

CS 86 15 907

ČESKOSLOVENSKÁ
SOCIALISTICKÁ
REPUBLIKA
(19)



ÚŘAD PRO VYNÁLEZY
A OBJEVY

POPIS VYNÁLEZU K AUTORSKÉMU OSVĚDČENÍ

222371

(11) (B1)

(22) Přihlášeno 20 11 80
(21) (FV 7908-80)

(51) Int. Cl.³
G 21 K 5/00
G 21 G 4/04

(40) Zveřejněno 29 10 82

(43) Vydáno 15 08 85

(75)
Autor vynálezu

BEŘADIK ANTON ing. CSc., TYMPL MILAN, STOPEK KORNEJ ing., PRAHA

(54) Uzavřené radioaktivní zářiče a způsob jejich výroby

Vynález se týká uzavřených radioaktivních zářičů trubkového, válcového nebo jehlového tvaru pro použití v průmyslu, nukleární medicíně, v biologii a v zemědělství.

Aktivní náplň radioaktivních zářičů tvoří vrstva aktivovaného radioaktivního sorbentu s částicemi kulového tvaru s průměry od 20 do 2 000 μm , které jsou sušením, kalcinací a slinováním zhuštěny, případně vhodným tepelným zpracováním přeměněny ve sklovinu. Tím je dosaženo dobré kompaktnosti zářičů, snížení vyluhovatelnosti radioaktivní komponenty a minimalizace možnosti úniku radionuklidů do okolí, zvýšení spolehlivosti a bezpečnosti práce při používání zářičů.

Na rozdíl od dosud používaných způsobů přípravy amorfních sraženin, aktivní skelné taveniny a drtě a jejího plnění do pouzder, navržený způsob výroby uzavřených radioaktivních zářičů se skládá z jednoduchých radiochemických operací: aktivování sorbentu roztokem radioaktivní sloučeniny, odlučování od kapalně fáze, plnění do pouzder, ve kterých je potom prováděno sušení a další tepelné zpracování, nebo sušení aktivovaného sorbentu a plnění pouzder vysušeným materiálem, s tím, že další tepelné zpracování je prováděno v pouzdrech.

Tento způsob výroby zaručuje vysokou efektivnost, snížení rizika kontaminace okolí, vysokou homogenitu a dobrou kvalitu vyrobených uzavřených zářičů.

Vynález se týká uzavřených radioaktivních zářičů trubkového, válcového nebo jehlového tvaru, používaných v průmyslu k defektoskopii, v nukleární medicíně k léčení nádorů, v biologii a v zemědělství k ozařování biologických materiálů a způsobu jejich výroby.

Dosud známé uzavřené radioaktivní zářiče mají aktivní vrstvu tvořenou amorfni nebo jemně krystalickou nerozpustnou sraženinou radioaktivní látky, příp. skelnou drtí. Při dosavadních způsobech výroby těchto zářičů se používají známé technologické postupy. Válcová pouzdra jsou plněna nerozpustnou sraženinou hydroxidů, fosforečnanů, síranů, uhličitanů, příp. oxalátů radioaktivních izotopů prvku II. až VI. skupiny Mendělejevovy tabulky, např. stroncia, bárya, zirkonia, lantanu a lantanidů, aktinia a aktinidů, niobu, molybdenu apod., která je posléze tepelně zpracovávána buď sušením a kalcinací, nebo též plněna drtí ze skelné taveniny na bázi křemičitanů radioaktivních izotopů prvků I. a II. skupiny, např. cézia a bárya. Aktivní vrstva ze skelné drti se používá v těch případech, kdy radioaktivní prvek nelze fixovat v běžně známých typech nerozpustných sraženin anorganické povahy, jako jsou např. hydroxidy, sírany, fosforečnany. Týká se to zejména alkalických kovů: litia, sodíku, draslíku, rubídia, cézia a francie.

V některých případech se používají k fixování radioaktivních nuklidů anorganické sorbenty ve formě jemně krystalických prášků s částicemi nepravidelného tvaru.

Pouzdra s aktivní vrstvou se nakonec hermeticky uzavírají, povrch radioaktivních zářičů se dekontaminuje, v některých případech se zářiče uzavírají do dalších pouzder a v této podobě jsou uzavřené radioaktivní zářiče dodávány k použití.

Výše popsané uzavřené radioaktivní zářiče a způsoby jejich výroby nejsou výhodné. Příprava radioaktivních sraženin vyžaduje pečlivé dodržování přesných fyzikálně chemických podmínek, koncentrací roztoků a teplot, které silně ovlivňují vlastnosti sraženin, ať již jde o velikost krystalů, či filtrovatelnost sraženin apod. Při odlučování sraženiny od kapalné fáze filtrací nebo odstředováním je nutno zamezit přestříknutí a kontaminaci okolí. Sraženiny je třeba sušit velmi pomalu, při kalcinaci se musí používat pomalého vzestupu teploty, aby byl zajištěn volný odchod vodních par a plynných rozkladných produktů a aby nedocházelo k vytváření nepropustné krusty a k strhování a úletu radioaktivních látek do okolí.

U prvků, které netvoří nerozpustné sraženiny anorganické povahy, se připravuje skelná tavenina na bázi křemičitanu, která se drtí na prach. Manipulace s roztavenou hmotou při teplotách 650 až 1 400 °C je v radiochemických provozech velmi nesnadná. Mohou se vyskytnout značné obtíže při tavení, při kterém je nutno dosáhnout homogenní distribuce radioaktivní látky v celém objemu taveniny. Z bezpečnostního hlediska je velmi riziková i manipulace se skelnou drtí, kde je nutno zajistit určitou zrnitost a sypnou hmotnost. Podobné těžkosti se mohou vyskytnout i při manipulaci s hrubě krystalickými, příp. nepravidelnými částicemi sorbentů.

Uvedené nedostatky dosavadních uzavřených radioaktivních zářičů a způsobů jejich výroby jsou odstraněny uzavřenými radioaktivními zářiči a způsobem jejich výroby podle vynálezu, při kterém aktivní vrstva je tvořena anorganickým sorbentem s částicemi kulového tvaru s průměry od 20 do 2 000 μm , připravovanými metodou sol - gel podle popisu vynálezu k autorskému osvědčení č. 169 245.

U uzavřených radioaktivních zářičů s průměry od 0,1 do 0,3 mm je možno s výhodou využít jemných frakcí sorbentů s částicemi 20 až 250 μm , které se fyzikálně chovají jako kapalina, tečou a snadno rovnoměrně vyplňují volné prostory otvorů pouzder. Tím je spolehlivě zajištěno homogenní rozložení aktivity. Kulový tvar částic sorbentu se příznivě uplatňuje i při sušení a kalcinaci, protože u těchto materiálů se částice neslepují a nevytváří se nepropustné krusty a vodní pára a těkavé plynné rozkladní produkty snadno odcházejí.

Velmi výhodně se uplatňují aktivované anorganické sorbenty s částicemi kulového tvaru u uzavřených radioaktivních zářičů s průměry 0,3 až 2 mm a u bodových zářičů. Pouzdra zářičů (celulky) je možno plnit jednotlivými kuličkami odpovídajících rozměrů se standardní měrnou aktivitou. Celkovou aktivitu zářičů je možno zvyšovat zvětšováním počtu jednotlivých aktivních kuliček sorbentu ve vrstvě.

Samostatné kuličky v otvoru pouzdra se potom fixují distančními vložkami ve stálé poloze.

Anorganické sorbenty připravované metodou sol - gel podle popisu vynálezu k autorskému osvědčení č. 169 245 mají kromě výhodného kulového tvaru částic také velmi výhodné specifické vlastnosti, zaručující prakticky kvantitativní sorpci radionuklidu z roztoku, což umožňuje dosáhnout vysokou přesnost v měrných aktivitách připravovaných zářičů.

Částice anorganického sorbentu jsou aktivovány uvedením do styku s roztokem radioaktivní sloučeniny buď v mokřém stavu ve formě hydrogelu, nebo v suchém stavu ve formě xerogelu, potom jsou odděleny od kapalně fáze, sušeny při teplotě do 250 °C, čímž jsou zbaveny vlhkosti a těkavých látek. Při této operaci se gelové částice objemově smršťují, přičemž průměry se zmenší přibližně na 1/2 původní hodnoty. Průměry částic xerogelu se mění jen nepatrně. Velkou výhodou je, že se netvoří nepropustná krusta, vodní pára a těkavé produkty unikají volně z celého objemu, aniž přitom dochází k roztrhávání produktu a kontaminaci okolí.

Dalším tepelným zpracováním aktivovaného sorbentu při teplotách 250 až 1 800 °C kalcinací a slinováním se docílí toho, že částice se zhutní na kompaktní keramická tělíska, přičemž zůstane zachován jejich původní tvar, nebo jsou přetaveny a přeměněny ve sklovinu, čímž se výrazně zlepší kompaktnost zářičů, sníží se vyluhovatelnost radioaktivní komponenty, zvýší se spolehlivost a bezpečnost práce při používání uzavřených zářičů, minimalizuje se možnost úniku radionuklidů do okolí v případě porušení hermetičnosti pouzder.

Plnění pouzder zářičů aktivovaným sorbentem lze provádět po vysušení buď za sucha, anebo za mokra s tím, že sušení, kalcinace a slinování nebo další tepelné zpracování aktivní náplně se uskuteční přímo v pouzdrech.

P ř í k l a d 1

100 mg hydrogelu fosforečnanu zirkoničitého ve tvaru mikrokuliček s průměry 40 až 120 μm bylo za stálého míchání uvedeno do styku s 10 cm^3 roztoku chloridu cézného, obsahujícího 3,76 GBq radionuklidu Cs^{137} , v prostředí 0,1 M HCl, při teplotě 22 ± 2 °C po dobu 6 h. Za tuto dobu se Cs^{137} prakticky kvantitativně zachytil na sorbentu. Aktivovaný sorbent se odsátím matečného roztoku zbavil kapaliny a sušil se v evakuovaném exikátoru při teplotě 22 ± 2 °C po dobu 18 h. Vysušený aktivní sorbent se potom pomocí kapilárního objemového dávkovače rozdělil do 10 ks platinových celulek (pouzder) s vnitřním průměrem 0,5 mm. Naplněné celulky fixované ve svislé poloze držákem byly vloženy do kalcinační pece a postupně zahřívány až na teplotu 380 °C, kde byla ponechána výdrž 1 h. Po vyjmutí z pece byly celulky uzavřeny Pt zátkami a podrobeny mezioperační kontrole, kde byla měřena celková aktivita. Aktivita jednotlivých celulek byla 360 ± 20 MBq. Celulky byly hermeticky uzavřeny zavařením elektrickým obloukem a po dekontaminaci povrchu a ověření těsnosti předepsaným "bubble" testem byly definitivně uzavřeny do vnějších platinových plášťů a po provedení předepsané technické kontroly byly expedovány k použití.

P ř í k l a d 2

20 mg xerogelu fosforečnanu titaničitého ve tvaru mikrokuliček s průměry 20 až 60 μm bylo za občasného protřepávání uvedeno do styku s 1 cm^3 roztoku chloridu cézného, obsahující-

cího 0,74 GBq radionuklidu Cs¹³⁷, v prostředí 0,1 M HCl, při teplotě 22 ± 2 °C, po dobu 6 h. Aktivovaný sorbent byl potom i s matečným roztokem kvantitativně převeden do odstřeďovací nálevky připojené k nerezové celulce (pouzdru) s vnitřním průměrem 0,4 mm. Odstřeďováním byl aktivní sorbent vpraven do celulky a zbaven matečného roztoku. Naplněná celulka byla sušena v evakuovaném exikátoru při teplotě 22 ± 2 °C po dobu 18 h, potom byla vložena do kalcinační pece, kde byla postupně zahřáta na teplotu 420 °C a kalcinována při této teplotě po dobu 1 h. Po vyjmutí z pece byla celulka uzavřena nerezovou zátkou a podrobena mezioperační kontrole, zahrnující měření aktivity. Aktivita celulky byla 0,73 GBq. Zavařením elektrickým obloukem byla celulka hermeticky uzavřena a po dekontaminaci povrchu a ověření těsnosti předepsaným "bubble" testem byla uzavřena do vnějšího nerezového pláště. Po projití předepsanou technickou kontrolou byl takto vyrobený záříš předán k expedici.

P ř í k l a d 3

100 kuliček xerogelu silikagelu o průměru 0,75 ± $\begin{matrix} 0,00 \\ 0,05 \end{matrix}$ mm bylo vloženo do 1 ml roztoku 0,1 M HCl a za stálého míchání bylo do tohoto systému připipetováno 37 MBq Cs¹³⁷ ve formě chloridu cezného. Sorpce probíhala při teplotě 22 ± 2 °C po dobu 6 h. Po odsátí matečného roztoku byly aktivované kuličky sušeny 1 h při teplotě 120 °C a kalcinovány při teplotě 380 °C po dobu 1 h a dále tepelně zpracovány při teplotě 800 °C po dobu 1 h.

Mezioperační kontrolou bylo zjištěno, že 80 kuliček mělo aktivitu 350 ± 10 kBq/kul, zbytek kuliček měl aktivitu mimo tuto toleranci. 50 kuliček bylo použito k přípravě bodových uzavřených záříšů s aktivitou 350 ± 10 kBq. Nerezové celulky s vnitřním průměrem 0,80 mm byly plněny jednotlivými aktivními kuličkami. Zbytek kuliček byl použit k přípravě 15 ks uzavřených záříšů s aktivitou 750 kBq. Kuličky byly fixovány ve stálé poloze nerezovým drátkem, celulky potom byly uzavřeny zavařením elektrickým obloukem a po dekontaminaci povrchu a ověření těsnosti předepsaným "bubble" testem byly definitivně uzavřeny do vnějších nerezových plášťů. Po projití předepsanou technickou kontrolou byly záříše předány k expedici.

P Ř E D M Ě T V Y N Á L E Z U

1. Uzavřené radioaktivní záříše, vyznačené tím, že aktivní vrstva je tvořena anorganickým sorbentem aktivovaným radioaktivní komponentou ve formě gelu nebo xerogelu.

2. Uzavřené radioaktivní záříše podle bodu 1, vyznačené tím, že aktivované částice anorganického sorbentu mají tvar kuliček s průměry od 2 do 2 000 μm.

3. Uzavřené radioaktivní záříše podle bodů 1 a 2, vyznačené tím, že aktivovaná vrstva je tvořena aktivovaným anorganickým sorbentem ve formě skloviny.

4. Způsob výroby uzavřených záříšů podle bodů 1, 2 a 3, vyznačený tím, že anorganický sorbent se uvede do styku s roztokem radioaktivní sloučeniny, odloučí se od kapalné fáze, plní se do pouzder, ve kterých se potom suší při teplotě do 250 °C anebo se suší a plní do pouzder, kalcinuje při teplotě 250 až 500 °C a/nebo slinuje při teplotě 500 až 1 400 °C, přičemž částice anorganického sorbentu jsou zhutněny, a/nebo tepelně zpracovává při teplotách 500 až 1 800 °C, přičemž částice anorganického sorbentu jsou přeměněny ve sklovinu.