

Vízben oldott radon mérése folyadékszcintillációs (LSC) technikával

Osváth Szabolcs és Homoki Zsolt

Országos Közegészségügyi Központ (OKK)

Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Kutató Igazgatóság
(OSSKI)

Lakossági és Környezeti Sugáregészségügyi Osztály (LKSO)

XL. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam

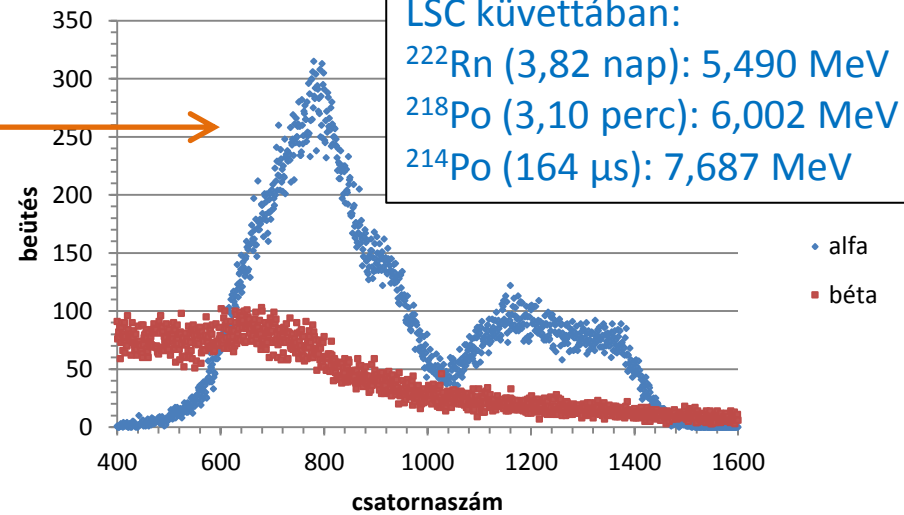
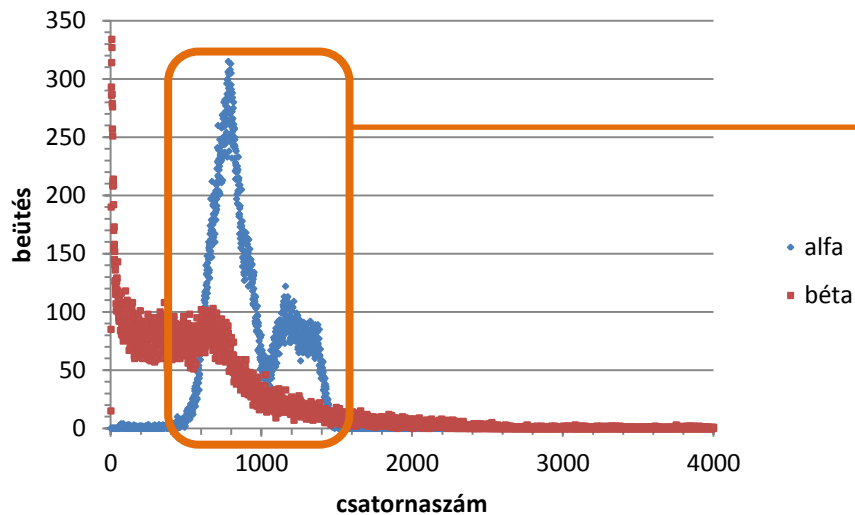
Hajdúszoboszló, 2015. április 21-23.

A vízben oldott radon aktivitáskoncentrációjának mérése

- *A Tanács 2013/51/EURATOM irányelve (2013. október 22.) a lakosság egészségének az emberi fogyasztásra szánt vízben található radioaktív anyagokkal szembeni védelmére vonatkozó követelmények meghatározásáról*
- Meg kell határozni a vízben oldott radon aktivitáskoncentrációját; parametrikus érték: 100 Bq/l
- Intézetünkben akkreditált módszer (**M-LKSO-07**): a vízből a benne oldott radont levegő átbuborékolatásával kihajtjuk, és Durrige RAD7 műszerrel mérjük (ionimplantált Si alapú detektort alkalmazva a leánynuklidokon keresztül).
- Cél: egy független módszerrel alátámasztani a „kibugyborékolatós” módszer eredményeit. (Hátha gyorsabban és egyszerűbben is lehet, mert jó eséllyel muszáj lesz...)
- **MSZ 19383:1988 Vízben lévő rádium-226 és radon-222 aktivitáskoncentrációjának meghatározása folyadékszintillációval**: a vízből a benne oldott radont „házilag” készített koktélba extraháljuk, és LSC-vel mérjük.

Radonmérés LSC-vel: 2 eset van

- (1) A vízminta elegyítése [vízzel elegyedő] koktéllal
 - „Nagy” aktivitáskoncentrációjú vízmintából 10 ml-t elegyítve 10 ml koktéllal a mérés közvetlenül elvégezhető.
 - Kimutatási határ: kb. 2 Bq/l, Quantulus-szal 0,2Bq/l.
 - Pl. ELTE, Horváth Ákosék
- (2) A Rn extrahálása [vízzel nem elegyedő] koktélba
 - A szabványban szereplő koktél nem elegyedik vízzel. Összetétele: 4 g/l PPO [2,5-difenil-oxazol] és 0,1 g/l POPOP [1,4-bisz-(5-feniloxazol-2-il)-benzol] toluolban oldva.
 - Pl. Hydrosys Labor, kimutatási határunk: 1 Bq/l (NAT-1-1714/2012).



A szabványon innen és túl

- Meg akartuk érteni a szabvány elméleti háttérét (a radon extrakcióját)
- *M. G. Cantaloub, J. F. Higginbotham, L. Semprini: The determination of Rn partition coefficients for several liquid scintillation cocktails. 43rd Bioassay Analytical & Environmental Radiochemistry Conference, Charleston, Nov 9-13, 1997*
- *Michael G Cantaloub: Aqueous-Organic Partition Coefficients for Rn-222 and Their Application to Radon Analysis by Liquid Scintillation Methods. MSc Thesis, Oregon State University, 2000*
- A szabvány alkalmazása felvet néhány gyakorlati problémát (eszközök kiválasztása, mintavétel, mintaszállítás stb.)
- *Fred W. Leaney and Andrew L. Herczeg: A rapid field extraction method for determination of radon-222 in natural waters by liquid scintillation counting. Limnology and Oceanography: Methods 4, 2006, 254-259*
- Lehet-e javítani a szabvány negyedszázados módszerén (pl. az azóta megjelent koktélok alkalmazásával)?

A radon oldódása folyadékokban

- Egy gáz folyadékokban való oldhatóságát az Ostwald-koefficienssel (L) lehet számszerűen kifejezni: $L_{oldat} = \frac{c_{oldat}}{c_{gáz}}$
- Esetünkben a radonra: $L_{víz} (20\text{ °C}) = 0,285$
- $L_{toluol} = 13,24$ (további szerves oldószerekre, LSC koktélokra is vannak adatok)
- Ezekből a radon megoszlási hányadosa: $K = \frac{L_{toluol}}{L_{víz}} \approx 44$
- A térfogatok (víz, toluol, légbuborék) és a toluolban mérhető radonaktivitás ismeretében az edényben lévő radon összaktivitása kiszámolható.
- Felhasznált irodalom: *M. G. Cantaloub, J. F. Higginbotham, L. Semprini: The determination of Rn partition coefficients for several liquid scintillation cocktails. 43rd Bioassay Analytical & Environmental Radiochemistry Conference, Charleston, Nov 9-13, 1997*

Mikor és hol szökik meg a radon?

- A ^{222}Rn felezési ideje 3,82 nap
 - Hetekig tárolni értelmetlen.
- Mintavétel
 - Könnyen kigázosodik a minta.
- Mintaszállítás
 - Üvegpalack, ásványvizes flakon, spriccflaska; csurig töltve, parafilm vagy toluolos „záróréteg” (de nem együtt a kettő) ...
- Átöntés (a mintavételi edényből rázótolcsérbe)
 - Nagyon úgy néz ki, hogy ekkor lép fel a legnagyobb veszteség. Nyitott edényből már néhány perc alatt jelentős mennyiségű radon szökik meg.
- LSC mérés közben
 - Műanyag küvettából egy felezési idő alatt a radon fele elszökött.
 - Üvegeküvettából (betétes küvettakupak!) több nap alatt alig (<10%) tapasztaltunk szökést.



Az ausztrál megoldás

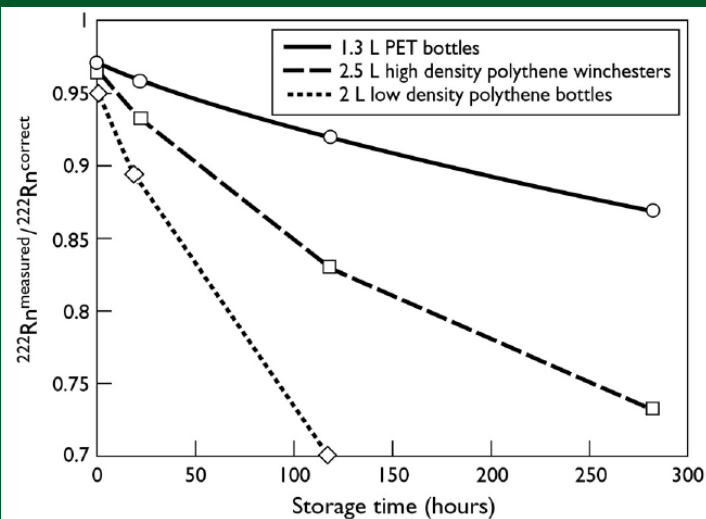


Fig. 2. Radon losses during storage for different types of plastic containers. (Note that ^{222}Rn analyses for all vials have been corrected for decay.)

A radon szökési sebessége különböző ásványvizes palackokból. 1 nap alatt 5-10% a veszteség.

Extrakció rázótolcsér nélkül. Nem könnyű pontosan illeszkedő csőrt szerezni.

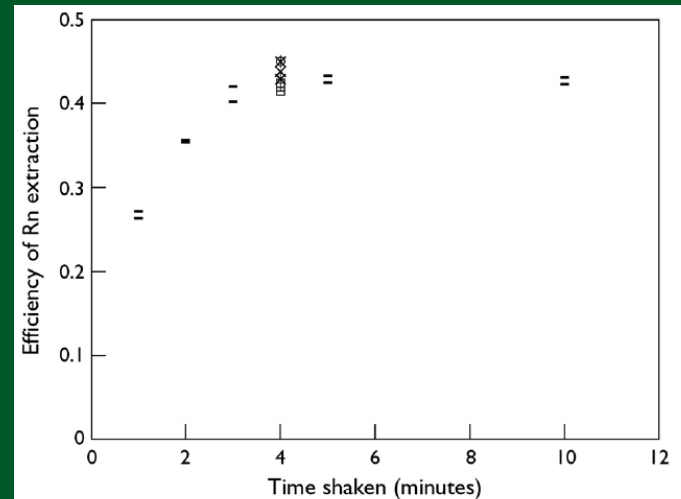


Fig. 3. Efficiency of extraction of radon from water collected in 1.3-L PET bottles and transferred to vial-sized mineral oil as a function of time shaken. Also shown is the variability resulting from different users of the method.

1-2 l vízből néhány perces rázással a radon 40%-a átvihető 20 ml szerves oldószerbe. Jobb „kitermelés” a megoszlási hányadosok alapján nem lehetséges.

- Felhasznált irodalom: *Fred W. Leaney and Andrew L. Herczeg: A rapid field extraction method for determination of radon-222 in natural waters by liquid scintillation counting. Limnology and Oceanography: Methods 4, 2006, 254-259*

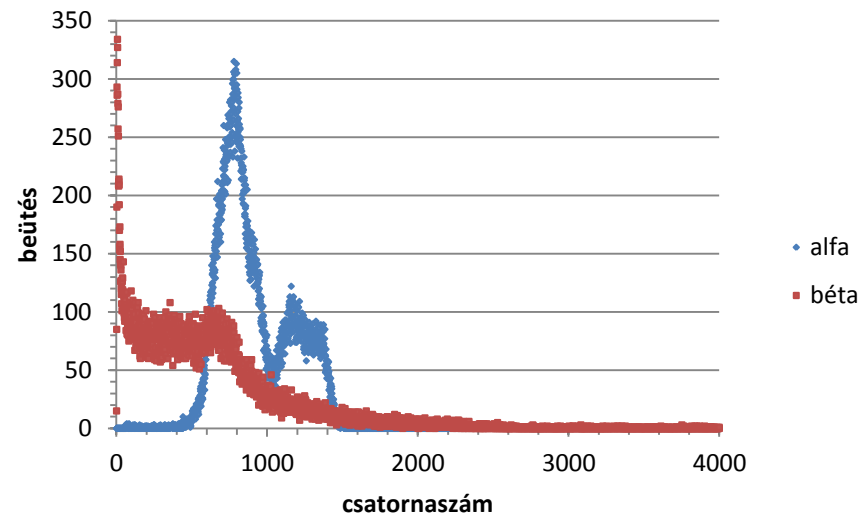
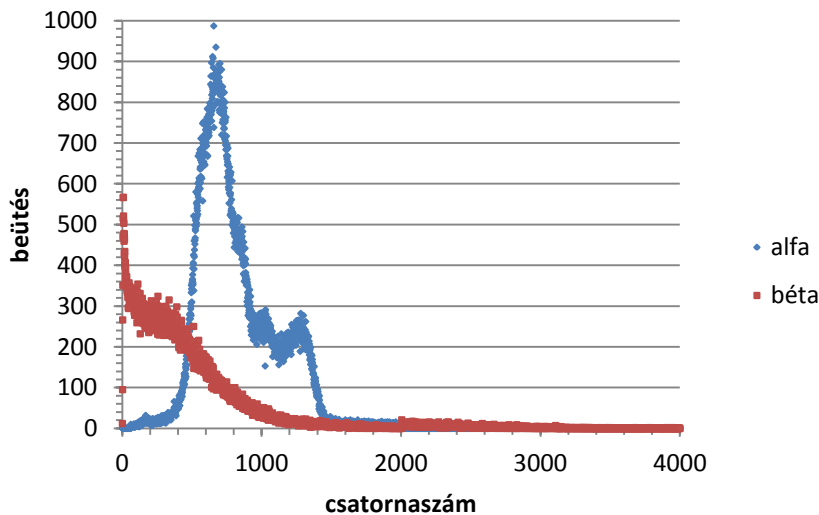
Saját kísérletek 1.

- Vizsgált vízminta: Juventus gyógyvíz a Rudas Ivócsarnokból
(az irodalom szerint közel állandó a radontartalma: **Resch Anita: A gellérthegy radonanómália vizsgálata. ELTE diplomamunka, 2009**)
- LSC mérések: Tri-Carb 2900TR (Perkin Elmer)
- α/β diszkrimináció: 125 ns
- Számolt kimutatási határ (60 perces mérés esetén):
2 mBq, azaz néhány mBq/l



Saját kísérletek 2.

- Mintavétel és extrakció: sima (pl. Mizse) vs. egyenetlen (pl. Visegrádi, szürke kupakos Borszéki) felületű ásványvizes palackba, laboratóriumi spriccflaskába: *az egyenetlen felület veszteséget okoz, de ez tömegméréssel és számolással korrigálható.*
- Extrakció a szabvány szerinti koktélba vagy tiszta toluolba (mérés előtt hozzá kell adni néhány ml kereskedelemben kapható koktél, pl. Ultima Gold LLT-t):
nincs érdemi különbség.
- A szerves fázist a mintavétel után közvetlenül, vagy a laborban adjuk hozzá:
nincs komoly különbség.
- Az „ausztrál csőr”-ös elválasztást a helyszínen vagy a laborban végezzük el:
nem muszáj a helyszínen.
- A spektrum alakja nem állandó (a változó kioltás [quench] miatt):
minden spektrumot egyedileg kell kiértékelni [a ROI kijelölése].



Eredmények [Bq/l]

Minta	Mért érték (²²² Rn)	Referencia
Régi Hungária gyógyvíz (Rudas Ivócsarnok), ²²⁶ Ra-ból keletkező ²²² Rn	348-410	447±18 (bepárlási maradék gamma- spektrumából számolt ²²⁶ Ra)
Kék kupakos Borszéki ásványvíz, ²²⁶ Ra-ból keletkező ²²² Rn	141-193	238±17 (bepárlási maradék gamma- spektrumából számolt ²²⁶ Ra)
Friss Juventus gyógyvíz (Rudas Ivócsarnok)	84-111	96-117 (²²² Rn az akkreditált kibugyborékolatós módszerrel)

Köszönöm szépen a türelmet!

