



**Státní ústav radiační ochrany, v.v.i.**

Certifikovaná metodika

## Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí

Vypracoval

Funkce	Jméno	Datum	Podpis
Vedoucí oddělení	Mgr. Michal Fejgl, Ph.D.	6.5.2019	
Pracovník oddělení	Ing. Alena Kelnarová	6.5.2019	

Přezkoumal a schválil

Funkce	Jméno	Datum	Podpis
Ředitel	RNDr. Zdeněk Rozlívka	1.7.2019	
Archivní označení		Číslo revize	0
Výtisk číslo	1	Datum účinnosti	1.1.2020

Rozdělovník

Výtisk	Převzal	Datum	Podpis

**Vypracovala:** Ing. Alena Kelnarová

Výsledek projektu Bezpečnostního výzkumu České republiky, Projekt MV ČR – BV „Strategie řízení nápravy území po radiační havárii s identifikačním kódem VH20172020015

Rok uplatnění metodiky: 2020

**Oponenti:** RNDr. František Houser, Ph.D.

Ing. Radek Pošvař



Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 3 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

## OBSAH

<b>1. Cíl metodiky .....</b>	<b>5</b>
<b>2. Specifikace metody.....</b>	<b>5</b>
<b>3. Chemikálie a pomůcky.....</b>	<b>6</b>
<b>4. Přístroje .....</b>	<b>6</b>
<b>5. Postup stanovení.....</b>	<b>7</b>
<b>5.1. Chemická předúprava a separace plutonia .....</b>	<b>7</b>
5.1.1. Příprava vzorků půdy, potravin nebo vegetace.....	7
5.1.2. Příprava vzorků aerosolových filtrů.....	7
5.1.3. Příprava vzorků močí.....	7
5.1.4. Příprava vzorků vody .....	8
<b>5.2. Příprava vzorků do formy určené k měření pomocí LSC a alfa spektrometrie.....</b>	<b>9</b>
<b>5.3. Měření aktivity <math>^{241}\text{Pu}</math> kapalinovou scintilační spektrometrií – LSC .....</b>	<b>9</b>
5.3.1. Princip metody: .....	9
5.3.2. Postup měření: .....	9
5.3.3. Kalibrace:.....	10
<b>5.4. Měření aktivity <math>^{242}\text{Pu}</math> spektrometrií alfa .....</b>	<b>10</b>
5.4.1. Postup měření: .....	10
<b>5.5. Výpočet aktivity <math>^{241}\text{Pu}</math> .....</b>	<b>10</b>
5.5.1. Výpočet aktivity $^{241}\text{Pu}$ .....	10
5.5.2. Výpočet standardní nejistoty .....	11
5.5.3. Výpočet účinnosti měření .....	11
5.5.4. Výpočet chemického výtěžku .....	11
5.5.5. Výpočet NVA a NDA .....	12
5.5.6. Výpočet měrné aktivity .....	12
<b>5.6. Vyjadřování výsledků .....</b>	<b>12</b>
<b>6. Řízení kvality.....</b>	<b>13</b>
6.1. Vnitřní kontrola.....	13
6.2. Vnější kontrola.....	13
<b>7. Vedení záznamů .....</b>	<b>13</b>
<b>8. Novost postupu .....</b>	<b>14</b>
<b>9. Popis uplatnění metodiky .....</b>	<b>14</b>
<b>10. Použitá literatura.....</b>	<b>14</b>

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 4 z 18
	Stanovení aktivity <sup>241</sup> Pu ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

<b>11.</b>	<b><i>Příloha: Validace stanovení <sup>241</sup>Pu ve vodě .....</i></b>	<b>15</b>
11.1.	Opakovatelnost .....	15
11.2.	Linearita a rozsah .....	15
11.3.	Správnost a nejmenší detekovatelná aktivita (NDA) .....	16
11.4.	Zhášecí křivka .....	17

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 5 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

## 1. Cíl metodiky

Cílem metodiky je rychlé stanovení  $^{241}\text{Pu}$  ve vzorcích životního prostředí pomocí extrakční chromatografie a kapalinové scintilační spektrometrie. Metodika je určena pro pracoviště SÚRO Praha a laboratoře začleněné v systému monitorování radiační situace České republiky (MRS).

## 2. Specifikace metody

Za základ byla zvolena kombinace metod IAEA/AQ/11 a IAEA/AQ/37. Pevné vzorky se mineralizují kyselinovým rozkladem nebo alkalickým tavením, kapalně vzorky se odpařují nebo koncentrují srážením.

Ke vzorku je přidán monitor výtěžku  $^{242}\text{Pu}$ , vzorek je mineralizován, izotopy Pu jsou ze vzorků separovány extrakční chromatografií. Poté je vzorek rozdělen, jedna polovina je proměřena metodou kapalinové scintilační spektrometrie (LSC), tím je stanovena aktivita izotopu  $^{241}\text{Pu}$ . Druhá polovina je proměřena spektrometrií alfa, čímž je stanovena aktivita ostatních izotopů Pu a na základě přidaného monitoru výtěžku  $^{242}\text{Pu}$  je stanoven také výtěžek separace.

Chemická příprava vzorků vod před měřením trvá jednomu analytikovi 6 hodin, příprava ostatních typů vzorků 18-24 hodin. Vzorky je možné zpracovávat v sériích po dvou až třech.

Tabulka 1: Charakteristika nuklidů Pu

Izotop	Typ přeměny	Energie (MeV)	Zastoupení (%)	Poločas (roky)
$^{241}\text{Pu}$	$\beta$	0,021		14,33
$^{239}\text{Pu}$	$\alpha$	5,156	73,2	$2,41 \cdot 10^4$
		5,143	15,1	
		5,105	10,6	
$^{240}\text{Pu}$	$\alpha$	5,168	73,5	6564
		5,124	26,4	
$^{238}\text{Pu}$	$\alpha$	5,499	71,6	87,7
		5,456	28,3	
$^{242}\text{Pu}$	$\alpha$	4,901	77,5	$3,73 \cdot 10^5$
		4,856	22,4	

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 6 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

### 3. Chemikálie a pomůcky

Ke stanovení se použijí kromě běžného laboratorního vybavení tyto a chemikálie a pomůcky:

*Standardní roztok  $^{241}\text{Pu}$*  – certifikovaný etalonový roztok o známé aktivitě;

*Standardní roztok  $^{242}\text{Pu}$*  – certifikovaný etalonový roztok o známé aktivitě;

*Ultima Gold AB* – scintilační koktejl (výrobce Perkin-Elmer);

*Silně bazický měnič aniontů* – Např. DOWEX 1x4 nebo jiný vhodný měnič aniontů se zrněním 100-200 mesh. Před použitím je třeba měnič vyčistit standardní procedurou. Do kolonek se plní v nabobtnalé formě;

*Pufr pro elektrodepozici* – 0,3 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  upravený na pH 1,6 pomocí koncentrované  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ;

*Síran sodný 0.3 M* – 4,26 g  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  se rozpustí ve 100 ml destilované vody;

*Roztok  $\text{Fe}^{3+}$  (10 mg/ml Fe)* – 4,26 g  $\text{FeCl}_3$  se rozpustí ve 100 ml destilované vody;

*Amoniak  $\text{NH}_4\text{OH}$*  – vodný roztok 25-29%;

*Kyselina dusičná 8M* – 556 ml koncentrované  $\text{HNO}_3$  se doplní destilovanou vodou do 1 l;

*Dusitan sodný 2M* – 6,9 g  $\text{NaNO}_2$  se rozpustí v 50 ml destilované vody;

*Kyselina chlorovodíková 9 M* – 800 ml koncentrované  $\text{HCl}$  se doplní destilovanou vodou do 1 l;

*Kyselina chlorovodíková 1 M* – 69,4 ml koncentrované  $\text{HCl}$  se doplní destilovanou vodou do 1 l;

*Směsný roztok 0,1 M  $\text{NH}_4\text{I}$  v 9 M  $\text{HCl}$*  – připravený rozpuštěním 0,54 g  $\text{NH}_4\text{I}$  v 40 ml 9 M  $\text{HCl}$ ;

*Kyselina chlorovodíková 0,1 M* – 4,4 ml koncentrované  $\text{HCl}$  se doplní vodou bez přítomnosti  $^3\text{H}$  do 500 ml;

Plastové optické měřicí kyvety (vialky) pro LSC;

Nerezové měřicí disky pro elektrodepozici.

### 4. Přístroje

Spektrometrický systém pro měření záření alfa s PIPS detektory a s vyhodnocovacím softwarem.

Kapalinový scintilační spektrometr. Pro účely vypracování této metody byl použit LSC přístroj Tricarb 2770 TR/SL používající zhášecí parametr tSIE.

Zařízení pro elektrodepozici.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 7 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

## 5. Postup stanovení

### 5.1. Chemická předúprava a separace plutonia

#### 5.1.1. Příprava vzorků půdy, potravin nebo vegetace

Viz certifikovaná metodika – Rychlé stanovení izotopů Pu, Am a Cm ve vzorcích půdy, rostlinstva a potravin.

#### 5.1.2. Příprava vzorků aerosolových filtrů

Viz VDI 124 - Stanovení aktivity plutonia, americia a curia.

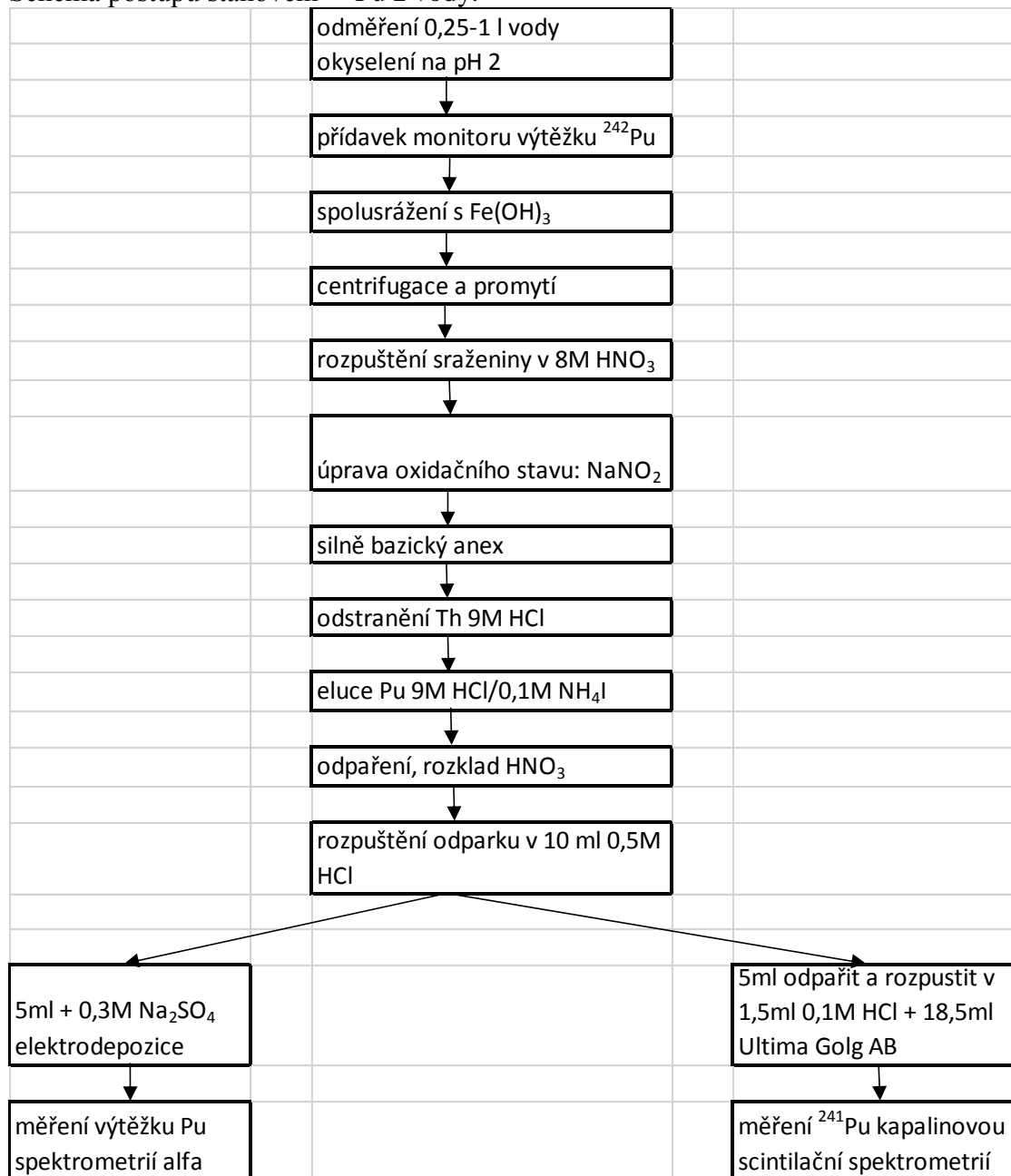
#### 5.1.3. Příprava vzorků moči

Viz Metodika SÚRO 32 – 05 – 02 – 2 - Stanovení transuranů v exkretech.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 8 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

#### 5.1.4. Příprava vzorků vody

Schéma postupu stanovení  $^{241}\text{Pu}$  z vody:



1. Do kádinky se odměří 0,25-1 litr vody, okyselené  $\text{HNO}_3$  (5 ml koncentrované  $\text{HNO}_3$  na 1 l vody). Zpracováváný objem je úměrný očekávané aktivitě. Přidá se odměřený monitor výtěžku pro alfa spektrometrii – 60-80 mBq  $^{242}\text{Pu}$ .
2. Přidá se 5 ml  $\text{Fe}^{3+}$  (10 mg/ml Fe) a sraží se za horka a stálého míchání  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  amoniakem do pH 8.
3. Sraženina se po usazení odstředí a promyje vodou s kapkou amoniaku.
4. Sraženina se rozpustí v cca 20 ml 8 M  $\text{HNO}_3$ .



Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 9 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

5. Přidá se 2 ml 2 M  $\text{NaNO}_2$  a nechá se stát minimálně 30 minut.
6. Přípravený anex se naplní do skleněné kolony a promyje 25 ml koncentrované  $\text{HCl}$  a 25 ml 8 M  $\text{HNO}_3$ .
7. Vzorek z bodu 5. se nalije na kolonu a kolona se promyje 40 ml 8 M  $\text{HNO}_3$  a 30 ml 9 M  $\text{HCl}$  (odstranění Am, Cm a Th).
8. Plutonium se eluuje 40 ml čerstvě připraveného roztoku 0,1 M  $\text{NH}_4\text{I}$  v 9 M  $\text{HCl}$ .
9. Eluát se odpaří do sucha a odparek se mineralizuje 2 x 2 ml  $\text{HNO}_3$ .

## 5.2. Příprava vzorků do formy určené k měření pomocí LSC a alfa spektrometrie

1. Odparek po separaci se rozpustí v 10 ml 1 M  $\text{HCl}$ .
2. 5 ml se odpipetuje do kádinky na stanovení  $^{241}\text{Pu}$ , odpaří se do sucha a odparek se převede do PE měřící vialky po rozpuštění v 1,5 ml (2 x 0,75 ml) 0,1 M  $\text{HCl}$  bez  $^3\text{H}$ . Do vialky se přidá 18,5 ml scintilačního koktejlu Ultima Gold AB a protřepe se a proměří podle kapitoly 5.3.
3. Připraví se dva vzorky pro měření pozadí pro LSC. Do vialky se napipetuje 1,5 ml 0,1 M  $\text{HCl}$  bez  $^3\text{H}$  a 18,5 ml scintilačního koktejlu Ultima Gold AB a protřepe se a následně se provede jeho proměření podle kapitoly 5.3.
4. Ke zbylým 5 ml roztoku z bodu 1 se přidá 1 ml 0,3 M  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  a elektrodepozicí se připraví alfaspektrometrický terčík (viz metodika SÚRO 32 – 05 – 02 – 2 - Stanovení transuranů v exkretch). V tomto dílu vzorku se stanoví výtěžek separace měřením spektrometrií alfa monitorem  $^{242}\text{Pu}$ . Terčík se dále proměřuje podle kapitoly 5.4.

## 5.3. Měření aktivity $^{241}\text{Pu}$ kapalinovou scintilační spektrometrií – LSC

V této kapitole je popsán postup měření pomocí LSC roztoku plutonia získaného provedením postupu v kapitolách 5.1. a 5.2.

### 5.3.1. Princip metody:

Pomocí LSC se proměří směs roztoku získaného v bodě 2 (kap.5.2.) s kapalným scintilačním koktejlem.

Pro stanovení  $^{241}\text{Pu}$  se používá scintilační koktejl Ultima Gold AB.

LSC spektrometr na základě proměření vzorku vytvoří energetické spektrum emitovaných částic alfa a beta.

### 5.3.2. Postup měření:

Vialky s měřenou směsí z bodů 2 a 3 (kap.5.2.) se vloží do posouvacích kazet v pořadí:

- vzorek pozadí,
- měřené vzorky
- vzorek pozadí

Vialky se umístí do prostoru automatického měniče vzorků kapalinového scintilačního spektrometru, který je i s detekčním systémem temperován přibližně na 13 °C. Vzorky se v

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 10 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

měníči vytemperují a ponechají se v klidu po dobu asi 2 hodin, za účelem vyhasnutí nežádoucích foto a chemiluminiscencí.

K měření vzorků se nastaví energetická oblast pro měření  $^{241}\text{Pu}$  0–25 keV, doba měření 120 minut. Výstupem jsou hodnoty cpm (počet pulsů za minutu) pro zvolenou oblast zájmu (ROI) a zhášecí parametr. Postup je popsán pro parametr transformed Spectral Index (tSIE), který je generován LSC přístrojem pro každý vzorek jako indikátor zhášení. Vyhodnocení získaných výsledků je popsáno v kapitole 5.5.

### 5.3.3. Kalibrace:

Účinnost měření se stanoví ze zhášecí křivky, která se sestrojí předem. Zhášecí křivka je závislost zhášecího parametru tSIE na účinnosti měření a je popsána rovnicí uvedenou v kapitole 5.5.

Pro kalibraci se připraví kalibrační sada 8 vzorků se standardním přídatkem  $^{241}\text{Pu}$  nebo  $^3\text{H}$ , které se nadávkuje do vialek podle bodu 2 (kap.5.2.) Do těchto vzorků se přidá chloroform jako zhášecí činidlo a to v takovém množství, aby kalibrační sadou byl pokryt rozsah tSIE v analyzovaných vzorcích (viz příloha 11.4.). Výstupem z kalibrace je relace mezi hodnotou zhášecího parametru tSIE a účinností detekce, vyjádřená jako  $\eta$  (viz kapitola 5.5.).

## 5.4. Měření aktivity $^{242}\text{Pu}$ spektrometrií alfa

V této kapitole je popsán postup měření pomocí alfa spektrometrie alfaspektrometrického terčíku získaného provedením postupu v kapitolách 5.1. a 5.2.

### 5.4.1. Postup měření:

Pro kvalitativní a kvantitativní vyhodnocení aktivity radionuklidů s emisí částic alfa u vzorků připravených elektrodepozicí na nerezových discích se používají spektrometrické aparatury s polovodičovými detektory a vzorky umístěnými v podtlakových komorách. K tomuto účelu je nutno před proměřováním terčíků připravených ze vzorku mít provedenou energetickou a přibližnou účinnostní kalibraci spektrometrického zařízení (viz Certifikovaná metodika: *Rychlé stanovení izotopů Pu, Am a Cm ve vzorcích půdy, rostlinstva a potravin*).

Po ukončení měření se spektrum vynese do grafu, na základě energetické kalibrace se určí poloha píku  $^{242}\text{Pu}$  a po odečtení pozadí v příslušné ROI se na základě přibližné účinnostní kalibrace vypočítá z plochy píku a z přidané aktivity  $^{242}\text{Pu}$  přibližný výtěžek chemické separace.

Pozadí se stanovuje proměřením čistých (nepoužitých) disků. Vhodná měřicí doba pro jeho stanovení je řádu dnů a naměřených hodnot lze použít opakovaně pro více měřených vzorků.

## 5.5. Výpočet aktivity $^{241}\text{Pu}$

Výpočty jsou prováděny s výsledky měření z kapitoly 5.3.2.

### 5.5.1. Výpočet aktivity $^{241}\text{Pu}$

Aktivita  $^{241}\text{Pu}$  se spočítá:

$$A_{Pu241} = \frac{\frac{N_S}{t_S} - \frac{N_B}{t_B}}{\eta \cdot R}$$

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 11 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

kde  $N_S$  počet impulsů vzorku v oblasti zájmu pro  $^{241}\text{Pu}$   
 $N_B$  počet impulsů pozadí v oblasti zájmu pro  $^{241}\text{Pu}$   
 $t_S, t_B$  doby měření vzorku a pozadí (s)  
 $\eta$  účinnost měření  
 $R$  chemický výtěžek separace

### 5.5.2. Výpočet standardní nejistoty

Standardní nejistota aktivity  $^{241}\text{Pu}$  se spočítá podle:

$$\Delta A_{Pu241} = A_{Pu241} \cdot \sqrt{0,05^2 + \Delta R_{Pu242}^2 + \frac{N_S + \frac{t_S}{t_B} N_B}{(N_S - \frac{t_S}{t_B} N_B)^2}}$$

kde  $\Delta R_{Pu242}$  nejistota stanovení výtěžku separace  
0,05 odhad nejistoty zpracování vzorku (vážení, odměřování, ředění)

### 5.5.3. Výpočet účinnosti měření

Účinnost měření  $\eta$  se vypočte z rovnice zhášecí křivky, která byla stanovena experimentálně:

$$\eta = -0,000213 \cdot tSIE^2 + 0,381 \cdot tSIE - 136$$

### 5.5.4. Výpočet chemického výtěžku

Chemický výtěžek separace  $R$  a jeho nejistota  $\Delta R$  se spočítá z měření  $^{242}\text{Pu}$  spektrometrií alfa (kapitola 5.4.):

$$R = \frac{(N_{Pu242} - N_{B242})}{t_S \cdot A_{Pu242} \cdot \varepsilon}$$

$$\Delta R = R \cdot \sqrt{\frac{N_{Pu242} + \frac{t_S}{t_B} N_{B242}}{(N_{Pu242} - \frac{t_S}{t_B} N_{B242})^2}}$$

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 12 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

kde	$A_{\text{Pu}242}$	aktivita $^{242}\text{Pu}$ přidaného ke vzorku (Bq)
	$N_{\text{Pu}242}$	plocha píku $^{242}\text{Pu}$ v příslušné oblasti zájmu alfa-spektra
	$N_{\text{B}242}$	plocha píku pozadí v příslušné oblasti zájmu alfa-spektra
	$t_s$	doba měření vzorku (s)
	$t_B$	doba měření pozadí (s)
	$\varepsilon$	detekční účinnost spektrometrie alfa $\approx 0,3$

### 5.5.5. Výpočet NVA a NDA

Nejmenší významná aktivita NVA a nejmenší detekovatelná aktivita NDA ve vzorku na hladině významnosti 95 % se vypočítá podle vzorce:

$$NVA = \frac{1,65 \cdot \sqrt{N_B \cdot \left(1 + \frac{t_B}{t_s}\right)}}{\eta \cdot t_s \cdot R}$$

$$NDA = \frac{2,71}{\eta \cdot t_s \cdot R} + 2 \cdot NVA$$

### 5.5.6. Výpočet měrné aktivity

Objemová aktivita se spočte podle vzorce:

$$A_{V\text{Pu}241} = \frac{A_{\text{Pu}241}}{V}$$

Hmotnostní aktivita se spočte podle vzorce:

$$A_{m\text{Pu}241} = \frac{A_{\text{Pu}241}}{m}$$

kde	$A_V$	objemová aktivita (Bq/l, Bq/m <sup>3</sup> )
	$A_m$	hmotnostní aktivita (Bq/kg)
	$V$	objem vzorku (litry nebo m <sup>3</sup> )
	$m$	hmotnost vzorku (kilogramy)

## 5.6. Vyjadřování výsledků

Pokud je aktivita  $^{241}\text{Pu}$   $A_{\text{Pu}241}$  vyšší než nejmenší významná aktivita NVA, uvede se jako výsledek stanovení  $A_{\text{Pu}241} \pm \Delta A_{\text{Pu}241}$ . V ostatních případech se uvede jako výsledek stanovení “<NVA”.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 13 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

## 6. Řízení kvality

### 6.1. Vnitřní kontrola

- Stanovení duplicitních vzorků každý 20. vzorek (podle množství vzorku)
- Ověření účinnosti měření pomocí standardního přídatku u vzorků s neobvyklou hodnoty tSIE.
- Kontrola pozadí detektorů alfaspektrometru. V případě zamoření komůrky se vyčistí a úspěšnost vyčistění se prověří operativním proměřením prázdného alfaspektrometrického terčíku.
- Kontrola čistoty monitorů výtěžku 1x ročně
- Stanovení slepého vzorku 1x za 3 měsíce. Stanovení slepého vzorku se provede z 0,25 l destilované vody stejným postupem jako u vzorků vody. Slouží ke kontrole čistoty chemikálií a prostředí laboratoře.

### 6.2. Vnější kontrola

- Účast v mezilaboratorních porovnáních.

## 7. Vedení záznamů

Ke stanovení hmotnostní aktivity  $^{241}\text{Pu}$  a k souvisejícím činnostem jsou vedeny záznamy v elektronické formě. Záznamy o průběhu zkoušky jsou vedeny v počítači analytika, který zkoušku provádí v tomto rozsahu:

záznam	vede	uložení – složka
záznam o přijetí vzorku	kdo přijímá vzorek	Databáze LabSys Pracovní sešit v počítači analytika
podrobné údaje o vzorku záznamy o průběhu zkoušky s výsledky měření a výpočty	analytik, který provádí zkoušku	Pracovní sešit v počítači analytika
výsledek zkoušky	analytik	Databáze LabSys Pracovní sešit v počítači analytika
protokol o zkoušce	kdo vystavuje protokol	Databáze LabSys Složka „Výsledky-protokoly“
záznam o likvidaci vzorku	kdo likviduje vzorek	Databáze LabSys
kopie certifikátů etalonů	vedoucí oddělení	Certifikáty etalonů

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 14 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

záznam	vede	uložení – složka
záznamy o ředění etalonů	vedoucí oddělení	Karty radionuklidů
doklady o metrologickém ověřování a kalibraci měřidel	vedoucí oddělení	Ověřovací listy (kopie) a kalibrační listy
záznamy o účasti v MPZ	vedoucí oddělení	
záznamy o slepém stanovení	kdo provádí zkoušku	Databáze LabSys
záznamy o měřicím zařízení, jeho údržbě a kontrole	vedoucí oddělení	Záznamy o měřicím zařízení

Identifikace, popis vzorku a výsledky stanovení se vkládají do aplikace LabSys a z ní se mohou převádět do aplikace MonRaS. Pokud jde o měření mimo radiační monitorovací síť, je vystavován pro každý zkušební vzorek protokol.

## 8. Novost postupu

Metoda pro stanovení  $^{241}\text{Pu}$  ve vzorcích ŽP nebyla dosud v laboratořích radiochemie zavedena. Postup stanovení vznikl kombinací postupů z IAEA/AQ/11 a IAEA/AQ/37 s využitím zkušeností se separačními technikami, spektrometrií alfa a měřením na LSC.

## 9. Popis uplatnění metodiky

Metodiku uplatní radiochemické laboratoře vybavené kapalinovou scintilační spektrometrií a spektrometrií alfa, které jsou součástí MRS v situacích, kdy je potřeba rychle rozhodnout o přítomnosti vyšší aktivity  $^{241}\text{Pu}$  i ostatních izotopů Pu.

## 10. Použitá literatura

IAEA/AQ/11, A Procedure for the Rapid Determination of Pu Isotopes and Am-241 in Soil and Sediment Samples by Alpha Spectrometry, Vienna (2009).

Ikaheimonen T.K., Measurement of  $^{241}\text{Pu}$  in environmental samples (Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.243, No2 2000, 535-541).

Diodati J.M., Quantification of  $^{241}\text{Pu}$  in aerosols released from nuclear power plants (Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.274, No1 2007, 9-13).

IAEA/AQ/37, A Procedure for the sequential Determination of Radionuclides in environmental samples. Liquid scintillation Counting and Alpha Spectrometry for  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and Pu radioisotopes, Vienna (2014).

VDI 124 - Stanovení aktivity plutonia, americia a curia.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 15 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

Certifikovaná metodika – Rychlé stanovení izotopů Pu, Am a Cm ve vzorcích půdy, rostlinstva a potravin.

Metodika SÚRO 32 – 05 – 02 – 2 - Stanovení transuranů v exkretech.

## 11 Příloha: Validace stanovení $^{241}\text{Pu}$ ve vodě

### 11.1 Opakovatelnost

Bylo připraveno 11 vzorků vody s aktivitou  $9,8 \pm 0,2$  Bq  $^{241}\text{Pu}$ , vzorek byl odpařen do sucha, rozpuštěn v 1,5 ml 0,1M HCl, převeden do měřicí vialky, smíchán s 18,5 ml scintilačního koktejlu a měřen na LSC spektrometru. Odchylka průměru od referenční hodnoty byla 2,55 %, relativní směrodatná odchylka jednotlivých stanovení 6,43 %.

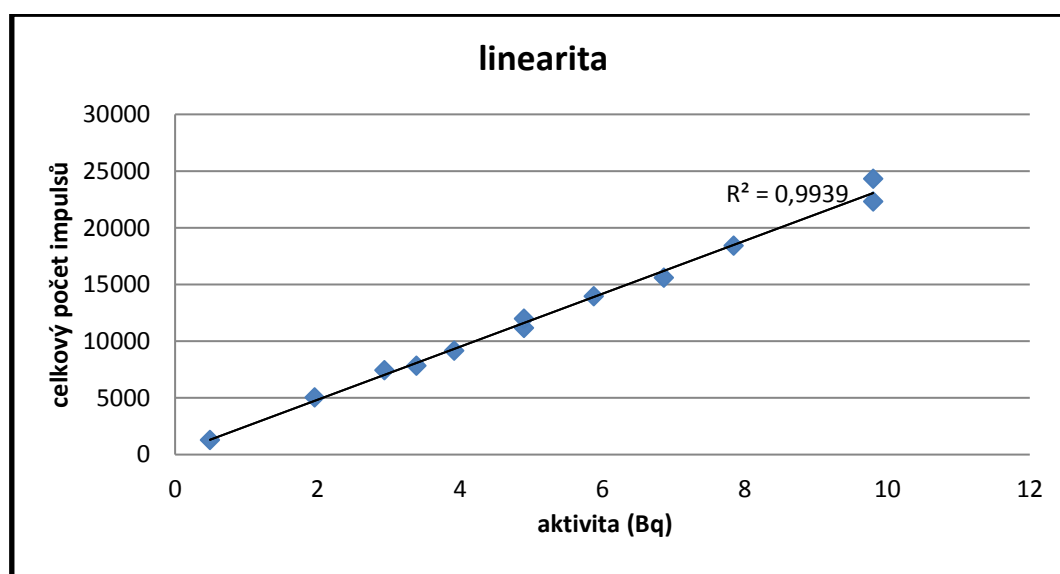
	Aktivita změřená (Bq/vz)	Nejistota (Bq/vz)
1	10,338	$\pm 0,310$
2	10,300	$\pm 0,309$
3	10,457	$\pm 0,311$
4	11,253	$\pm 0,322$
5	9,655	$\pm 0,299$
6	10,126	$\pm 0,306$
7	9,914	$\pm 0,303$
8	9,746	$\pm 0,307$
9	9,557	$\pm 0,304$
10	10,050	$\pm 0,311$
11	10,639	$\pm 0,320$
Průměr	10,06	0,308
SD	0,647	
RSD (%)	6,43	

### 11.2 Linearita a rozsah

Bylo připraveno 12 vzorků vody s přidavky etalonu  $^{241}\text{Pu}$  a analyzováno stejným způsobem jako v bodu 11.1. Závislost mezi aktivitou a počtem impulsů je v rozsahu aktivit 0,5 až 10 Bq lineární, což je prokázáno koeficientem spolehlivosti ( $R^2$ ) o hodnotě přesahující 0,95.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 16 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

aktivita přidaná (Bq)	doba měření (min)	impulsy za 120 min	účinnost (%)
0,49	120	1292	33,1
1,96	120	5028	31,1
2,94	120	7441	33,6
3,39	120	7819	32,7
3,92	120	9146	30,5
4,90	104,23	11148	33,2
4,90	104,75	11973	33,6
5,88	89,68	13951	33,3
6,86	75,31	15590	31,0
7,84	67,65	18404	33,3
9,80	53,47	22304	29,9
9,80	51,69	24311	33,7



### 11.3 Správnost a nejmenší detekovatelná aktivita (NDA)

Pro validaci metody bylo připraveno 18 vzorků pitné a povrchové vody s přidavky  $^{241}\text{Pu}$ . Objem vzorků byl od 50 ml do 1000 ml, přidavky  $^{241}\text{Pu}$  byly 0-5 Bq/vzorek. Doba měření vzorku byla 120 minut, celková doba měření pozadí 240 minut.

**Standardní kombinovaná nejistota** stanovení byla do 10 % u všech vzorků, rozšířená nejistota (koeficient rozšíření  $k=2$ ) je do 20 %, což vyhovuje zamýšlenému použití metody.

**Správnost** výsledků daná odchylkou od referenční hodnoty byla v rozmezí -21 až +19 %, odpovídá tedy rozšířené nejistotě (koeficient rozšíření  $k=2$ ).



Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 17 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

**Nejmenší detekovatelná aktivita** (NVA= MDA) závisí na objemu zpracovávaného vzorku a výtěžku. Při zpracování 1 litru vody bylo dosaženo hodnoty NDA 0,028-0,087 Bq/l. Pro havarijní situace lze zpracovat objem vody jen 50 ml s NDA 0,8 Bq/l, což vyhovuje zamýšlenému použití metody.

číslo vzorku	výtěžek $^{242}\text{Pu}$	aktivita (Bq/vz)	nejistota (Bq/vz)	objem (l)	MDA Bq/l	přídavek $^{241}\text{Pu}$ (Bq)	odchylka (%)
1	0,66	2,01	0,192	0,065	1,07	1,96	2
2	0,71	1,67	0,145	0,070	1,00	1,96	-15
3	0,68	1,68	0,145	0,070	1,01	1,96	-14
4	0,89	2,27	0,197	0,800	0,068	2,45	-7
5	0,76	2,53	0,219	0,060	0,95	2,21	15
6	0,98	1,89	0,164	0,060	0,71	2,21	-14
7	0,44	2,50	0,216	0,700	0,14	2,45	2
8	0,83	0,01	0,001	1,000	0,051	0,00	0
9	0,33	2,52	0,217	1,000	0,043	3,00	-16
10	1,10	2,89	0,251	1,000	0,028	2,45	18
11	0,37	2,38	0,205	1,000	0,087	3,00	-21
12	0,76	2,53	0,242	0,100	0,57	2,20	15
13	0,98	1,89	0,173	0,100	0,43	2,20	-14
14	0,99	0,58	0,050	0,050	0,85	0,49	19
15	1,01	4,86	0,426	0,050	0,84	4,90	-1
16	0,93	3,52	0,307	0,050	0,86	3,43	3
17	1,01	1,00	0,087	0,250	0,043	0,90	12
18	1,02	1,56	0,135	0,250	0,043	1,35	15

## 11.4 Zhášecí křivka

K sestavení zhášecí křivky bylo připraveno 8 vzorků s přídavkem  $^3\text{H}$  se stejnou známou aktivitou ve všech měřicích kyvetách a ve stejném poměru se scintilátorem Ultima Gold AB jako při měření vzorků. Po změření impulsů a tSIE se postupně přidávalo zhášecí činidlo chloroform v množství od 2-50 kapek do 2.-7. kyvety a znovu se změřil počet impulsů a tSIE. Zhášecí křivka byla získána proložení závislosti účinnosti detekce na zhášecím parametru tSIE polynomem druhého stupně. Účinnost byla spočtena jako podíl změřených impulsů za sekundu a přidané aktivity.

Česká republika Státní ústav radiační ochrany	Certifikovaná metodika	List: 18 z 18
	Stanovení aktivity $^{241}\text{Pu}$ ve vzorcích životního prostředí	Datum účinnosti: 1. 1. 2020

