

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM  
KARLSRUHE**

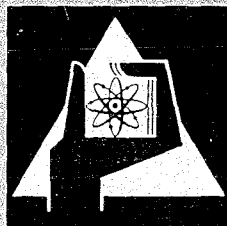
Juni 1968

KFK 822

Laboratorium für Isotopentechnik

Kontaminations- und Dekontaminationsversuche an  
geschliffenen und feuerpolierten Glasflächen

H. Vogg



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



## **Kontaminations- und Dekontaminationsversuche an geschliffenen und feuerpolierten Glasflächen**

H. VOGG, Karlsruhe

Vergleichsmessungen an geschliffenen und feuerpolierten Kegolverbindungen (Norm-Schliffe bzw. Klare-Präzisions-Verbindungen) zeigten, daß die Werte für Kontamination und Dekontamination beträchtliche Unterschiede aufweisen. Die Versuche wurden mit den Radionukliden Cs-137, Ba-133, J-131 und Reaktorbestrahltem Silikonfett durchgeführt.

### Contamination and Decontamination Tests with ground and fire-polished Glass Surfaces

Comparative measurements with ground and fire-polished taper joints (standard grindings or clear precision joints) showed considerable differences in the values obtained for contamination and decontamination. The tests were carried out with the radionuclides Cs-137, Ba-133, J-131 and with silicone grease irradiated in a reactor.

### Essais de contamination et de décontamination sur des surfaces en verre rectifiées et polies au feu

Des mesures de comparaison effectuées sur des jonctions coniques rectifiées et polies au feu (rectifications standard ou jonctions distinctes de précision) ont montré des différences importantes en ce qui concerne les valeurs obtenues pour la contamination et pour la décontamination. Les essais ont été faits sur les radionuclides Cs-137, Ba-133, J-131 et la graisse de silicone irradiée dans le réacteur.

Aus der Literatur sind mehrere Untersuchungen bekannt, die sich mit der Adsorption von Ionen an Glasoberflächen beschäftigen (1-5). Diese Arbeiten gehen alle von einer einheitlichen Glasoberfläche aus und verfolgen die Adsorption vor allem in Abhängigkeit von der Kontaktzeit und im besonderen vom pH-Wert.

Solche Zusammenhänge wurden in der folgenden Arbeit nicht studiert, da es sich hierbei ausschließlich um eine vergleichende Untersuchung zwischen verschiedenen Glasverbindungen (Normschliffe NS und Klare Präzisions-Verbindungen KPV) handelt. Neben der Beladung dieser unterschiedlichen Glasflächen mit Fremdionen stand auch der umgekehrte Vorgang, die Reinigung der Glasflächen, im Vordergrund des Interesses.

Für die Versuche kamen die Radionuklide Cs-137, Ba-133, J-131 und Reaktorbestrahltes Silikonfett zum Einsatz. Verwendet wurden KPV- und NS-Kerne der Nennweite 14.

#### I. Kontaminationsversuche

Diese Versuche wurden durchgeführt bei Zimmertemperatur durch Tauchen der jeweiligen Glasverbindungen in Caesium-, Barium- und Jodlösungen, die mit Cs-137 bzw. Ba-133 bzw. J-131 markiert waren. Dabei wurden stets gereinigte und vor allem völlig fettfreie Glasverbindungen eingesetzt. Die Glaskerne waren durch einen Stopfen unten dicht verschlossen, so daß nur an der äußeren Oberfläche eine Kontamination einsetzen konnte. Nach dem Tauchvorgang wurde der Stopfen entfernt, die Gläser an der Luft getrocknet und die an-

haftende Aktivität mit einem Strahlungsmeßgerät in einem für die Messung  $\gamma$ -strahlender Radionuklide am besten geeigneten NaJ-Szintillations-Bohrloch-Detektor ausgemessen (vgl. nebenstehende Abbildung).

Die genauen Versuchsbedingungen und die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle 1 zusammengefaßt.

Zu den in der letzten Spalte angegebenen Aktivitätsmeßwerten am Glas nach dem Tauchvorgang ist zu bemerken, daß sie auf- oder abgerundete Mittelwerte aus jeweils ca. 5 Versuchen darstellen. Teilweise zeigten einzelne Meßwerte

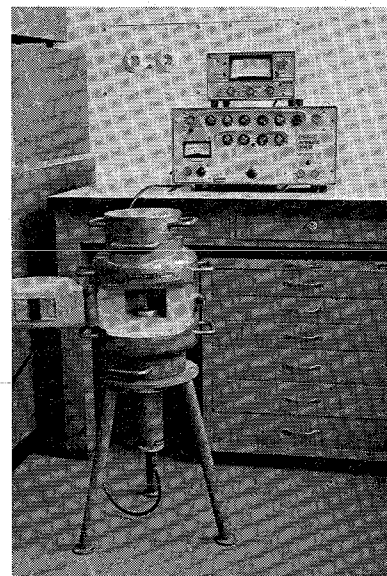


Abb.: Strahlungsmeßplatz mit Bohrlochszintillationssonde und geöffneter Bleikammer

\*) Dr. H. Vogg ist Leiter des Laboratoriums für Isotopentechnik im Kernforschungszentrum Karlsruhe.

**Tabelle 1:** Kontaminationswerte von NS und KPV nach Kontakt mit radioaktiven Caesium-, Barium- und Jodlösungen

Element	Chem. Form	Konzentration	pH	Radionuklid	Aktivität	Tauchzeit	Anhaftende Aktivität in Imp/min	
							KPV	NS
Caesium	Cs <sup>+</sup>	10 <sup>-4</sup> m	6	Cs-137	1 µc/ml	3 Tage	5 · 10 <sup>4</sup>	2,5 · 10 <sup>5</sup>
Barium	Ba <sup>++</sup>	10 <sup>-4</sup> m	3	Ba-133	2 µc/ml	3 Tage	1,2 · 10 <sup>4</sup>	3 · 10 <sup>4</sup>
Jod	J <sup>-</sup>	10 <sup>-4</sup> m	8	J-131	2 µc/ml	3 Tage	1 · 10 <sup>4</sup>	4 · 10 <sup>4</sup>
Jod	J <sup>-</sup>	trägerfrei gewichtslos	8	J-131	2 µc/ml	3 Tage	3 · 10 <sup>3</sup>	1,5 · 10 <sup>5</sup>

Abweichungen vom Mittelwert bis zu ± 50 %, da verständlicherweise der Tauchvorgang mit anschließendem Lufttrocknen ein recht wenig exakter und deshalb schlecht reproduzierbarer Prozeß ist. Ferner ist anzunehmen, daß die verwendeten Glasverbindungen, sowohl NS als auch KPV, eine recht unterschiedliche Oberflächenbeschaffenheit aufweisen können. Die Mittelwerte sind auf etwa ± 25 % genau. Diese Genauigkeit ist voll ausreichend, da in dem interessierenden Zusammenhang ohnehin nur die Größenordnungen von Bedeutung sind und in der vergleichenden Betrachtung von NS und KPV nur ein bestimmter Trend festgestellt werden sollte.

Die Ergebnisse zeigen dreierlei:

- Bezogen auf gleiche Ausgangskonzentration in der Lösung ergeben sich in Abhängigkeit vom jeweils untersuchten Element unterschiedliche Kontaminationswerte. Die Caesiumkontamination ist bei NS wie bei KPV etwa um den Faktor 10 höher als die Bariumkontamination und die vergleichbare (10<sup>-4</sup> m) Jodkontamination; letztere sind untereinander etwa gleich. Wenn man die chemischen Eigenschaften und die Zusammensetzung von Gläsern betrachtet, dann steht dieser Befund durchaus mit den Erwartungen im Einklang.
- Ein Vergleich der Kontaminationswerte von trägerhaltigem und trägerfreiem Jod zeigt, daß die Kontamination bei trägerfreier Anwendung etwa um den Faktor 3-4 größer ist als mit Trägermaterial. Dies ist eine bei radiochemischen Arbeiten allgemein bekannte Tatsache, wengleich die Unterschiede manchmal sehr viel größer, als hier gemessen, angenommen werden.
- Alle 4 Versuchsreihen ergeben eindeutig, daß NS und KPV in ihrem Kontaminationsverhalten sich erheblich unterscheiden. KPV wird über die Gesamtheit aller Versuche etwa um den Faktor 5 geringer kontaminiert als NS. Mit hoher Wahrscheinlichkeit resultieren diese Unterschiede aus den sehr verschiedenen Oberflächen von NS und KPV. Ob ein direkt proportionaler Zusammenhang zwischen möglicher Kontamination und Oberfläche besteht, müßte durch weitere Untersuchungen unter Einbeziehung von Oberflächenbestimmungen noch ermittelt werden.

## II. Dekontaminationsversuche

Nach den im Abschnitt I beschriebenen Kontaminationsversuchen wurde die Dekontamination der jeweiligen Glasverbindungen untersucht. Dazu wurde von Glasverbindungen ausgegangen, die entsprechend Abschnitt I mit Cs-137, Ba-133

und J-131 kontaminiert waren. Zusätzlich wurden noch Versuche an Glasverbindungen durchgeführt, die mit Reaktorbestrahltem Silikonfett mechanisch beschichtet worden waren. Durch Reaktorbestrahlung entsteht im Silikonfett vorwiegend Si-31-Aktivität mit einer Halbwertszeit von 2,6 Stunden. Um die Meßwerte miteinander vergleichen zu können, wurden daher alle Werte stets auf einen gemeinsamen Bezugspunkt korrigiert. Gemessen wurde die Bremsstrahlung des Si-31 in einem Szintillationsdetektor.

Für die Dekontamination wurden drei verschiedene Methoden angewandt:

- Dekontamination durch Wischen mit trockenem Kleenex,
- Dekontamination durch Wischen mit RBS (2 %ig) befeuchtetem Kleenex,
- Dekontamination durch Behandlung in 2 %iger RBS-Lösung (pH = 12).

Für a und b wurde die Anzahl der Wischvorgänge, für c auf die Kontaktzeit in der Spüllösung bezogen.

Eine Versuchsreihe wurde durchgeführt, in der die erwähnten Reinigungsmethoden in der Reihenfolge a-c hintereinandergeschaltet wurden, eine andere Versuchsreihe betraf nur die Reinigung mit RBS-Lösung.

- Für das kombinierte Reinigungsverfahren wurden die in den folgenden Abbildungen 1-5 sowie den Tabellen 2 und 3 dargestellten Ergebnisse erhalten. Erläuterung zu den Abbildungen:

$$\frac{A}{A_0} = \frac{\text{Aktivität nach jeweiligem Reinigungsschritt}}{\text{Anfangsaktivität}}$$

Die nachfolgende Tabelle 2 enthält die zu obigen Abbildungen gehörenden wichtigsten Einzelaktivitätswerte.

Bildet man aus der Tabelle 2, ähnlich wie in den Abbildungen, das Verhältnis der Aktivitätswerte, in diesem Fall

$$A_0/A_n = \frac{\text{Anfangsaktivität}}{\text{Aktivität nach jeweiligem Reinigungsschritt}}$$

(d. h. man ermittelt aus Tabelle 2 das Verhältnis der Spalte 1 und 3, 1 und 5, 1 und 7 bzw. 2 und 4, 2 und 6, 2 und 8), so erhält man einen Wert, der als Dekontaminationsfaktor sehr anschaulich die Reinigungswirksamkeit der einzelnen Methoden deutlich macht.

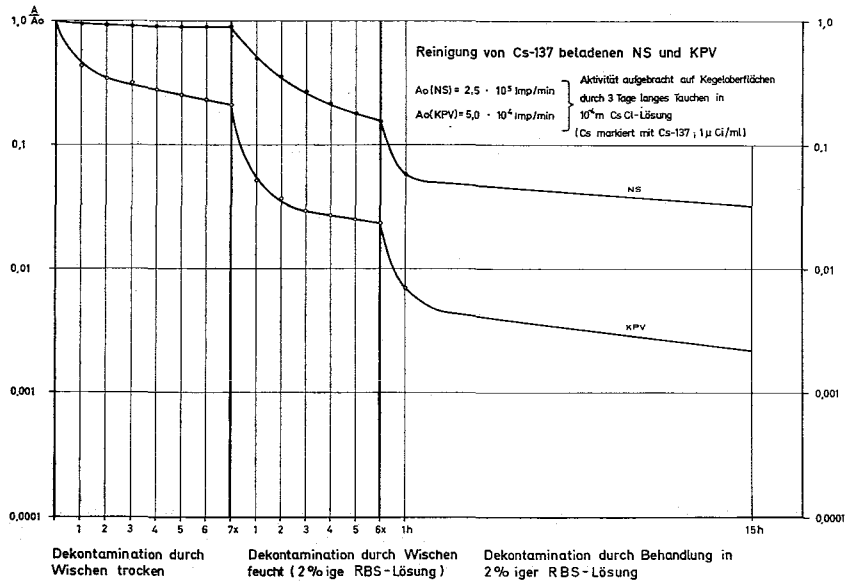


Abbildung 1

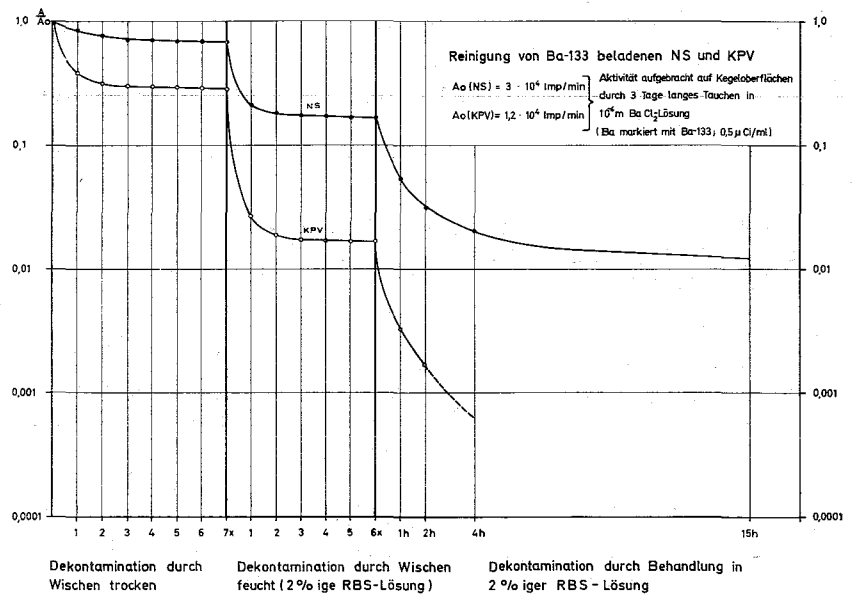


Abbildung 2

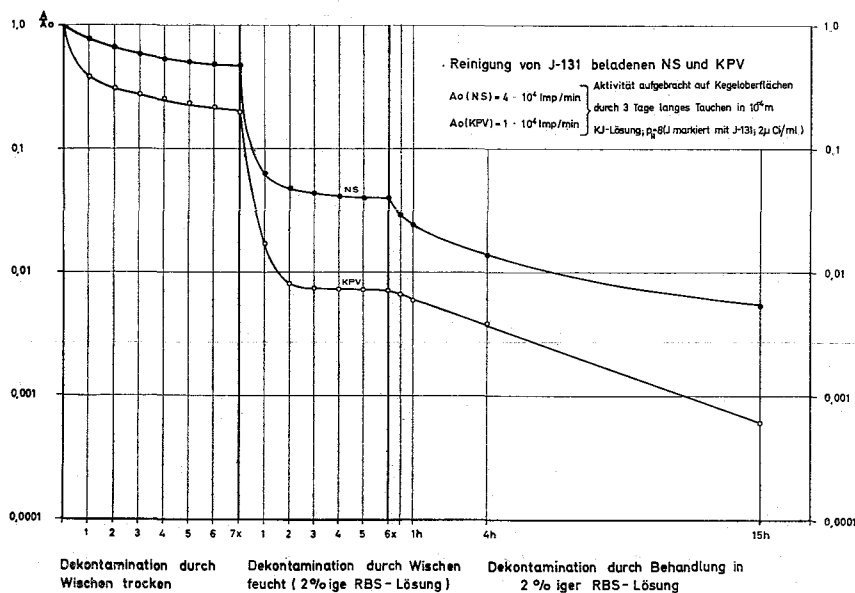


Abbildung 3

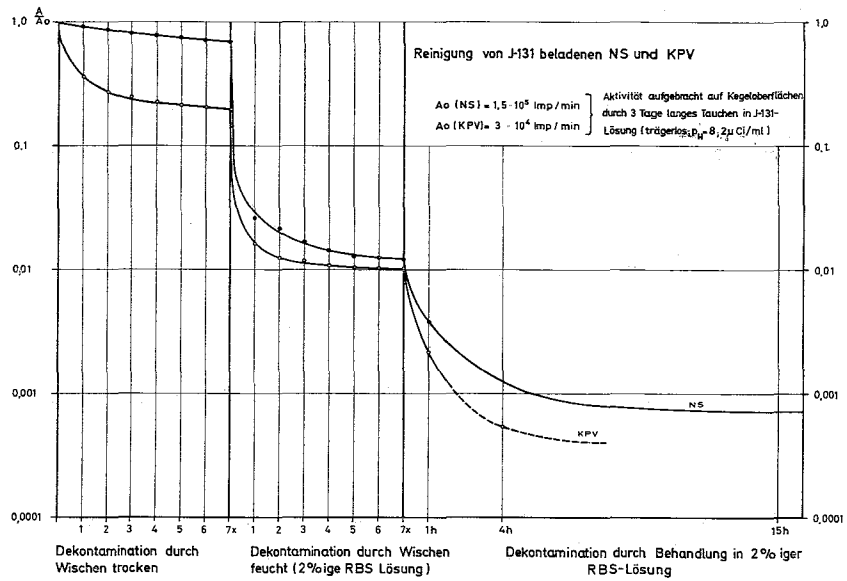


Abbildung 4

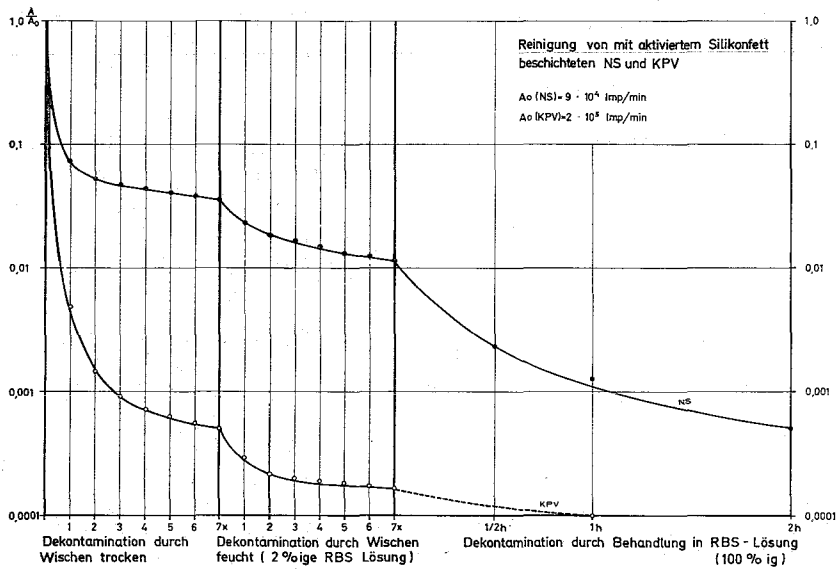


Abbildung 5

**Tabelle 2:** Kontaminationswerte von Cs-, Ba-, J- und Silikonfett-beladenen KPV und NS nach verschiedenen, hintereinandergeschalteten Reinigungsoperationen

	Anfangswert Imp/min		Endwert nach Wischen trocken Imp/min		Endwert nach Wischen feucht Imp/min		Endwert nach RBS-Behandlung Imp/min	
	KPV 1	NS 2	KPV 3	NS 4	KPV 5	NS 6	KPV 7	NS 8
Cs	$5 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^4$	$2,2 \cdot 10^5$	$1 \cdot 10^3$	$4 \cdot 10^4$	$1 \cdot 10^2$	$8 \cdot 10^2$
Ba	$1,2 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^3$	$1,5 \cdot 10^4$	$1,8 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^3$	—	$3,6 \cdot 10^2$
J mit Träger	$1 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^3$	$1,9 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^1$	$1,6 \cdot 10^3$	—	$2,2 \cdot 10^2$
J ohne Träger	$3 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^5$	$6 \cdot 10^3$	$3 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^2$	$1,8 \cdot 10^3$	—	$1 \cdot 10^2$
Silikonfett	$2 \cdot 10^5$	$9 \cdot 10^4$	$1 \cdot 10^2$	$3,2 \cdot 10^3$	$3,2 \cdot 10^1$	$9 \cdot 10^2$	—	$4,5 \cdot 10^1$

**Tabelle 3:** Dekontaminationsfaktoren für Cs-, Ba-, J- und Silikonfett-beladene KPV und NS in Abhängigkeit hintereinandergeschalteter, verschiedener Reinigungsmethoden

	KPV			NS		
	Spalte 1*) Spalte 3 DF nach Wischen trocken	Spalte 1 Spalte 5 DF nach Wischen feucht	Spalte 1 Spalte 7 DF nach RBS-Behandlg.	Spalte 2*) Spalte 4 DF nach Wischen trocken	Spalte 2 Spalte 6 DF nach Wischen feucht	Spalte 2 Spalte 8 DF nach RBS-Behandlg.
Cs	5	50	500	~1	~6	~30
Ba	4	~70	>1000	2	6	~85
J mit Träger	5	~140	>1000	~2	~25	~180
J ohne Träger	5	100	>3000	5	~85	1500
Silikonfett	2000	~6000	>20000	~30	100	2000

\*) siehe Tabelle 2

Es sei nochmals darauf hingewiesen, daß die drei erwähnten Reinigungsmethoden hintereinander angewendet wurden und so multiplikativ zum insgesamt in diesen Versuchen erreichten Gesamtdekontaminationsfaktor beitragen.

Folgendes ist aus den Ergebnissen festzustellen: Klare Präzisionsverbindungen lassen sich durchweg besser reinigen als Normschliffe. Exakte Endwerte können in vielen Fällen nicht ermittelt werden, da bei der letzten Reinigungsoperation an KPV oft schon die Nachweisgrenze erreicht war. Insgesamt kann man aber die Ergebnisse so deuten, daß der Gesamtdekontaminationsfaktor bei KPV gegenüber NS etwa 1 Größenordnung günstiger liegt. Auch bei den Einzeloperationen ist festzustellen, daß KPV beim trockenen wie beim feuchten Wischen wie auch bei der Tauchbehandlung NS gegenüber überlegen ist.

Besonders eindrucksvoll und von technisch besonderem Interesse sind die Silikonfettversuche: Hier zeigt sich bereits beim trockenen Wischen eine hervorragende Reinigungswirksamkeit an KPV, fast um den Faktor 100 höher als bei NS.

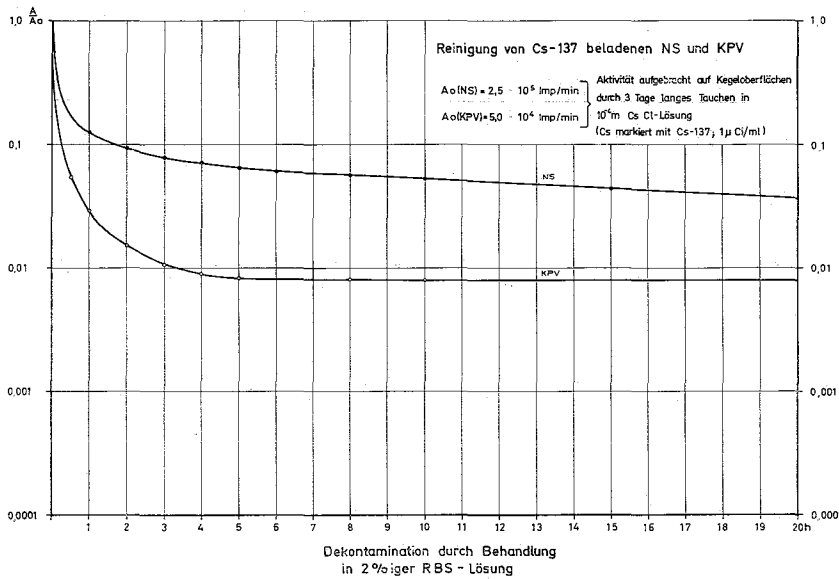
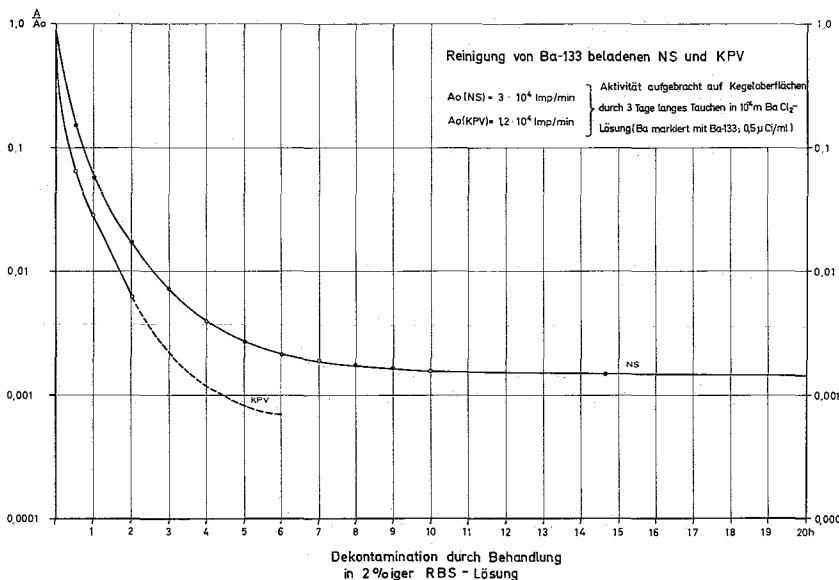


Abbildung 6



Diese Tatsache geht weit über radiochemische Anwendungsmöglichkeiten hinaus und hat eine sehr allgemeine Bedeutung. Wie die Untersuchungen ergeben haben, ist es ohne Schwierigkeiten möglich, das Silikonfett an KPV vollständig wieder zu entfernen, was vor allem für nachfolgende Glasbläserarbeiten an solchen Glasteilen von besonderer Bedeutung ist.

2. Kontaminierte klare Präzisionsverbindungen und kontaminierte Normschliffe wurden in einer zweiten Versuchsreihe als einziger Reinigungsoperation mit 2%iger bzw. bei den Silikonfettversuchen mit 100%iger RBS-Lösung unterschiedliche Zeiten lang behandelt. Während des Tauchvorgangs in der RBS-Lösung wurde gerührt. Die folgenden Abbildungen 6-10 sowie die Tabellen 4 und 5 enthalten die Ergebnisse.

In der folgenden Tabelle 4 sind die zu den Abbildungen 6-10 gehörenden, wichtigsten Einzelaktivitätswerte und in Tabelle 5 die Dekontaminationsfaktoren zusammengestellt.

Abbildung 7



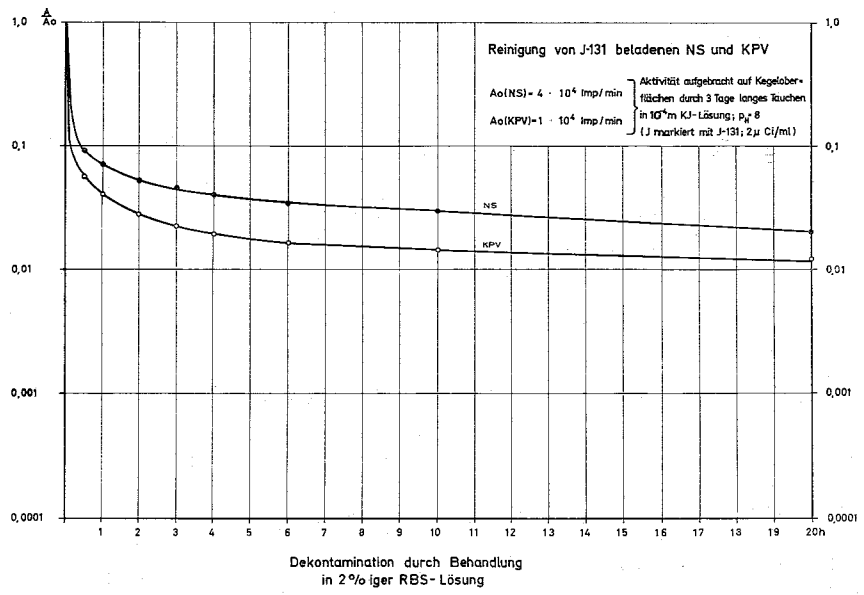


Abbildung 8

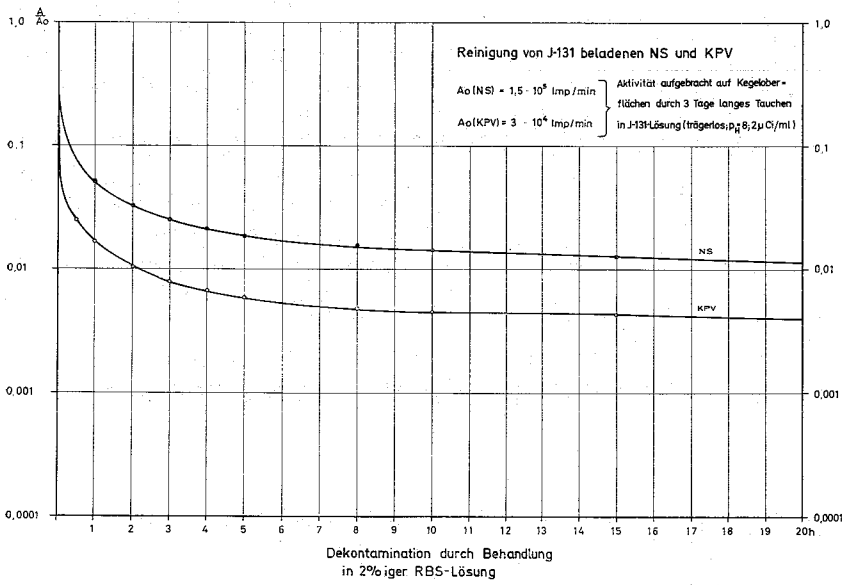


Abbildung 9

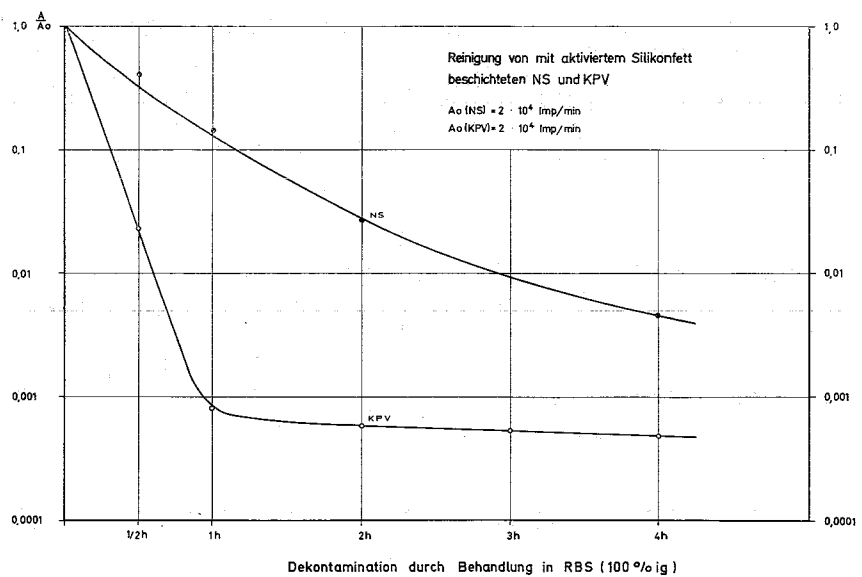


Abbildung 10

**Tabelle 4:** Kontaminationswerte von Cs-, Ba-, J- und Silikonfett-beladenen KPV und NS nach Reinigungsbehandlung mit RBS

	Anfangswert		Aktivitätswert nach 1 h RBS-Behandlung		Aktivitätswert nach 5 h RBS-Behandlung		Aktivitätswert nach 20 h RBS-Behandlung	
	Imp/min		KPV	NS	KPV	NS	KPV	NS
	1	2	3	4	5	6	7	8
Cs	$5 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^5$	$1,5 \cdot 10^3$	$3 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^2$	$1,6 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^2$	$9,2 \cdot 10^3$
Ba	$1,2 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^4$	$3,4 \cdot 10^2$	$1,8 \cdot 10^3$	—	$8,1 \cdot 10^1$	—	$4,2 \cdot 10^1$
J mit Träger	$1 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^2$	$2,8 \cdot 10^3$	$1,6 \cdot 10^2$	$1,4 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^2$	$8 \cdot 10^2$
J ohne Träger	$3 \cdot 10^4$	$1,5 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^2$	$7,5 \cdot 10^3$	$1,8 \cdot 10^2$	$2,7 \cdot 10^3$	$1,2 \cdot 10^2$	$1,4 \cdot 10^3$
Silikonfett	$2 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^1$	$2,6 \cdot 10^3$	$1 \cdot 10^1$ (4 h)	$9 \cdot 10^1$ (4 h)	—	nicht gemessen

**Tabelle 5:** Dekontaminationsfaktoren für Cs-, Ba-, J- und Silikonfett-beladene KPV und NS in Abhängigkeit unterschiedlich langer Reinigungsbehandlung mit RBS

	KPV			NS		
	Spalte 1*)	Spalte 1	Spalte 1	Spalte 2*)	Spalte 2	Spalte 2
	Spalte 3	Spalte 5	Spalte 7	Spalte 7	Spalte 4	Spalte 8
	DF nach 1 h	DF nach 5 h	DF nach 20 h	DF nach 1 h	DF nach 5 h	DF nach 20 h
Cs	~30	~120	~120	~8	~15	~30
Ba	~35	>1000	>1000	~15	~370	~700
J mit Träger	25	~60	~85	~15	~30	50
J ohne Träger	60	~170	250	20	~55	~110
Silikonfett	~1200	2000	>2000	~8	~220	nicht gemessen

\*) siehe Tabelle 4

Die Ergebnisse zeigen auch hier, wie bei den kombinierten Reinigungsmethoden, eine deutliche Überlegenheit von KPV über NS. Die DF-Werte liegen bei den Einzelradionukliden etwa um den Faktor 2–5, bei Silikonfett, wiederum sehr bemerkenswert, um den Faktor 10–100 günstiger.

### III. Zusammenfassung

Klare Glas-Präzisionsverbindungen und Normschliffe wurden auf ihr Kontaminations- und Dekontaminationsverhalten

untersucht. Verwendet wurden dafür die Radionuklide Cs-137, Ba-133 und J-131, für die Dekontaminationsversuche außerdem Reaktor-bestrahtetes Silikonfett. Als Ergebnis kann festgestellt werden, daß der Kontaminationsgrad bei KPV geringer ist als bei NS, und zwar über die Gesamtheit aller Versuche gemittelt etwa um den Faktor 5. Der Kontaminationsfaktor ist bei KPV ebenfalls günstiger als bei NS, und zwar etwa um den Faktor 10. Dies führt zu einem insgesamt um den Faktor 50 besseren Ergebnis bei KPV als bei NS.

Besonders bemerkenswert ist bei KPV die besonders gute Reinigungseffektivität bei Silikonfett-beschichteten Verbindungen, wo DF-Werte bis zu  $2 \cdot 10^4$  (bei NS bis zu  $2 \cdot 10^3$ ) ermittelt werden konnten. Bei ausschließlich trockenem Wischen liegen dabei die Unterschiede zwischen KPV und NS bei > 100.

Der Verfasser möchte Herrn Chemie-Ing. Reinhard HÄRTEL für die experimentelle Durchführung der Versuche sehr herzlich danken.

### IV. Literatur

- [1] BENES, P. et al., Radiochimica Acta 5 (1966) S. 99
- [2] BOOCOOCK, G. et al., Nature 194 (1962) S. 672
- [3] HERCZYNSKA, E., Z. phys. Chem. 217 (1961) S. 139
- [4] HERCZYNSKA, E., Z. phys. Chem. 226 (1964) S. 411
- [5] LIESER, K. H., Radiochimica Acta 4 (1965) S. 225