

M. Zupan, U. Miklavžič, B. Pucelj
Institut "Jožef Stefan",
Univerza Edvarda Kardelja, Ljubljana

KALIBRACIJA FILTROV ZA DETEKCIJO J-131
V ZRAKU OKOLJA JEDRSKE ELEKTRARNE

CALIBRATION OF FILTERS FOR DETECTION OF
AIRBORNE J-131 IN THE ENVIRONMENT OF
NUCLEAR POWER PLANT

POVZETEK - Opisana je preprosta in čista metoda za kalibracijo filtrov za zbiranje zravnega J in ustreznega Ge(Li) spektrometra. Kot kalibrirani izvor plinastega J-131 je uporabljena radiofarmacevtska vodna raztopina NaJ. Kot primer kalibracije je prikazana merjena porazdelitev absolutne aktivnosti v ogljenem filtru.

ABSTRACT - A simple and clean method for efficiency calibration of filters for collection of airborne I and corresponding Ge(Li) spectrometer is described. As the calibrated source of gaseous I-131 the radiofarmaceutical water solution of NaI is used. As calibration example the absolute activity distribution of I-131, measured in a charcoal filter is shown.

1. UVOD

Nadzor in določanje koncentracij jedrovih radionuklidov znotraj in v okolici jedrskih elektrarn, zlasti še v primeru akcidentov, predstavlja bistven podatek za neozgodno ukrepanje. Specifično aktivnost joda-131 v zraku določamo z meritvijo najizrazitejše črte v spektru žarkov gama Xe-131, ki nastane ob razpadu J-131. Sam jod, ki je le delno vezan na aerosole, lovim v filterih, skozi katere smo prečrpali določen volumen zraka. Kvantitativno določanje koncentracij zahteva zanesljivo umeritev izkoristkov spektrometra gama, izkoristkov zbiranja ter upoštevanje porazdelitve aktivnosti v relativno zelo voluminoznih filterih (filtri za zbiranje atomarnega in molekularnega joda, narejeni iz s TEDA-om impregniranega aktivnega oglja, imajo

prostornino od 60 do 10^3 cm^3) [1,2]. Na voljo so kalibrirani izvori plinastega J-131 ali lahko hlapnega metiljodida (CH_3J) z znano aktivnostjo. Uporabnost takih izvorov je seveda omejena s kratko razpolovno dobo J-131 in neugodnostmi, ki jih ima raba aktivnih hlapov joda zaradi njegovih fizikalno kemičnih lastnosti.

V prispevku je opisana preprosta naprava in postopek, s katerim je mogoče opraviti umeritev z običajno radiofarmaceutsko vodno raztopino aktivnega NaJ. Absolutno aktivnost raztopine moremo določiti brez težav in bojzani zaradi kontaminacije na spektrometru gama pred pričetkom umeritve, aktivni jod pa se sprošča v zrak med črpanjem tik pred vstopom v filter. Postopek omogoča neposredno umerjanje izkoristka celotnega merilnega sistema ali pa zgolj adsorptivnih izkoristkov filtrirnih naprav. Odlikuje ga relativno velika čistoča z majhno verjetnostjo kontaminacije in preprostost.

2. IZKORISTEK DETEKCIJE JODA

Zaradi nizkih specifičnih koncentracij J-131, ki morajo biti merljive (10^{-4} - 10^{-3} Bq/m^3), so lahko v splošnem uporabljani črpalni in merilni časi primerljivi z razpolovno dobo J-131 (8 dni). Pri predpostavki, da sta v času zbiranja vzorca (črpanja zraka) takó koncentracija radionuklida v zraku, kot črpalna hitrost skozi nenasičen filter, približno konstantni, dobimo med iskano aktivnostjo zraka $A (\text{Bq/m}^3)$ in številom impulzov ΔN , prešteti v obdobju t , naslednjo povezavo

$$A = \frac{\lambda^2 \Delta N \cdot t_c}{\eta_f \cdot \eta_g \cdot i \cdot p \cdot (1 - e^{-\lambda t_c}) \cdot e^{-\lambda t_p} \cdot (1 - e^{-\lambda t_m}) \cdot V} \quad (1)$$

Tu so: λ - razpadna konstanta J-131 (s^{-1}); t_c - čas črpanja, t_p - čas, ki je pretekel med koncem črpanja in pričetkom meritve; t_m - čas merjenja; η_f - adsorptivni izkoristek filtra; η_g - izkoristek števca za dano porazdelitev aktivnosti v filtru; i - delež joda, ki je prispel skozi črpalni sistem do filtra; p - razvejitevno razmerje za razpad gama; V - volumen prečrpanega zraka (m^3).

Kadar je izpolnjen pogoj $t_m, t_p \ll 1/\lambda$, kar je v praksi zelo pogosto, se da izraz (1) poenostaviti tako, da v imenovalcu drugi eksponentni člen nadomestimo z ~ 1 , tretjega pa s pro-

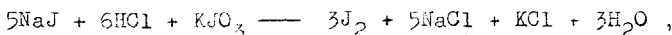
duktom $\sim \lambda \cdot \tau_m$. Ker je dolež merjane žrta p na λ ravnad J-131 znan ($p = 0,82$ za najintenzivnejšo 364 keV žrta Xe-131), uporabljamo umenjanje za določitev produkta $\eta_f \cdot \eta_g \cdot i = \eta$, ki predstavlja celotni izkoristek. Če pri črpanjem zrakta pustimo v sistem znano aktivnost joda-131 A_0 , lahko za določitev η in izpolnjen pogoj $t_g \ll 1/\lambda$, poabimo preprosto (veto) analogro (1):

$$A_0 = \frac{\Delta N}{\eta_f \cdot \eta_g \cdot i \cdot p \cdot \tau_m} \quad (2)$$

Kadar želimo določiti zgolj adsorptivni izkoristek filtra η_f ni nujno poznati vrednost A_0 . V črpalni sistem vgradimo dva identična filtra, postavljena eden za drugim. Pod predpostavko, da je η_f pri obeh filtrih enak, velja $\eta_f = \Delta N_1 / (\Delta N_1 + \Delta N_2)$. Tu sta ΔN_1 in ΔN_2 v enakem času prešteto število sunkov v prvem in drugem filtru, skozi katera smo spustili neznano aktivnost A_0 .

3. UMERITVENI POSTOPEK

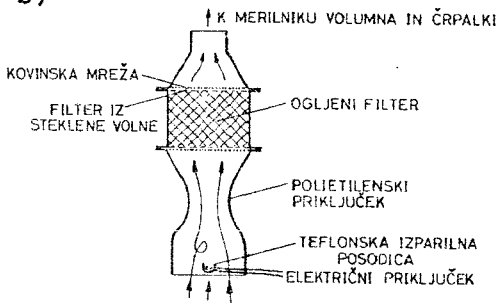
Kot kalibrirani izvor se pri umeritvi uporablja običajna vodna raztopina radiofarmacevtskega NaJ-131, ki je v rabi v nuklearni medicini. Dasiravno zelo higroskopen, je NaJ v vodni raztopini obstojen, tako da je kontaminacija z jodovimi hlapi zanemarljiva. Absolutno umeritev specifične aktivnosti tekočine (Bq/cm^3) je zato brez večjih težav mogoče vedno opraviti, če se na majhen cilindar iz večjih plasti filtrirnega papirja, pritrjen na planšeto (sl. 1a), nanese znan volumen raztopine in nato določi aktivnost takega točkastega izvora z visokoločljivostnim spektrometrom gama. (Izkoristek slednjega v odvisnosti od energije je za tako geometrijo mogoče zelo natančno določiti s standardnimi točkastimi izvori.). Približno $0,5 \text{ cm}^3$ primerno razredčene in s HCl rahlo okisane raztopine z znano aktivnostjo se nato vlije v teflonsko posodico z vgrajenim električnim grelcem in vstavi v politenski ali teflonski cevasti priključek pričvrščen na filtrirni sistem (sl. 1b). Ko se vzorcu doda nekaj kapljic nasičene vodne raztopine KJO_3 , se iz vzorca izloči jod z reakcijo



a)

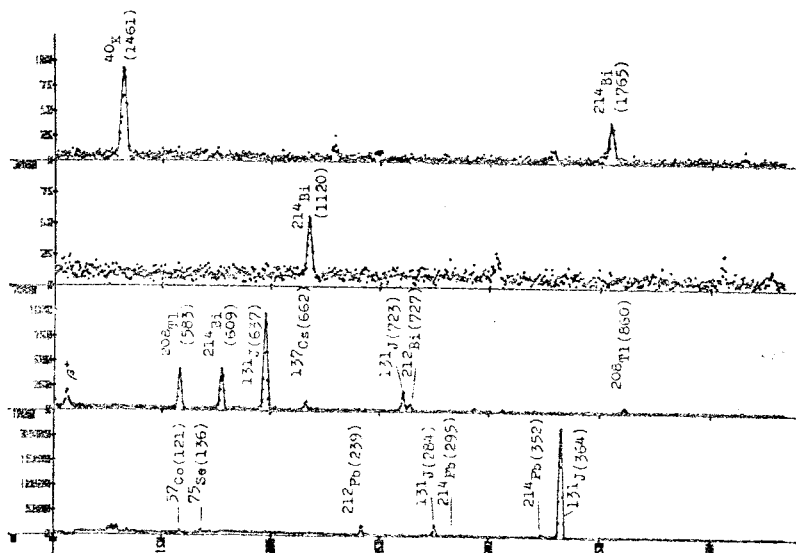


b)

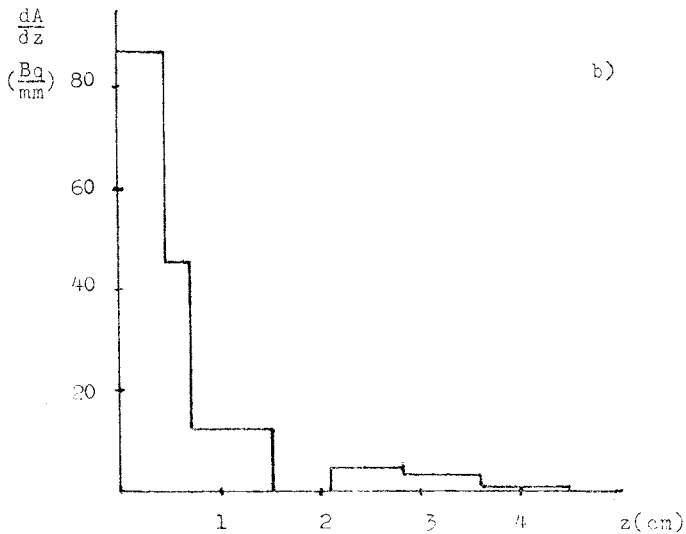
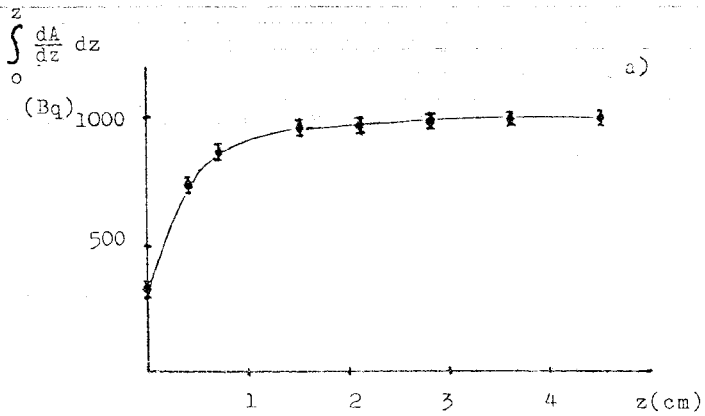


Slika 1. a) Planšeta s filtrirnim papirjem za določanje aktivnosti uporabljane vodne raztopine NaJ - uporabljena kot točkasti izvor na umerjenem Ge(Li) spektrometru.

b) Plastični priključek s teflonsko izparilno posodo za generiranje J-131, pritrjen na umerjeni filter.



Slika 3. Primer kompleksnega spektra ogljenega filtra, ki kaže poleg J-131 prisotnost še petih umetnih radionuklidov. Skozi filter je bilo prečrpanih 22 m³ zraka iz izotopnega laboratorija.



Sl. 2 (a) Porazdelitev celotne aktivnosti od vstopne mrežice do neke debeline filtra z , ki kaže prispevek mrežice ($z=0$) in dejstvo, da po 2 cm globine aktivnost ne narašča več. (b) porazdelitev aktivnosti po filtru.

ki obarva brezbarvno tekočino vijoličasto. Posodico nato med črpanjem zraka ogrejemo z vgrajenim grelcem približno na 80-90°C. V času približno 0,5 h v teflonski posodici ne ostane praktično nič joda. Preizkus tudi pokaže, da je po tem času prečrpavanja residualna aktivnost posodice zanemarljiva in da se vsede približno 7 % celotne aktivnosti na stene polietilenskega priključka - kar pa je mogoče pri računu upoštevati.

Uporaba kalibracijskega postopka je ilustrirana na diagramih sl. 2, kjer je prikazana porazdelitev absolutne aktivnosti J-131 po globini filtra iz aktivnega oglja "Karbozak-B (proiz. "M.Zakić", Kruševac). Meritev, ki je bila opravljena v švdijske namene z laminarno hitrostjo pretoka vzdolž filtra 0,1 m/s, kaže nekatere zanimivosti: okoli 30 % celotne aktivnosti je deponirane na zunanji kovinski mrežici filtra (domnevno poinkani), 3 % na vstopnem filtrirnem papirju, praktično ves preostanek aktivnosti pa v prvih 2 cm oglja. Slednje dejstvo se dobro ujema z znanim podatkom, da je ugoden čas zadrževanja zraka v ogljenem filtru 0,2 s. Ti podatki omogočajo tudi oceno nenatančnosti, ki jih lahko prinese variiranje pogojev črpanja in meritev. Omeniti moramo, da je glavni faktor, ki vpliva na celoten izkoristek meritve z Ge(Li) detektorjem geometrijski: za plast filtra, ki je 2 cm oddaljena od površine števca pade izkoristek za faktor ~ 3, atenuacija 364 keV črte pa za isto plast poveča ta faktor le za približno 25 %. Odtod lahko napravimo konservativno oceno 100 % napake, ki jo lahko povzroči drastična preporazdelitev aktivnosti po globini filtra.

4. ZAKLJUČEK

Izkušnje povezane z večjimi akcidenti pri jedrskih napravah so v preteklosti pokazale, da lahko dajejo v izjemnih pogojih visokega ozadja standardne meritve joda z enokanalnimi scintilacijskimi spektrometri usodno nezanesljive podatke. Odtod potreba po meritvah z geometrijsko manjšimi visokoločljivostnimi polvodniškimi spektrometri gama, ki omogočajo pod pogojem, da so pravilno umerjeni na določen tip filtra in črpalne pogoje, zanesljivejše meritve. Opisano umerjanje izkoristka z vodno raztopino NaJ-131 se ponuja kot enostavna in zanesljiva metoda primerna zlasti tam, kjer se želimo izogniti možnosti kontaminacije laboratorija in aparatur ali uporabi kalibriranih teže dostopnih in in nepriročnih plinastih izvorov.

5. LITERATURA

- [1] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, RdSchr. d. BMI v. 15.10.1979 - RSII 4 - 517030/2
- [2] L.Fitoussi, Principes Generaux des Techniques de Prelevement et de Mesure pour le Controle des Effluents Radioactifs des Installations Nucleaires, IAEA-3M-219/56, 1978 (IAEA Symposium, Portorož, 5-9 Sept. 1977, pp. 109-116)