

Amerícium-241 szennyezés fizikai és kémiai sajátosságainak vizsgálatai a KFKI telephelyen

Andrási A.³, Fehér I.³, Földi A.¹, Gonter K.¹, Kocsonya A.¹, Molnár Zs.³,
Osán J.¹, Pálfalvi J.², Pázmándi T.¹, Pintérmé Csordás Tóth A.², Zagyvai
M.¹, Zagyvai P.¹

¹*MTA Energiatudományi Kutatóközpont*

²*AEMI Atomenergia Mérnökiroda Kft.*

³*független kutató*

Az MTA EK feladatai a 2013 decemberi ²⁴¹Am-szennyezés körülményeinek felderítésében

A püspökszilágyi RHFT telephely hulladékcsomag-feldolgozó helyiségeiben 2013. december 2-án ²⁴¹Am-et tartalmazó szennyezés került ki a munkaterületre. A munkahelyen használt eszközök, tárgyak mellett a szennyezés egy része az ott dolgozó személyek ruházatára, illetve szervezetébe is jutott.

A szennyezés felismerése és azonosítása az MTA EK Környezetvédelmi Szolgálatához tartozó egészszestszámláló laboratóriumban történt meg. A továbbiakban a szennyezés fizikai-kémiai tulajdonságainak megállapításában is részt vettünk, a hozzánk eljuttatott védőeszközök és egyes, a munkaterületen, valamint a szennyeződött személyek által azon kívül használt tárgyokról vett dörzsminták analízisével.

Rövid történeti áttekintés

- 2007 április: „*Javaslat új ki-be kapcsolható $^{241}\text{AmBe}$ neutronforrásra*” – Veres Árpád előadása az Izotóp Intézet kft. K + F fórumán
- 2007–2012: Forráskészítési kísérletek az Izotóp Intézet kft. „A” szintű izotóplaboratóriumában, az I.I., az MTA Izotópkutató Intézet és a Pannon Egyetem Radiokémiai és Radioökológiai Intézete munkatársainak részvételével
- 2012: Az OAH támogatásával folyó kísérleti munka befejezése
- 2013 július: Négy közepes aktivitású radioaktív hulladékot tartalmazó hordó beszállítása Püspökszilágyra
- 2013. december 2.: A hulladék feldolgozása, ^{241}Am szennyezés észlelése a munkaterületen

- ❑ Az Am/Be pulzáló neutron forrás készítéséhez beszerzett Am-oxid aktivitása ≈ 37 GBq volt.
- ❑ Feldolgozás: feloldás HCl-ban, átvitel $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ oldatba, elektrolitikus leválasztás acéllemezekre.
- ❑ A forrás hozama és fizikai formája nem volt kielégítő.
- ❑ A visszamaradt oldatot papírtörülkövel felitatták.
- ❑ Az ILW hulladékot 4 acélhordóban helyezték el.
- ❑ Másfél év helyi tárolás után a hulladékot elszállították Püspökszilágyra.

A pulzáló Am/Be forrás elemei



Körcikk alakú acéllemezekre „electroplating” technikával Am-borítást vittek fel, amit aranyfóliával fedtek le. A kísérletsorozat befejezése után ólomkonténerben helyezték el a lemezeket.

Az ^{241}Am egyes sugárvédelmi adatai



Mentességi szintek 23/1997. NM r.	10^4 Bq	1 Bq/g
Generalized clearance levels EURATOM RP 122/I. (2000)	-	0,17 Bq/g
„Mérsékelt anyagmennyiségek mentesítési értékei” Council Directive 2013/59/EURATOM	10^4 Bq	1 Bq/g
„Általános mentesítési és felszabadítási értékek” Council Directive 2013/59/EURATOM	-	0,1 Bq/g
“Tolerance level” in foodstuffs Varga Beáta PhD dolgozata 2008.	-	$1,0 \cdot 10^{-4}$ Bq/g
Alapmennyiség MSZ 62-7:2011	510 Bq	-

Az MTA EK és segítői által vállalt feladatok

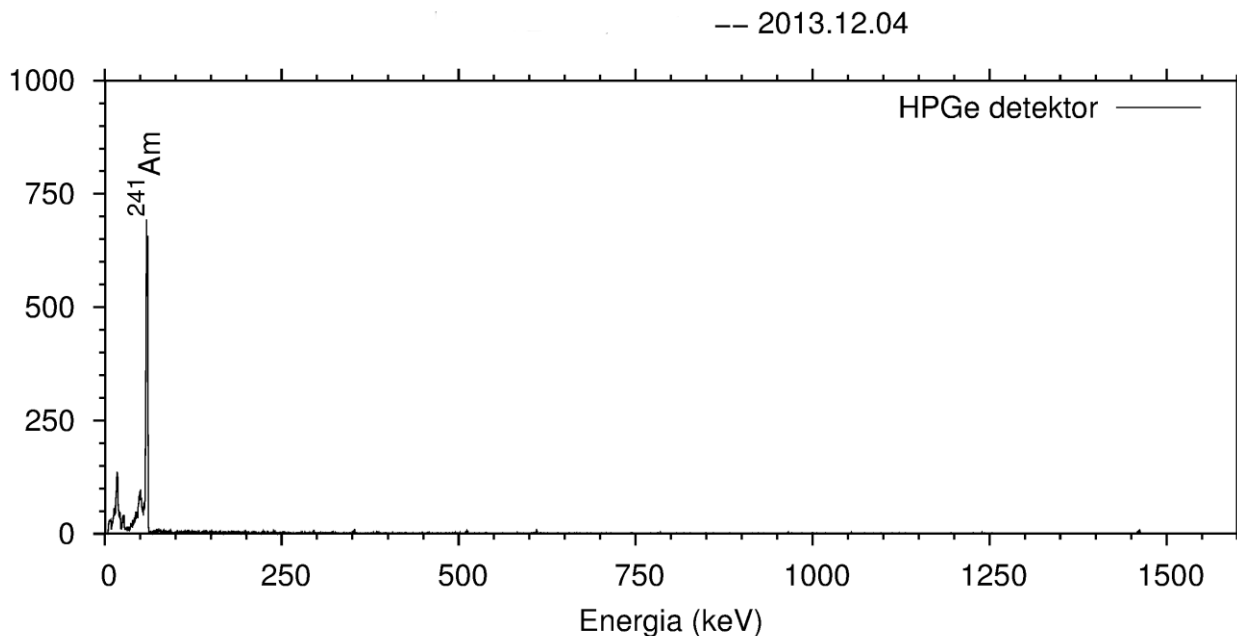
Részvételünk a szennyezés jellemzésében, a dekontamináció és a dekorporáció optimalálása érdekében:

- 1) Egésztetszámlálás, vizeletminták mérése (ld.→ következő előadás)
- 2) Szennyezést tartalmazó minták műszeres vizsgálatai
- 3) Tanácsadás a szennyezett felületek dekontaminálásához
- 4) Nyomdetektoros autoradiográfia
- 5) SEM–EDX vizsgálatok a szennyezés kémiai formájának meghatározásához

A szennyezés észlelése és azonosítása – egészszteszámplálás

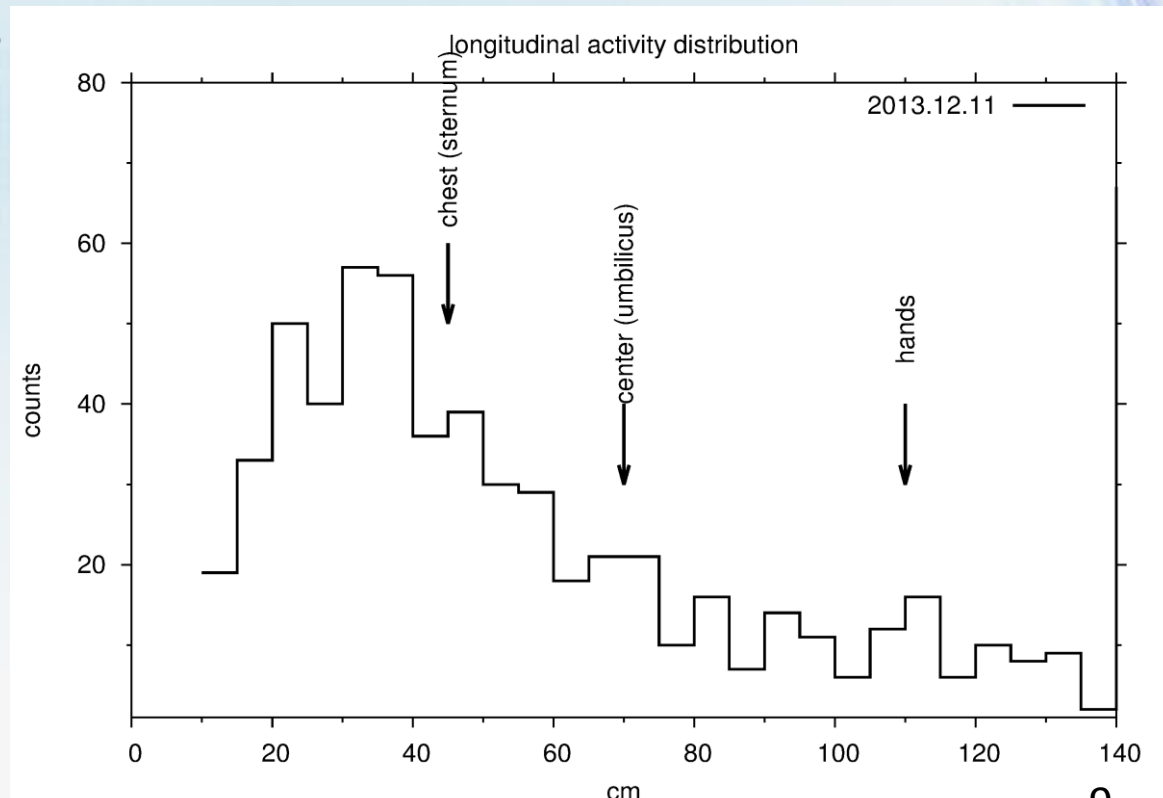


- RHK Püspökszilágy dolgozóinak egészszteszámplálása – 2013. december 4-5.
- Évi rendszeres ellenőrzés, megállapodás szerint az MTA EK KSZ mérőállomásán
- **^{241}Am szennyezés detektálása 3 személynél: becsült aktivitás 49, 18, 8 kBq**

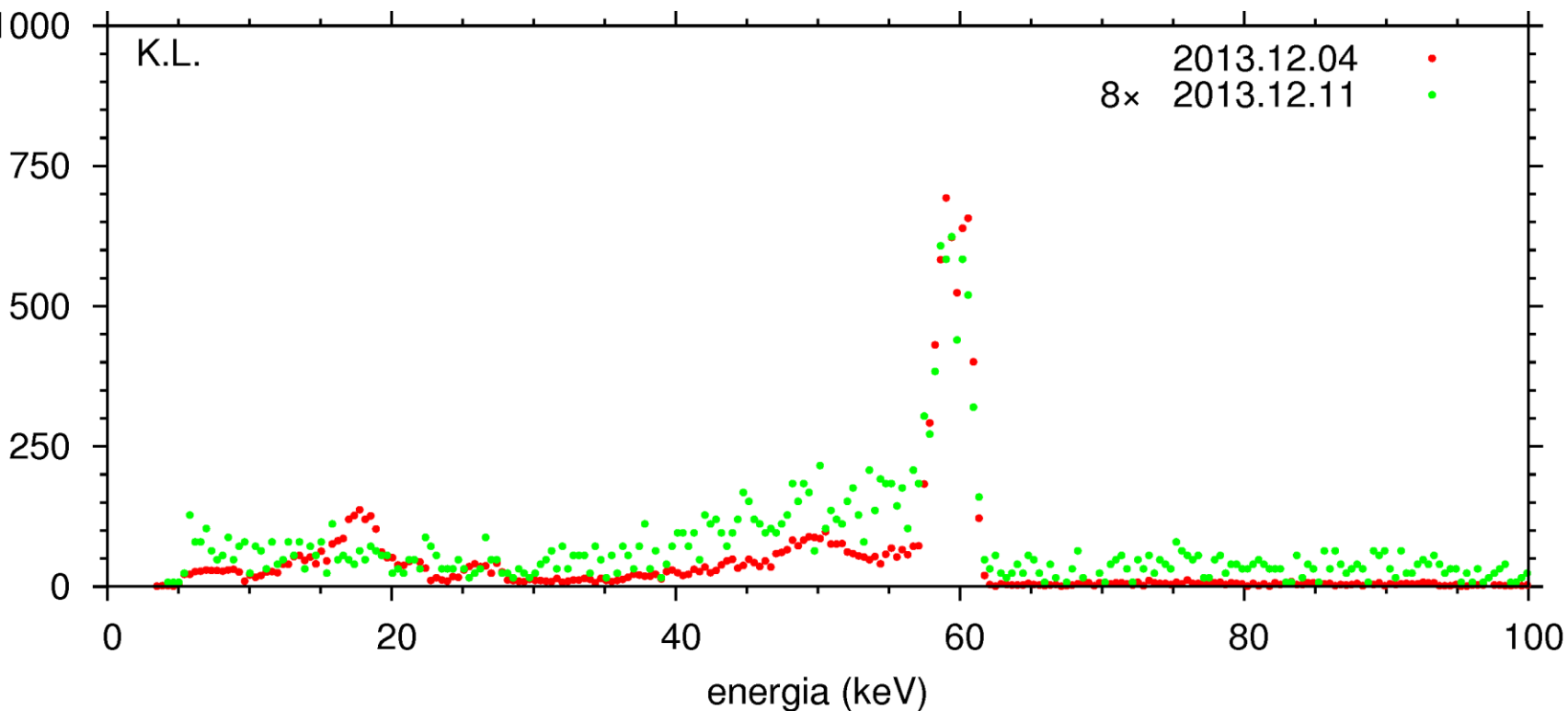


- Az első méréssorozat kiértékelése során felmerült, hogy a szennyezés jelentős része felületi volt.
- Megismételt mérések 2013. december 11-én
- A testfelületek szennyezettségének mérése: α -sugárzó szennyezést detektáltak kézen, arcon, hajon, mellkason és háton (max. 800 cpm)

Egészteszt számlálás – Összes beütésszám eloszlása a test hosszában – a szennyezés a tüdő táján mutatkozott a legintenzívebbnek.



egésztestszámláló–spektrum -- RHK -- 2013. december



Két felvétel egymásra vetítve az első és a második mérésből. A második mérésből **9,0, 1,8, és 0,9 kBq** aktivitás adódott.

Egésztestszámlálás – ^{241}Am – specifikus pontosság javítása

In response to your letter, dated 28 February requesting a loan of the LLNL realistic chest phantom for the verification and calibration of the Hungarian facilities, I am pleased to inform you that the Radiation Safety Technical Services Unit will be preparing the LLNL phantom with lungs, liver and lymph nodes containing Am-241 as well as all chest overlays needed for the calibration process. The phantom would be available for the time frame requested, namely May to July. The IAEA also concurs with the approach that the Hungarian institutions will organize the transportation and cover costs in both directions.

A NAÜ által használt, LLNL-gyártotta fantom kölcsönkérése - „folyamatban”

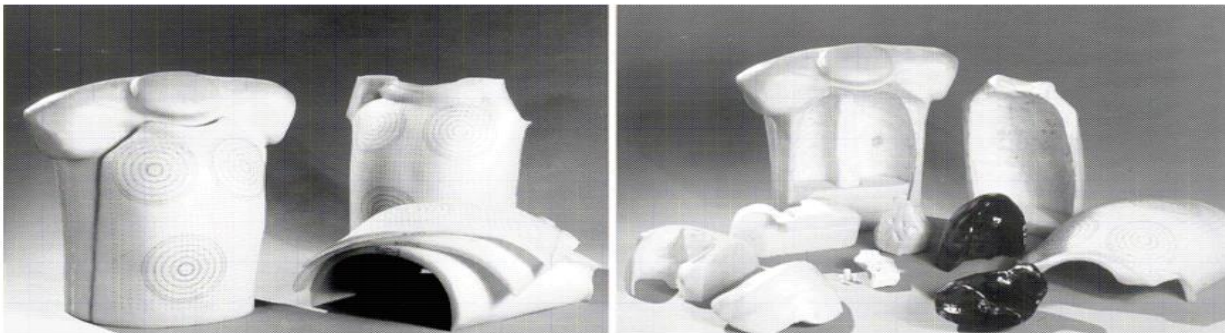
RC 6 Internal Dosimetry - The Science and Art of Internal Dose Assessment.pdf (SECURED) - Adobe Reader

File Edit View Document Tools Window Help

RC 6 Internal Dosi... x

9 / 63 133% Find

Figure 5: The LLNL chest phantom for simulation of homogeneous activity depositions in the lungs, tracheobronchial lymph nodes and in the liver [4]



Almost all laboratories continue to use physical phantoms such as the Bottle-Mannikin-ABsorption (BOMAB, Fig. 4) or Lawrence Livermore thorax phantoms (Fig. 5) for activity calibrations, but this approach has significant limitations with respect to the body size, body shape, and radionuclide distribution that can be modelled. These limitations could in principle be overcome using the numerical calibration techniques which have been developed over recent years. Mathematical voxel phantoms are constructed using data from computed tomography (CT) or magnetic resonance imaging (MRI scans on real subjects). Monte-Carlo simulations are then used to model photon transport from the phantom and the detection of photons by a simulated detector [11-13].

Figure 6: Voxel phantom for calibration of phoswich detectors in lung counting geometry (left) and in knee counting geometry (right) [13]

RC 6 Int... lxserv... Dolphi... Firefox... A_6A13... A GNU k... gv: ET... GQvie... ~/egész... kivizso... XTerm... 15:59

Használati tárgyakról vett dörzsminták gamma-spektrometriás mérései

Tárgy	Aktivitáskoncentráció (Bq/cm ²)
Bútor	1,0E-03
Ágy széle	<3E-3
Hangszer	1,8E-03
TV távirányító	4,8E-03
Csap	2,2E-03
Autókormány	1,6E-02
Laptop billentyűzet	<8E-4
Laptop "egér"	7,8E-04

Beavatkozási szint „ellenőrzött területen kívül” az MSZ 62-7:2011 szerint: 0,5 Bq/cm²

Segítség a helyi dekontaminálás tervezésében



Részletek az RHFT dekontaminálási tervéből, melyhez tanácsainkkal hozzájárultunk – a tanácsadáshoz szerzett tapasztalatokat az egészsztesztzámlálásra érkezett személyek által okozott, jól mérhető felületi szennyezettség eltávolítása során szereztük.

A dekontaminálási technológia alapvetően a felület nedves, vegyszeres tisztítása. Nedvesítőszerként ... mosószeres vizet kell alkalmazni. Az alkalmazott mosószer fékezett habzású ... foszfátmentes ipari tisztítószer legyen. A víz hőmérséklete szobahőmérsékletű legyen. ...

Ha a [fenti eljárás] nem hatásos, akkor 5 térfogatszázalék citromsav és 0,01 normál salétromsav tartalmú oldatot kell alkalmazni. Fém felület esetén 0,1 normál salétromsav oldat is alkalmazható. A dekontamináló oldattal szükség esetén 3 alkalommal kell a felület tisztítását megkísérelni.

Dörzsminták Püspökszilágyról, az 1. dekontaminálás után



Püspökszilágy –
dörzsminták

2014-03-26

minta	mérési idő(s)	cps	aktivitásfelület		akt.konc.(Bq/cm ²)	
			(Bq)	(cm ²)		
1	1200	9,15	128	300	0,4	
2	1200	37,3	520	300	1,7	
3	1200	1,37	19,2	300	0,1	
4	1200	7,13	99,4	300	0,3	
5	1200	16,4	228	300	0,8	
6	1200	9,96	139	300	0,5	
7	600	138	1930	300	6,4	
8	301	98,5	1370	300	4,6	
9	600	1,72	23,9	300	0,1	
11	30	2920	40800	10	4080	fűrészlap
12	30	5280	73700	300	245	lapát
13	31	2310	32300	10	3220	fűrészlap töve, befogó rész
14	31	3160	44000	10	4400	munkakesztyű

Nyomdetektoros autoradiográfiás vizsgálatok



Cél: meghatározni a porálarcok által kiszűrt radioaktív részecskék fajtáját és lehetőség szerint a szűrőn való területi eloszlását, illetve a sugárzást kibocsátó szemcsék méretét.

PADC típusú szilárdtest nyomdetektor : TASTRAK (TASL Ltd.)

A detektorok felülete kb. 16 cm², expozíciós idő kb. 6 óra volt.

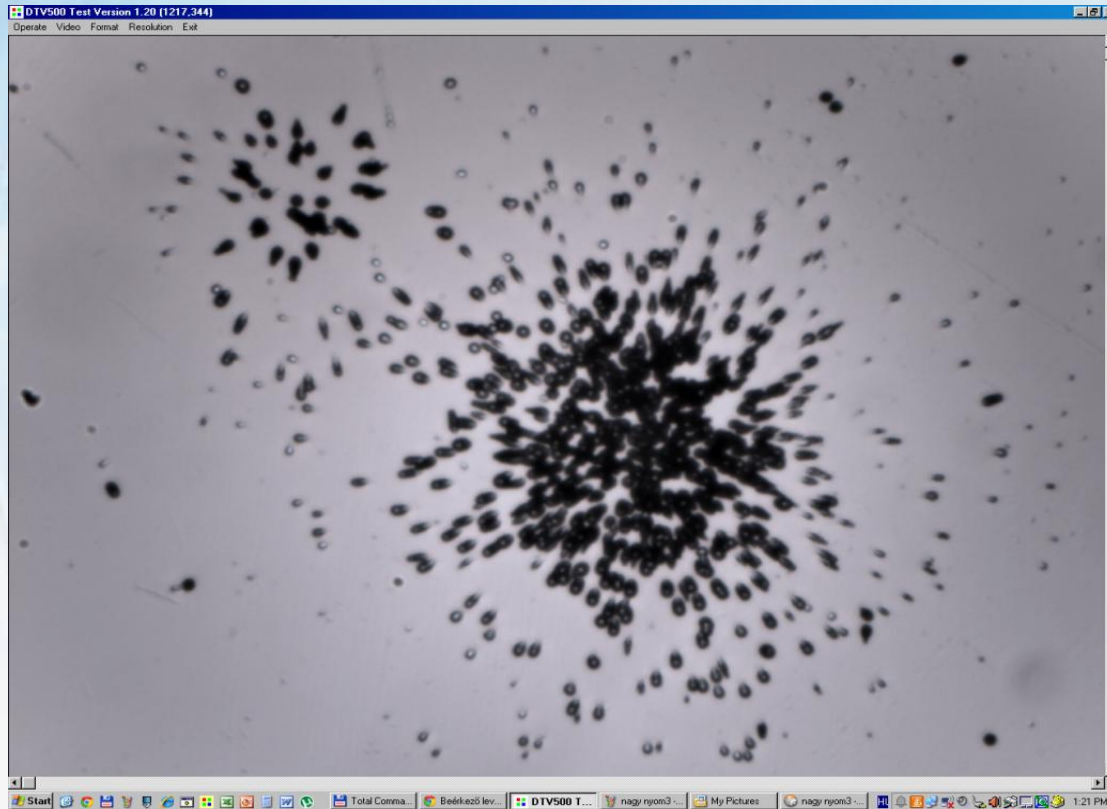
Maratás: 5 óra 6N NaOH oldatban, 70 ± 0.1 °C hőmérsékleten.

Kontroll detektor expozíciója ²¹⁰Po kollimált alfa-nyalábbal 400 s-ig.

Nyomok vizsgálata „Polyvar”, illetve „PrimoStar” optikai mikroszkóp alapú képanalizátorral, manuális szkenneléssel, SALINE 4.0.0.4 programmal.

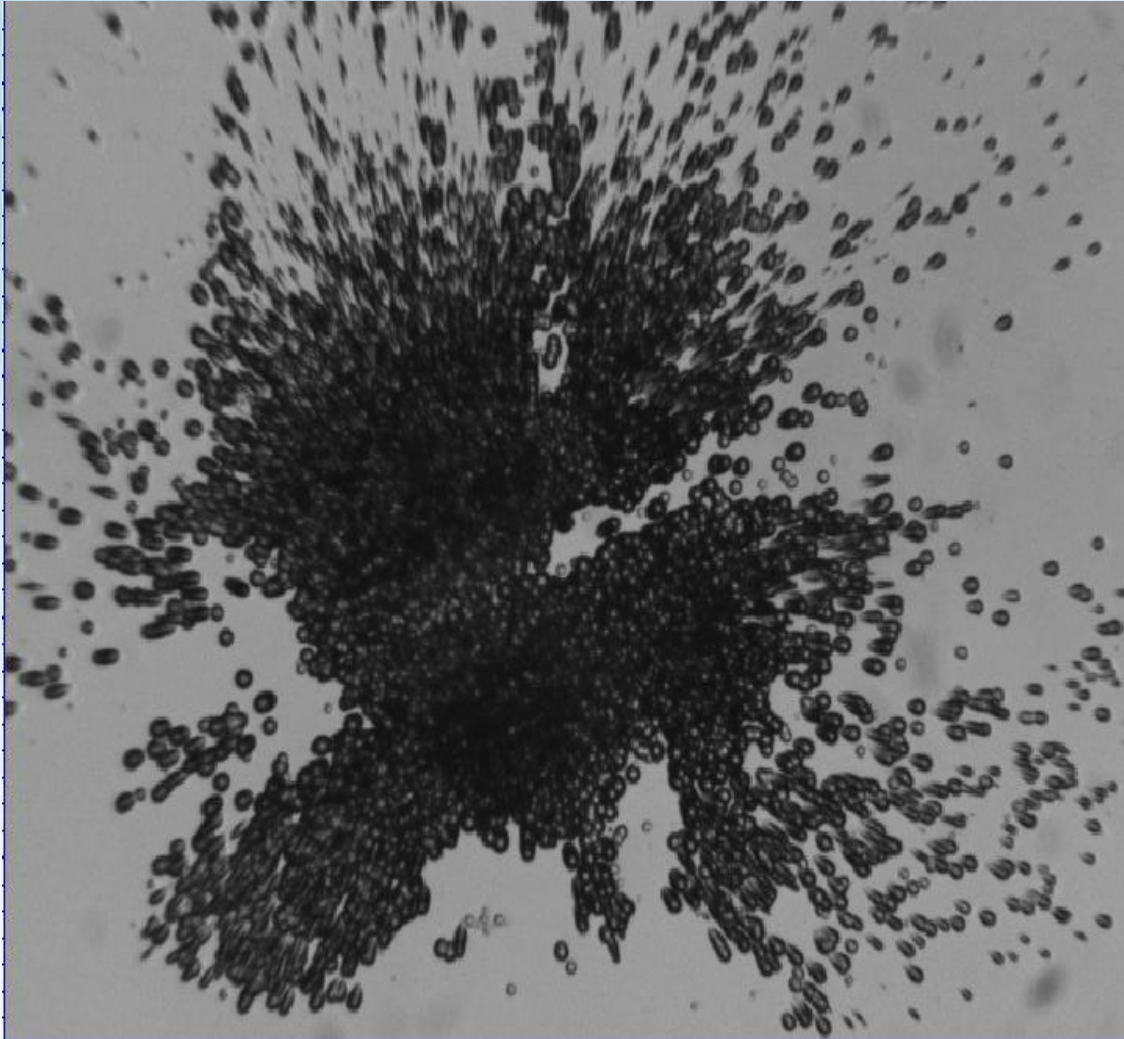
Autoradiográfiás felvételek szilárdtest-nyomdetekkel

A szennyeződést okozó hulladék feldolgozása során használt légzésvédő maszkok mérései



A szűrőn megkötött ^{241}Am -tól származó α -nyomok

Autoradiográfiás felvételek szilárdtest-nyomdetekkel



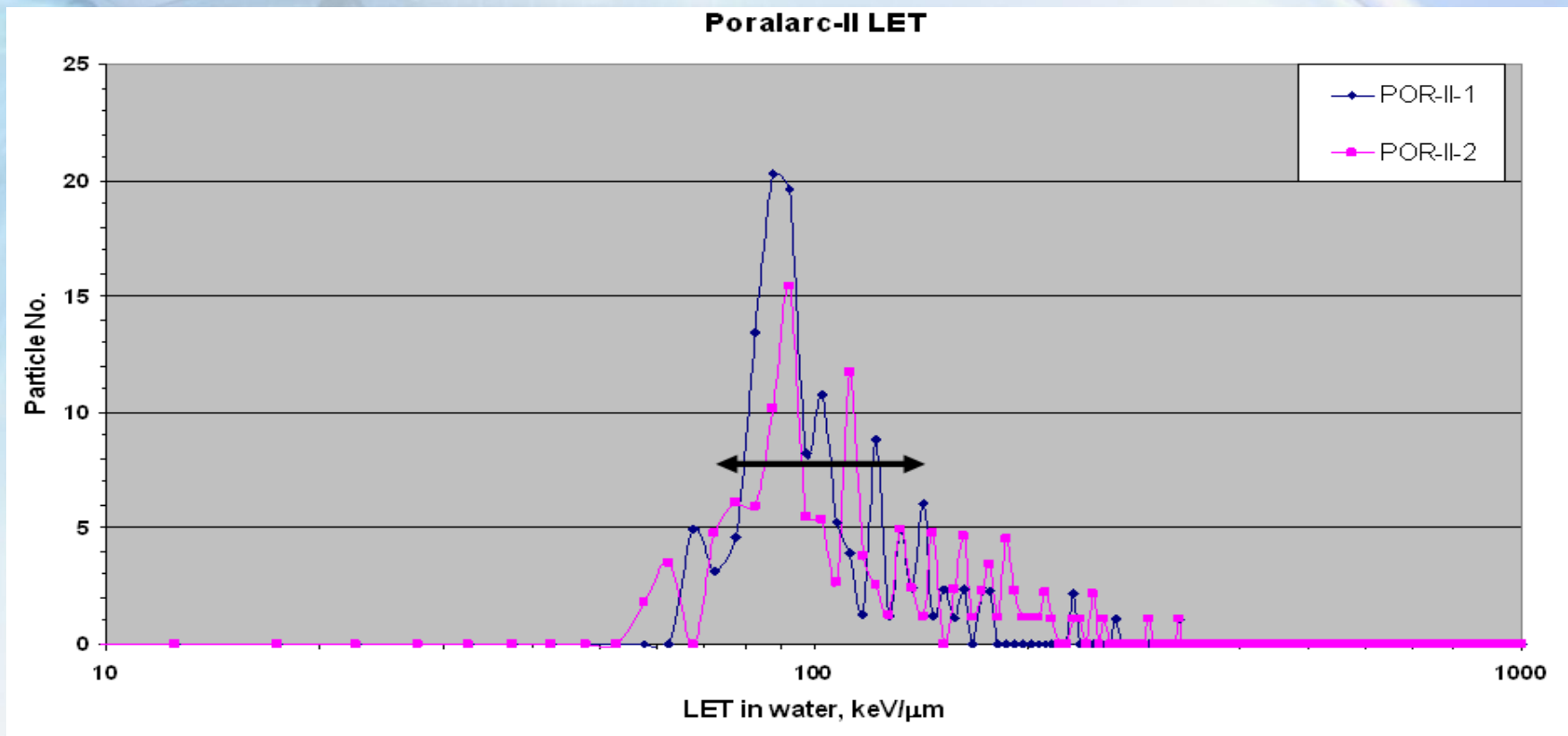
Egy nagy szemcséről felvett sűrű α -nyomok

Autoradiográfiás felvételek szilárdtest-nyomdetekkel

Maratási sebesség 1,27 $\mu\text{m}/\text{h}$

Góc típusa	Góc átmérője, μm	Ritka nyomok	Sűrűbb ny.	Nagyon sűrű ny.	Tipikus α részecske szám
Kicsi	~ 200	166	44	28	10-100
Közepes	~ 500	39	17	2	200-300
Nagy	~ > 1000	3	2	1	> 1500

Autoradiográfiás felvételek szilárdtest-nyomdetekkel



A II-es porálarc jobb- és baloldalán mért alfa részecskék LET eloszlása véletlenszerűen kiválasztott 100-100 merőlegesen beeső részecske nyoma alapján – jól azonosítható az ^{241}Am alfa-energiája

Autoradiográfiás felvételek szilárdtest-nyomdetektorral

Porálarc száma	Detektor száma	Terület, cm ²	Exp. idő, s	Mért gócok száma, db.	Becsült α nyomok száma, db.		Aktivitás határok, Bq	
					Alsó	Felső	Alsó	Felső
I	4	15,84	21600	302	32400	50200	3,0	4,6
II	1	14,85	18000	412	60000	100000	5,6	9,3
III	3	15,12	23400	81	9700	17600	0,82	1,5

Egy 5 μm átmérőjű Am_2O_3 szemcse aktivitása 150 Bq lenne

A szennyezés valószínű kémiai formájának meghatározása

- A légzésvédőkről és dörzsmintákról származó szemcséken azonosított amerícium oldhatóságának vizsgálata → lásd a következő előadást.
- A szemcsék és az amerícium “viszonyának” meghatározása: *vannak-e olyan szemcsék, amelyek közvetlenül a galvanizált acéllemezekről származnak, vagy a szemcsék a törlők porlódásából keletkeztek, és “rászáradt” Am-só van a felületükön?*
- Vizsgálati módszer: “góckeresés”, majd pásztázó elektronmikroszkópos (SEM) képkészítés; kémiai összetétel meghatározása energiadiszperzív röntgensugaras mikroanalizátorral (EDX).

Minták a porálarcokból:

- Kivágott darabok a porálarcból;
- Két oldalán ragasztós szénszalaggal a porálarc felületéről gyűjtött tapadó szemcsék, halmazok, szálak;

A szövetdarabokat tartalmazó minták felületére a várható erőteljes elektromos töltődés miatt vékony szénréteget porlasztottak.

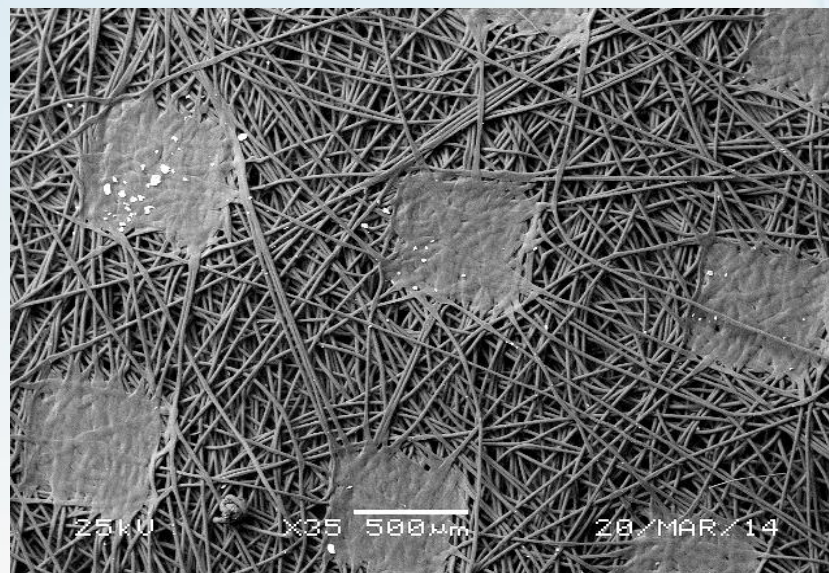
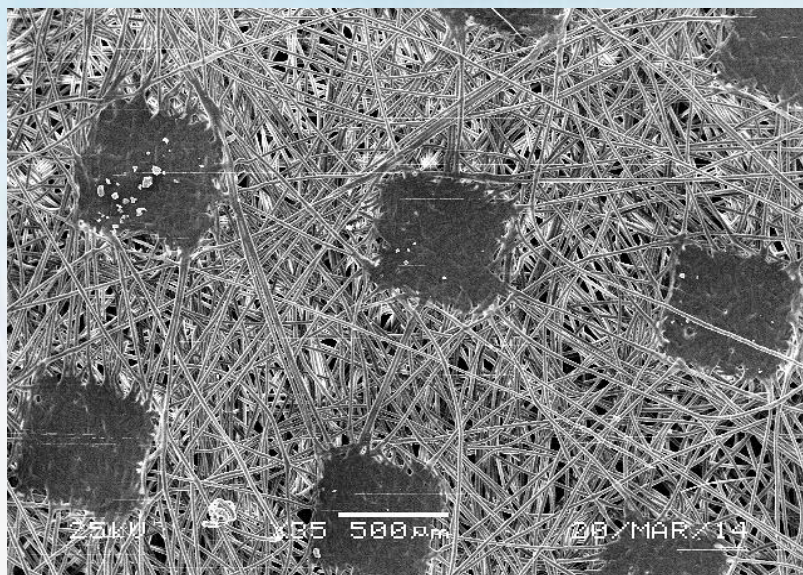
Eszközök:

- az MTA EK IKI JEOL JSM-5600 LV típusú pásztázó elektronmikroszkópja (25 kV gyorsító feszültség; visszaszórt elektron (BEI) és szekunder elektron (SEI) üzemmódban);
- iXRF EDX analízátor + Iridium Ultra szoftver (kimutathatósági határ a közepes rendszámú elemekre néhány tized tömegszázalék, a nagyon kicsi (C, O) és a nagyon nagy (U) rendszámúakra tömegszázalék nagyságrendben)

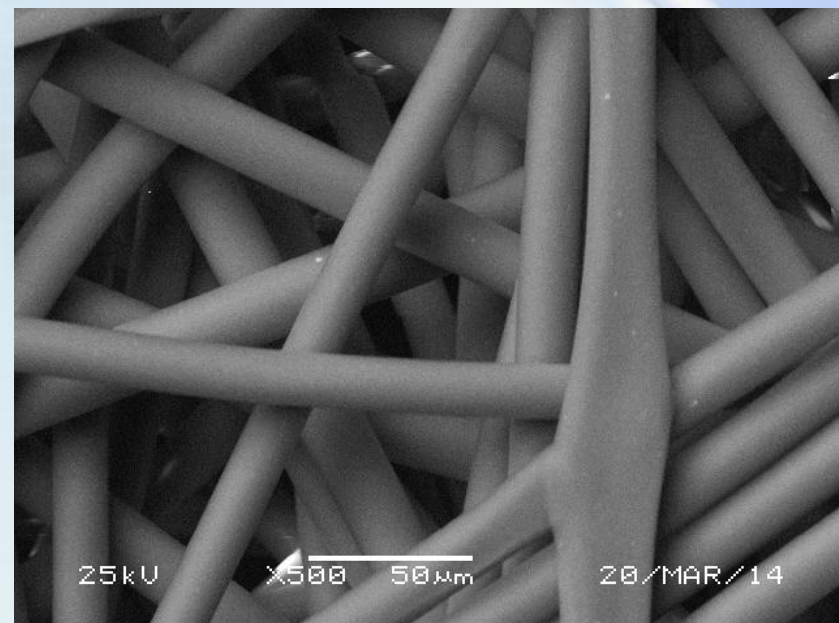
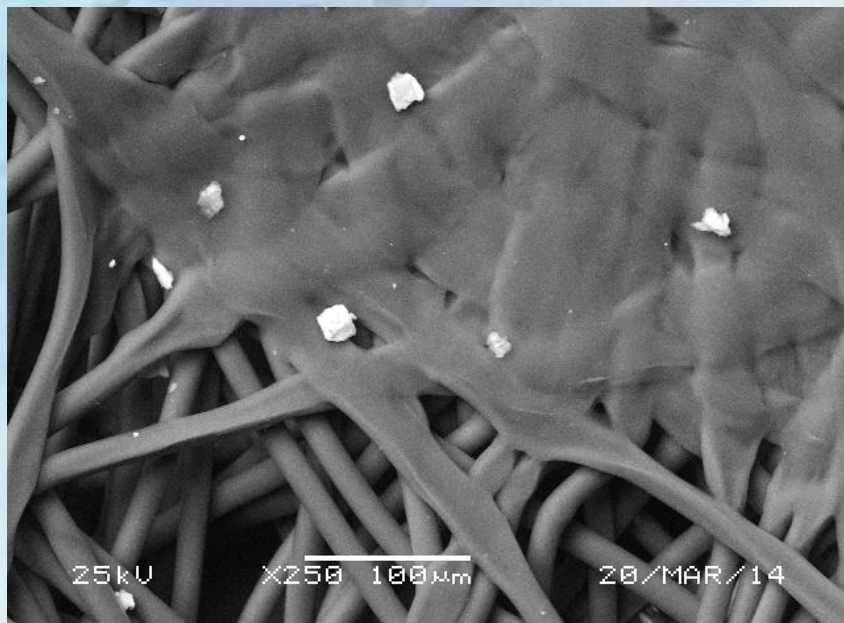
Nehézségek:

- ❑ Az amerícium rendszáma „túl nagy”;
- ❑ A legnagyobb intenzitású M vonala a Ca K_{α} vonalával és a K K_{β} vonalával erősen átfed;
- ❑ Az Am L_{α} vonala (14,618 keV) átfedés nélkül jelenik meg, de intenzitása sokkal kisebb, mint az M_{α} vonalé.

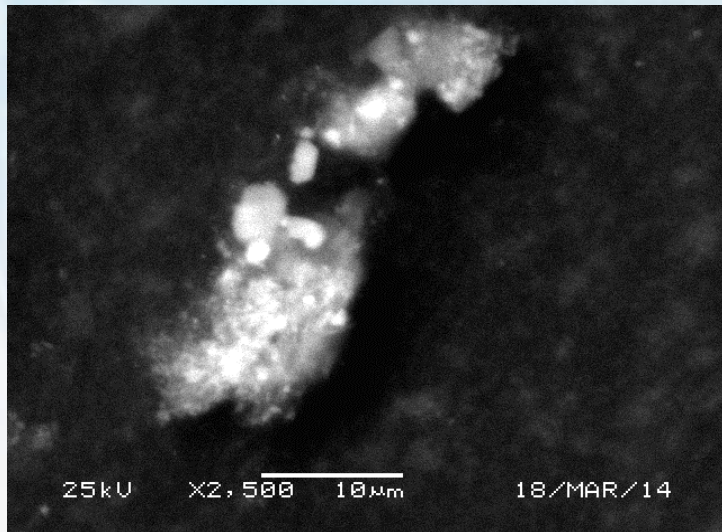
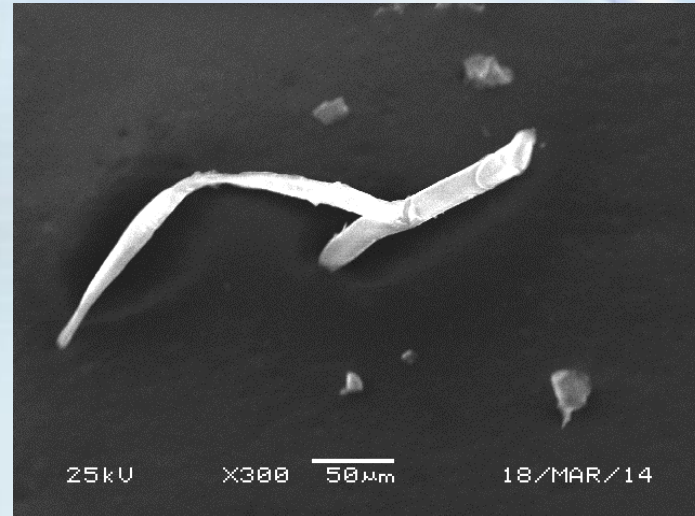
35-szörös nagyítású SEI és BEI képek egy porálarc szövetdarabról



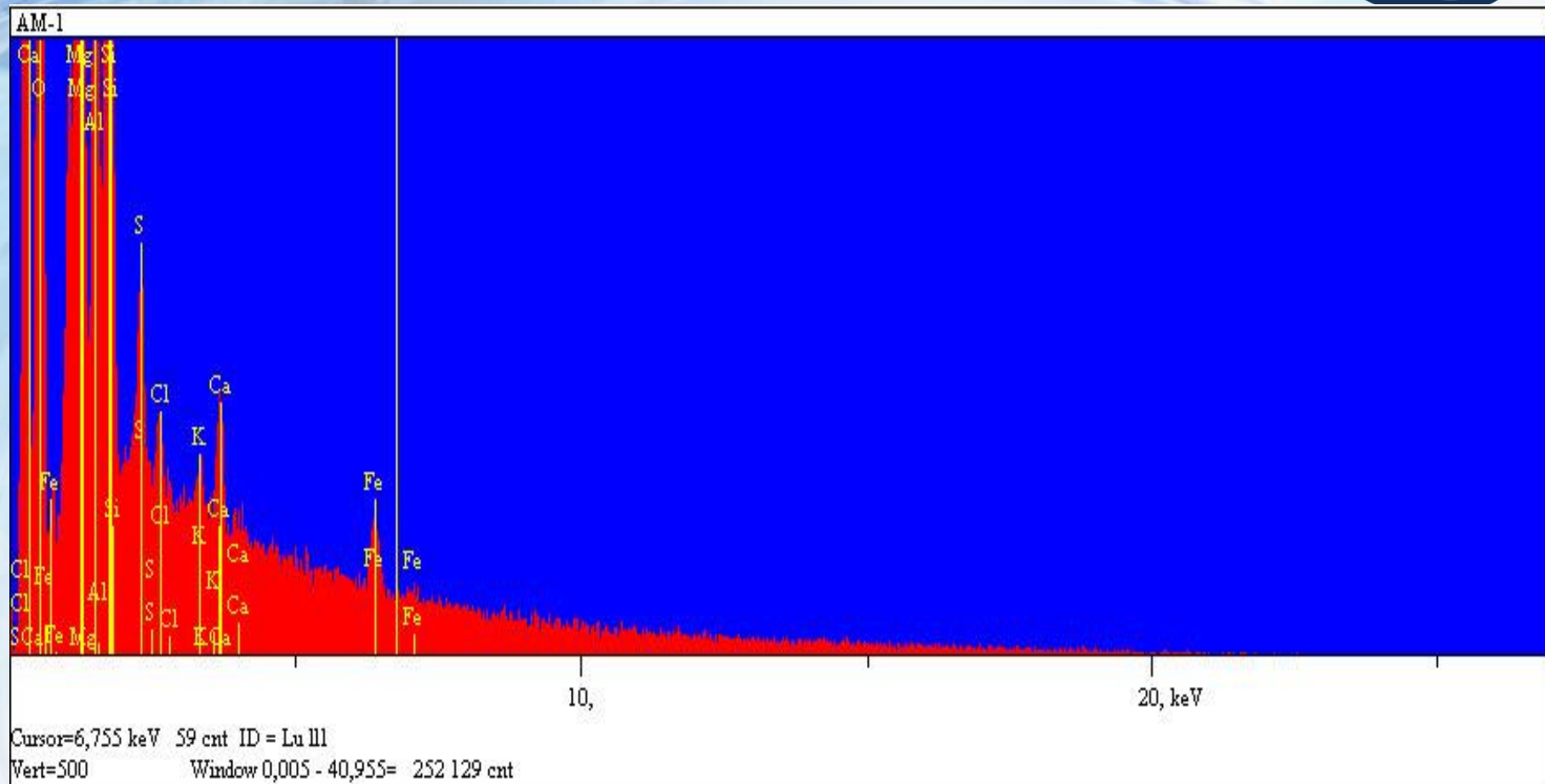
SEM-EDX vizsgálatok



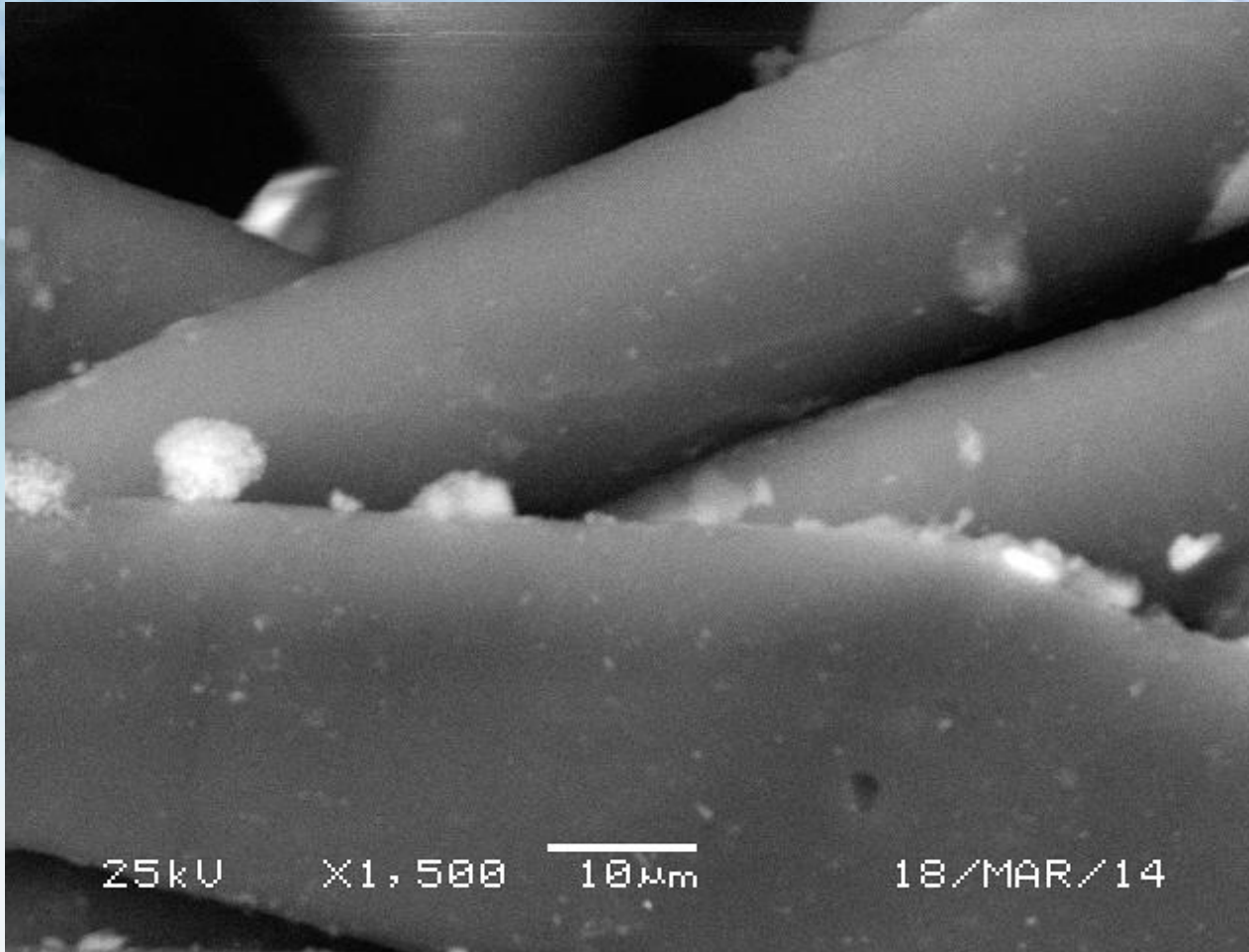
250-és 500-szoros nagyítású BEI képek egy porálarcszövetdarabról – a szálak anyaga szerves



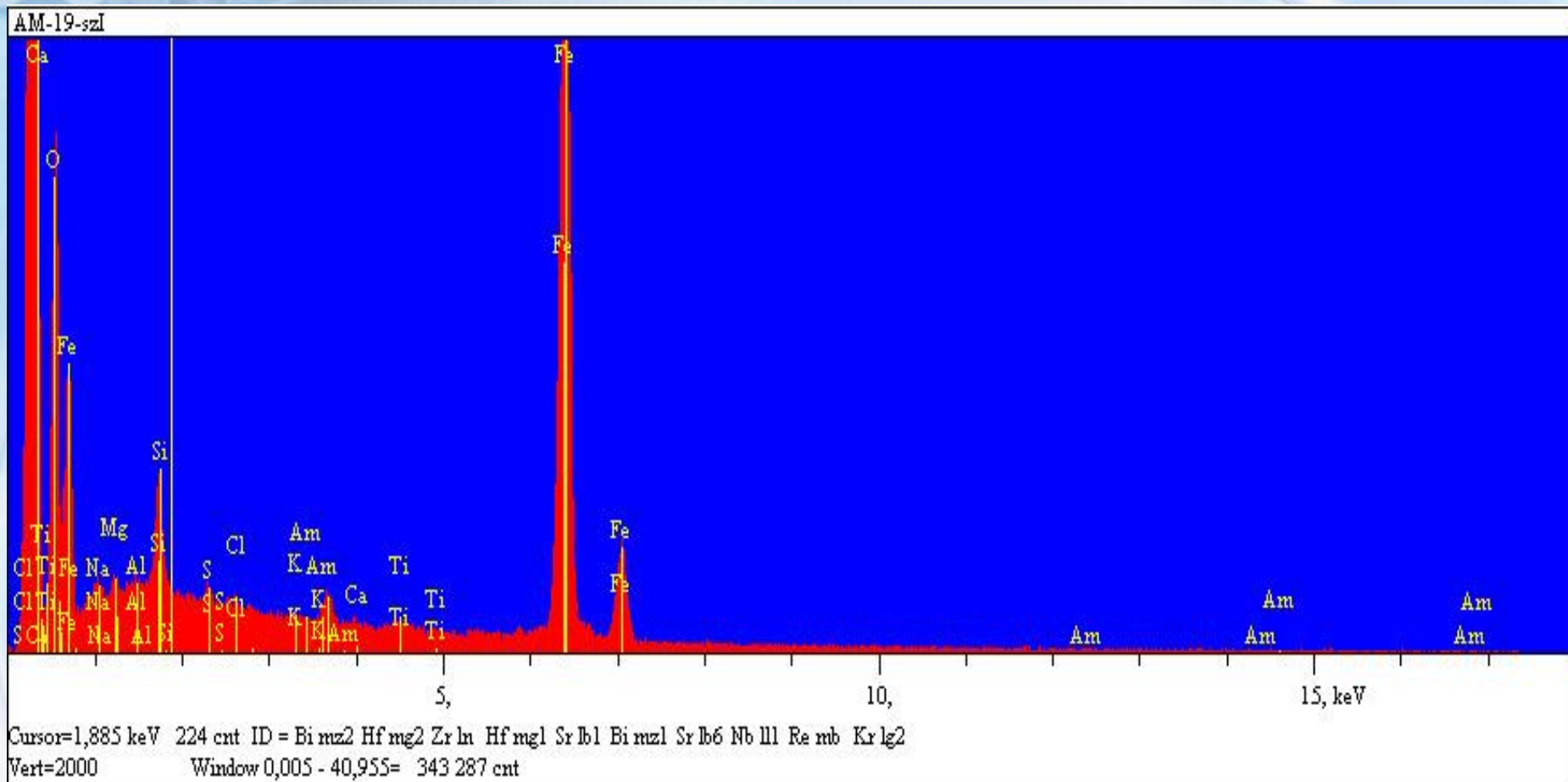
A tapadós szénszalaggal vett minta BEI felvételei, 35-szörös, 300-szoros és 2500-szoros nagyításban



A szénszalagra átkerült, néhány μm -es szemcsék egyik spektruma: szilikát, karbonát, szulfát és klorid azonosítható.



BEI felvétel a porárc szálain megtapadt szemcsékről



Az előző BEI felvételen lévő szemcsehalmozatról készült röntgenspektrum

- Az ameríciumot a SEM-EDX vizsgálatokban nem lehetett kimutatni - csak nagyobb mennyiségű Am tartalmú szemcséknél volna erre esély.
- A szennyezés az ^{241}Am könnyen oldódó ionos kémiai formában, azaz sóként volt jelen, a szűrőn megtapadt részecskék felületén. Ez megkönnyíti mind a dekontaminációt, mind a dekorporációt.

Köszönöm a figyelmet!