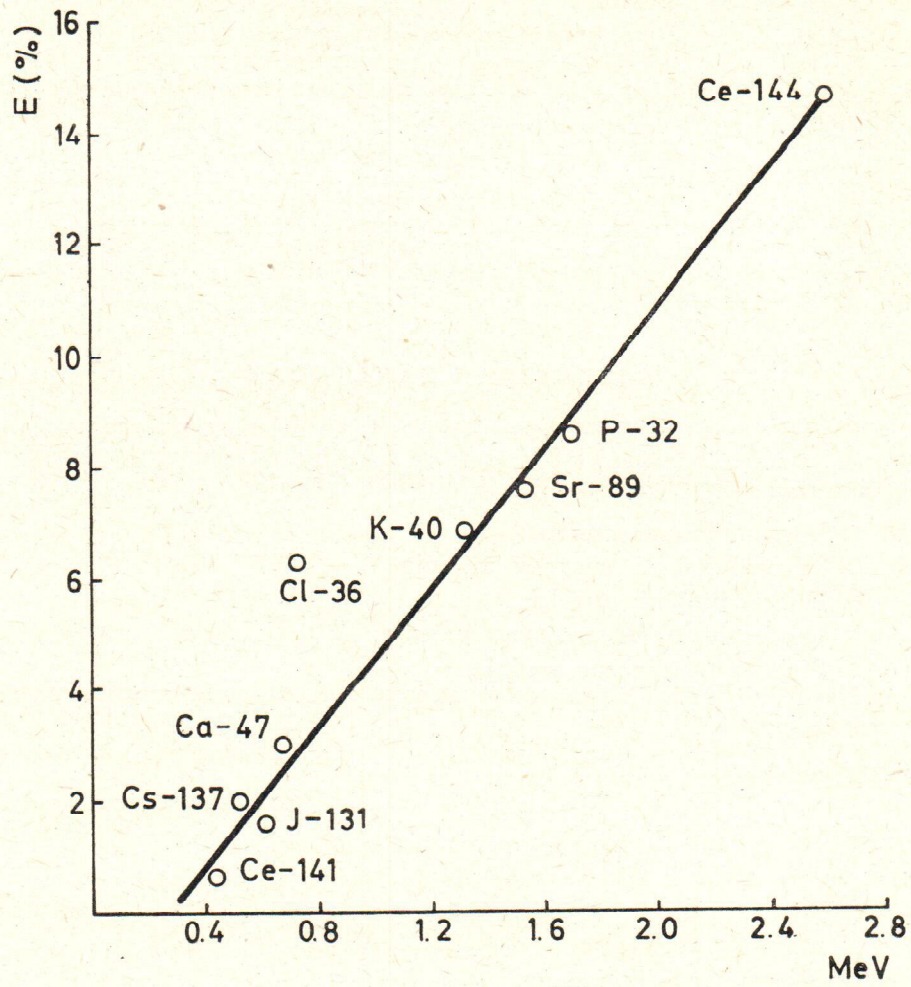
* $\bar{F} = 100/\bar{E}$, tj. F - faktor efikasnosti je broj kojim pomnožimo korigirani mjereni broj impulsa da dobijemo broj dezintegracija u jedinici vremena.

Veličina varijacije efikasnosti brojača za pojedine radionuklide s obzirom na razređivanje otopina pokazale bi nam prilikom mjerenja osjetljivost brojača. Kad je, naime, koncentracija radionuklida u mjernom uzorku ispod osjetljivosti brojača, tada se to očituje u signifikantnoj razlici između izmjerene efikasnosti brojača za mjerenu otopinu i srednje vrijednosti efikasnosti brojača za dotični radionuklid ili radionuklidsku smjesu.

Osim pojedinih radionuklida mjerene su i njihove smjese. Načinjena je smjesa radionuklida Ce-144, Cs-137, J-131 i Sr-89 u omjeru koji se očekuje prilikom akcidenta nuklearnih postrojenja ili nuklearne eksplozije (8). Za spomenutu smjesu nađena je efikasnost od $F = 1.9\%$. Nakon stajanja od 6 dana porasla je početna efikasnost na 2.4% . To povećanje efikasnosti nastaje očito zbog raspada J-131, a time se relativno povećava koncentracija visokoenergetske smjese Ce-144 + Pr-144.

Na slici 3 prikazana je ovisnost izmjerenih srednjih efikasnosti brojača o energijama beta-zračenja za pojedine radionuklide.

Konačni cilj ovih istraživanja bio je određivanje minimalnih koncentracija radionuklida pomoću navedenog brojača. U tablici 2 prikazane su minimalne koncentracije pojedinih radionuklida sa standardnim greškama mjerenja. Te koncentracije mogu se izmjeriti pomoću GM-brojača za tekućine, upotrebljavanog u našim mjerenjima, s time da relativna standardna greška ne premašuje 10% , a dužina brojenja 60 min. Radi usporedbe dane su i maksimalno dozvoljene koncentracije navedenih radionuklida u vodi za piće kod profesionalne ekspozicije (9).



Sl. 3. Ovisnost efikasnosti brojača za tekućine o energiji beta-zračenja

Tablica 2.

Osjetljivost GM-brojača za tekućine za pojedine radionuklide

Radio-nuklid	Dužina brojenja (min.)	Min. koncentracija i standardna greška	
Ce-144	60	(2660 ± 226) pCi/l	3 × 10 ⁵ pCi/l
J-131	30	(58200 ± 3800) pCi/l	6 × 10 ⁴ pCi/l
Cs-137	60	(56400 ± 2000) pCi/l	4 × 10 ⁵ pCi/l
Sr-89	60	(7400 ± 650) pCi/l	3 × 10 ⁵ pCi/l
P-32	30	(16000 ± 740) pCi/l	5 × 10 ⁵ pCi/l
Ca-47	60	(22600 ± 1250) pCi/l	1 × 10 ⁶ pCi/l
Cl-36	60	(17400 ± 730) pCi/l	2 × 10 ⁶ pCi/l
Ce-141	60	(162000 ± 5800) pCi/l	3 × 10 ⁶ pCi/l
Co-60	60	(106000 ± 3300) pCi/l	1 × 10 ⁶ pCi/l

DISKUSIJA I ZAKLJUČAK

U vezi s osjetljivošću, preciznošću i brzinom ocjene nivoa radioaktivnosti tekućine pomoću GM-brojača za tekućine određenog kapaciteta, osim efikasnosti brojača utječu i slijedeći faktori:

1. Nivo aktivnosti uzorka
2. Nivo aktivnosti osnovnog zračenja
3. Dužina brojenja uzorka
4. Dužina brojenja osnovnog zračenja
5. Stabilnost brojačkog uređaja

Navedeni faktori nalaze se u odnosu koji se može izraziti ovom relacijom:

$$\frac{\frac{X^2}{t} + S_0^2}{\frac{X}{t} - \text{O. B.}} \times 100 = S_r$$

gdje je:

X = broj imp/min. uzorka

O. B. = broj imp/min. osnovnog zračenja

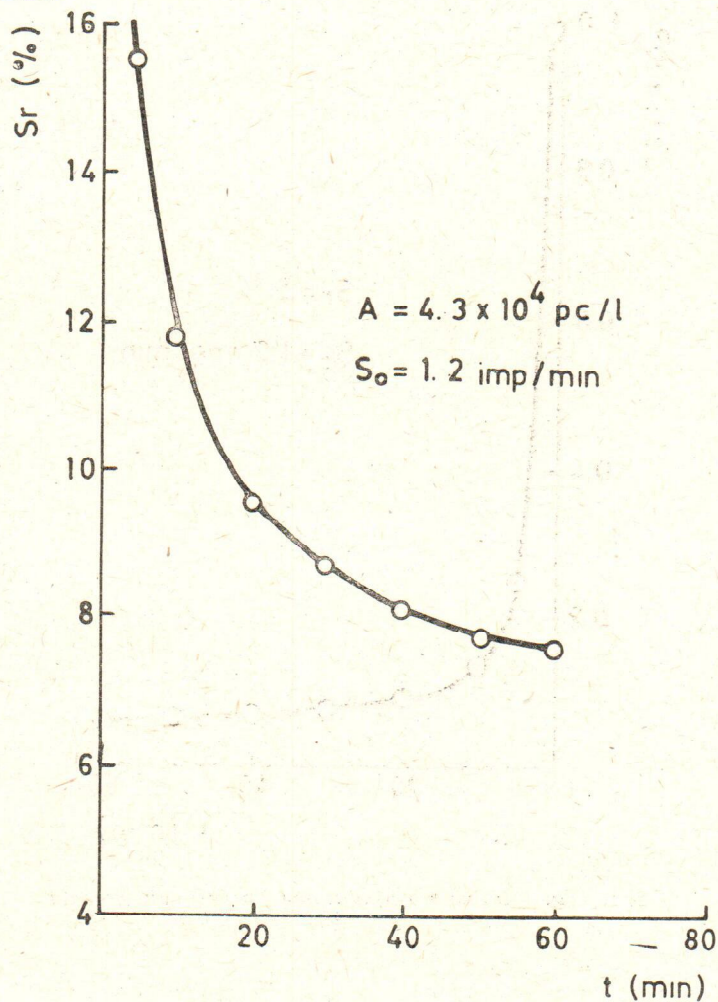
S₀ = standardna greška brojenja osnovnog zračenja

t = dužina brojenja uzorka u minutama

S_r = dužina brojenja uzorka u minutama

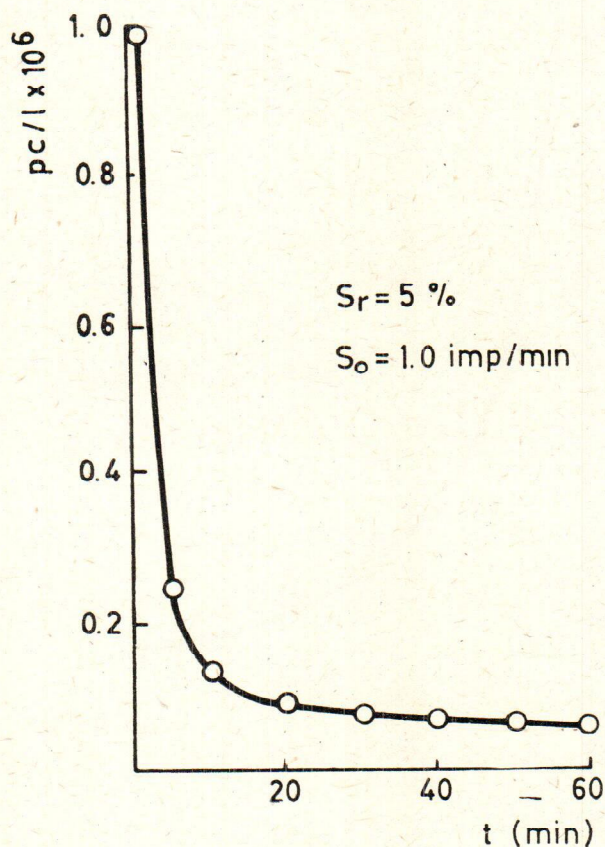
Uz poznatu efikasnost brojača za pojedine radionuklide ili radionuklidske smjese dobivaju se rješavanjem gornje relacije odnosi pojedinih navedenih faktora prikazani u slijedeća tri dijagrama.

Na slici 4 prikazan je odnos ukupne standardne relativne greške mjerenja uzorka izražen u postocima i dužine brojenja uzorka koji je smjesa radionuklida J-131, Cs-137, Ce-144 i Sr-89, ukupne aktivnosti $A = 4.3 \times 10^4$ pCi/l. Standardna greška osnovnog brojenja $S_0 = 0.5$ imp/min. Na slici je označeno područje nesigurnih mjerenja kod navedene koncentracije radionuklidske smjese s obzirom na dužinu brojenja. Vidi se, naime, da kod brojenja kraćeg od 10 min. ukupna relativna greška mjerenja naglo raste. Također se vidi da brojenje i dulje od 60 minuta mnogo ne koristi, jer ukupna relativna greška praktički ostaje konstantna.



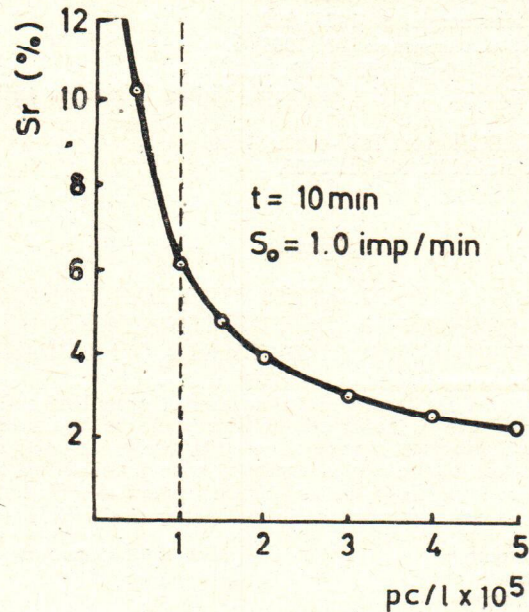
Sl. 4. Ovisnost relativne ukupne standardne greške i dužine brojenja uzorka konstantne koncentracije

Na slici 5 prikazan je odnos dužine brojenja i koncentracije iste radionuklidske smjese uz konstantnu ukupnu relativnu grešku $S_r = 5\%$ i $S_o = 1 \text{ imp/min}$. Iz dijagrama se vidi da kod smanjene dužine brojenja uzorka ispod 10 min. naglo raste minimalna koncentracija radionuklida, koja se može detektirati s navedenom ukupnom relativnom standardnom greškom. Vidi se da i povećanje brojenja iznad 60 minuta ne utječe bitno na donju granicu osjetljivosti brojača.



Sl. 5. Odnos dužine brojenja uzorka i osjetljivosti uređaja

Na slici 6 prikazan je odnos ukupne standardne relativne greške i osjetljivosti uređaja kod konstantne dužine brojenja uzorka $t = 10$ min. i $S_0 = 1$ imp/min. Ovdje se vidi brzi porast ukupne standardne relativne greške kod koncentracija ispod 10^5 pCi/l.



Sl. 6. Odnos ukupne standardne relativne greške i osjetljivosti uređaja

Usporedimo li minimalne koncentracije radionuklida koje su izmjerene pomoću navedenog brojačkog uređaja s maksimalno dozvoljenim koncentracijama radionuklida u vodi za piće kod profesionalne ekspozicije prema našem zakonu, vidimo da se sve maksimalno dozvoljene koncentracije mogu izmjeriti i sa standardnom greškom koja je manja od 5%. Zbog toga možemo slobodno zaključiti da takav brojač za mjerenje radioaktivnosti tekućina, u slučaju zahtjeva pokretljivosti, opremljen tranzistoriziranom elektroničkom opremom, može poslužiti kao dovoljno tačan i siguran indikator radioaktivne kontaminacije vode, čak i u uvjetima profesionalne ekspozicije, a to više je prikladan u izvanrednim uvjetima nuklearnog akcidenta ili ekspozicije nuklearnog oružja, gdje su tolerantne koncentracije radionuklida kudikamo veće.

Literatura

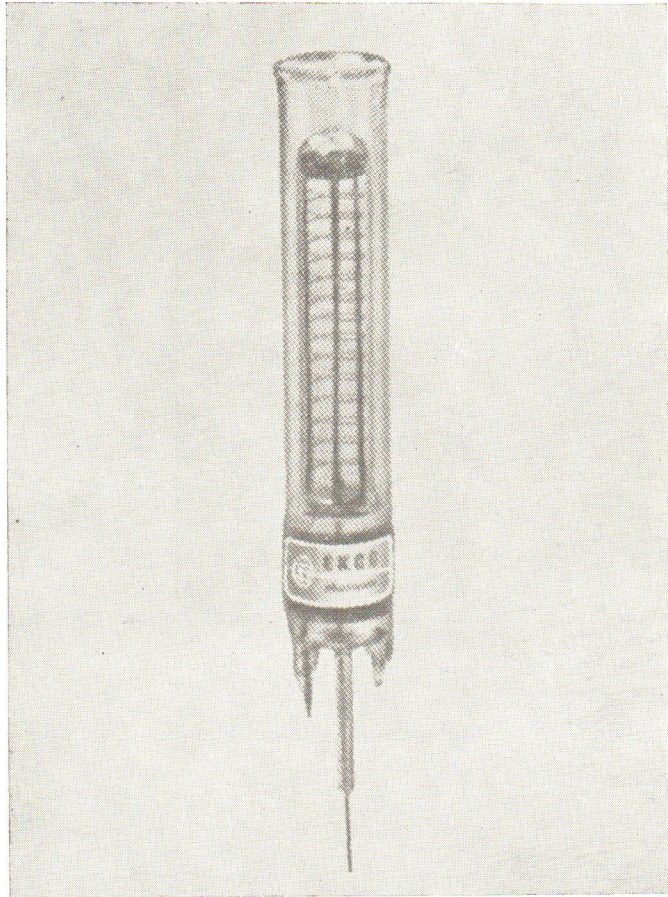
1. Proceedings of a Seminar, Scheveningen, Netherlands, 11-15 December 1961, Organized by Food and Agriculture Organization of the United Nations, WHO and International Atomic Energy Agency, Rome 1962.
2. *Pazdernik, J.*: Isotopenpraxis, *1* (1965) 85.
3. *Aurand, K.*: Atomkernenergie, *10* (1965) 304.
4. *Haberer, K.*: Atomkernenergie, *8* (1963) 102.
5. *Haberer, K., Köle, W.*: Atompraxis, *11* (1965) 1.
6. *Quirk, E. J. M.*: Health Physics, *12* (1966) 1333.
7. *Draganić, I.*: Radioaktivni izotopi i zračenja, Knjiga I, Naučna knjiga, Beograd, 1962.
8. *Hilliard, R. K.*: USAEC Report HW-60689, 1960.
9. Službeni list br. 31, str. 1201, 14. VII 1965.

*Summary*APPLICABILITY AND SENSITIVITY OF GM-COUNTERS
FOR LIQUIDS IN DETERMINATION OF
RADIONUCLIDES AND THEIR MIXTURES

A very simple and rapid method for determination of gross beta activity in water with GM counter for liquids is described. Efficiency of the liquid counter for 10 radionuclides with beta energies ranging from 0.44 MeV (Ce-141) to 2.98 MeV (Pr-144) and for a mixture of the most dangerous fission products has been assessed. Owing to its rapidity and simplicity the method is very suitable for measuring gross beta activity in drinking and other waters in emergency situations.

*Institute for Medical Research
incorporating the Institute of
Industrial Hygiene, Zagreb*

*Received for publication
April 28, 1967*



Sl. 1. GM-brojač za tekućine