

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

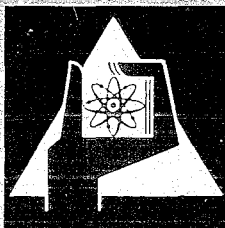
Juli 1969

KFK 1019

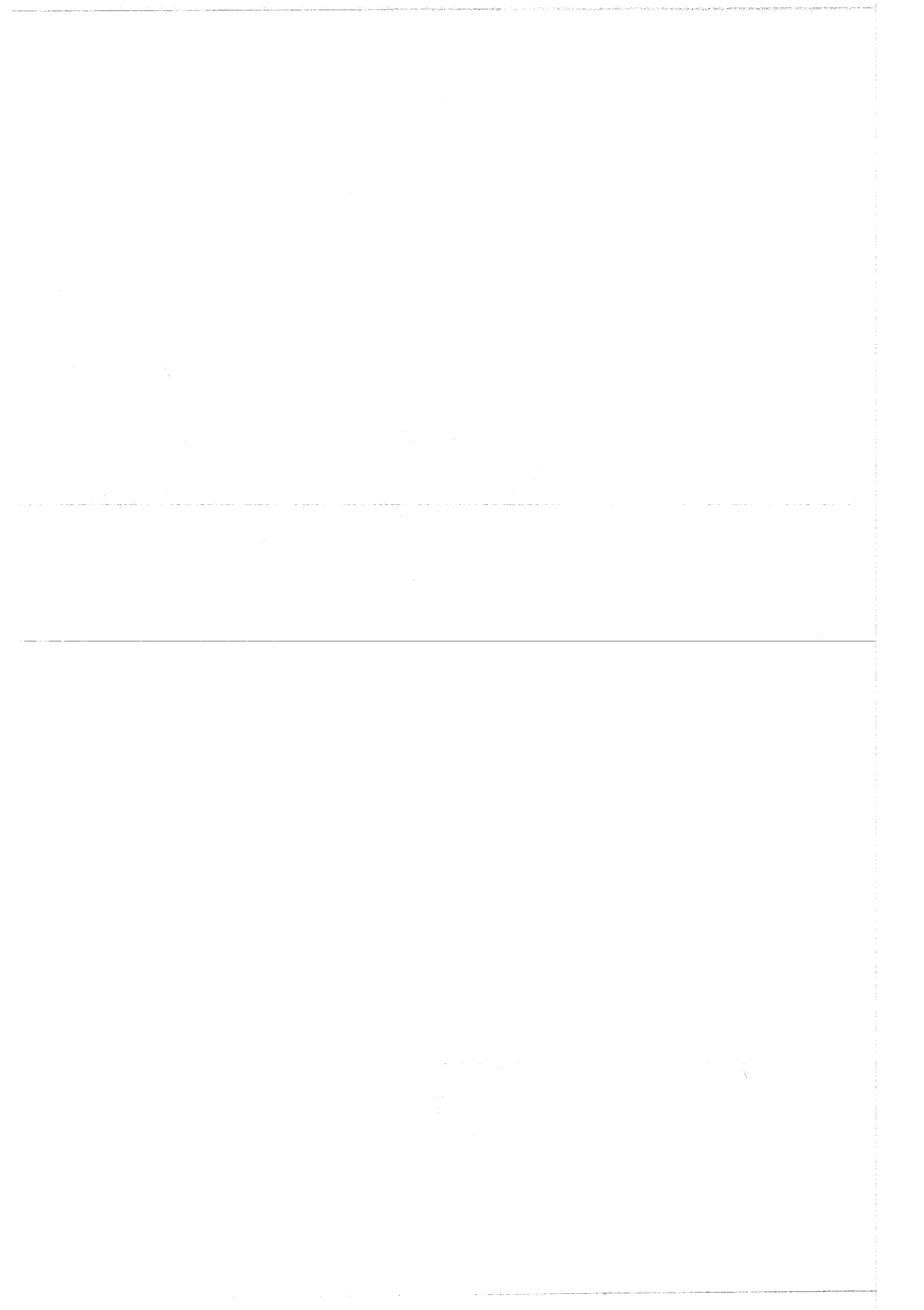
Laboratorium für Isotopentechnik

Untersuchungen zur Dekontaminationswirkung
handels- und laborüblicher Reinigungsmittel

J. Schmitz



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE



Ergänzung zum KFK-Bericht Nr. 1019

Im Anschluß zu den vorliegenden Untersuchungen wurden Dekontaminationsversuche an dem Reinigungsmittel MUCASOL^R der Firma Merz + Co., Frankfurt/Main, in völlig analoger Weise bei 50° und 70 °C mit den Nukliden Cäsium-137, Barium-133 und Jod-131 dynamisch und statisch durchgeführt. Die Konzentrationsabhängigkeit der dynamischen Cäsium-Dekontamination ergab ein Maximum der Dekontaminationswirksamkeit zwischen 1 und 3 Gew. %.

Eine eindeutige Überlegenheit gegenüber allen bisher untersuchten Mitteln ergab sich bei der statischen Dekontamination bei 50 °C, besonders auffällig war die gute Dekontamination von Barium und Jod. Bei der dynamischen Dekontamination erreichte das MUCASOL eine Dekontaminationsrate von ca. 99,7 % in 90 Minuten für alle 3 Nuklide bei 50° und 70 °C.

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Juli 1969

KFK 1019

Laboratorium für Isotopentechnik

Untersuchungen zur Dekontaminationswirkung
handels- und laborüblicher Reinigungsmittel

von

J. Schmitz

Gesellschaft für Kernforschung m. b. H. Karlsruhe

Untersuchungen zur Dekontaminationswirkung
Handels- und Laborüblicher Reinigungsmittel

Die im folgenden beschriebenen Untersuchungen wurden im Auftrag der Firma Merz + Co., Frankfurt/Main, Hersteller des Schnellreinigungsmittels EDISONITE,[®] durchgeführt. Es erfolgte eine vergleichende Bewertung der Dekontaminationswirksamkeit des EDISONITE mit Wasser, Natronlauge, Salzsäure und Chromschwefelsäure sowie mit den im Handel erhältlichen Spülkonzentraten der Firmen:

Siegfried L. Brembs, Lorch
Anton Berger, Solothurn
Boehme Fettchemie, Düsseldorf
Max Morant, Aschau
Carl Roth OHG, Karlsruhe

Die Namen und Konzentrationen der verwendeten Spülkonzentrate sind in den folgenden Seiten verschlüsselt angegeben (vgl. Abschnitt 3.5). Der Schlüssel wird den Mitarbeitern der Gesellschaft für Kernforschung zum ausschließlich internen Gebrauch vom Laboratorium für Isotopentechnik zur Verfügung gestellt. Die allgemein zugängliche Veröffentlichung des Schlüssels ist der Firma Merz + Co. vorbehalten.

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird eine vergleichende Prüfung der Dekontaminationswirksamkeit von einigen handelsüblichen Reinigungsmitteln und von Natronlauge, Salzsäure, Chromschwefelsäure und Wasser durchgeführt. Es wurden Norm-Glasschliffe NS 14,5 Duran 50 bis zur Sättigung mit den Radioisotopen J-131, Ba-133, Cs-137 kontaminiert. Die kontaminierten Schliffe wurden in die zu untersuchende Lösung eingehängt und nach festgelegten Zeitintervallen die am Schliff verbliebene Restaktivität gemessen. Die Auftragung der Restaktivität gegen die Einwirkzeit ergibt die Dekontaminationskurve, aus deren Verlauf sich die Dekontaminationswirksamkeit der untersuchten Reinigungsmittel direkt ablesen lässt. Die Untersuchungen wurden bei 20, 50 und 70 °C durchgeführt und in zwei verschiedene Dekontaminationsmethoden unterteilt: Das statische Belassen der kontaminierten Schliffe in den Lösungen - vergleichbar einem laborüblichen Einlegen verschmutzter Geräte in eine Reinigungslösung - und das dynamische Bewegen der Lösungen um die Schliffe auf einer Schüttelmaschine mit definierter Frequenz - vergleichbar mit einem Spülen von Hand oder Maschinenspülen. Das statische Einwirken führte im allgemeinen erst bei erhöhter Temperatur und langer Einwirkzeit zu befriedigenden Dekontaminationsraten, wobei das Ba-133 am schwierigsten zu dekontaminieren war. Erst das dynamische Einwirken der Spülmittel bringt bei einigen der untersuchten Spülmittel innerhalb kurzer Zeit Dekontaminationswerte von 99,9%, die nach unserer Ansicht eine Wiederbenutzung der kontaminierten Glasgeräte ermöglicht. Die Dekontaminationswirksamkeit der einzelnen Reinigungsmittel wird eingehend beschrieben und eine Deutung der Dekontaminationsvorgänge an Glasoberflächen diskutiert.

Summary

In the present report a comparing investigation was made of the decontamination effect of several commercial cleaning agents and of sodiumhydroxide, hydrochloric acid, chromo-sulfuric acid and water. Duran 50 standard ground-glass-joints, Ns 14.5, were contaminated to saturation with J-131, Ba-133 and Cs-137. The contaminated glass-joints were hung into the solution to be examined and the residual activity of the glass-joints was measured in a fixed time interval. The plotting of the residual activity against interaction time resulted the decontamination curve, the course of which gives a direct picture of the decontamination efficiency. The investigations were made at 20, 50 and 70 °C and they are divided in two basic decontamination methods: The static leaving of the contaminated glass joints in the solution - comparable with the laboratory used insertion of dirty glassware into a cleaning solution -, or the dynamic moving of the cleaning solution around the glass joints on a shaking machine with fixed frequency - comparable with washing by hand or machine scavenging. In general the static interaction leads only at higher temperatures and longer reaction times to satisfactory decontamination. The most difficult isotope to decontaminate was Ba-133. With some of the cleaning solutions only the dynamic interaction leads to decontamination results of 99.9% within a short reaction time and gives the possibility to reuse the contaminated glassware. The decontamination efficiency of each cleaning agent is described in detail and the interpretation of the decontamination process of glass surfaces is discussed.

1. Einleitung

Die Handhabung radioaktiver Elemente, sei es im Isotopenlaboratorium oder in der nuclearmedizinischen Applikation, hat immer eine mehr oder weniger starke Kontamination von Arbeitsgeräten zur Folge. Das Reinigen bzw. die Dekontamination dieser Arbeitsgeräte ist aus mehreren Gründen stets erforderlich. Das Haften radioaktiver Substanzen an den verwendeten Arbeitsgeräten kann zu einer Verunreinigung dieser Geräte führen und sie für nachfolgende Versuche unbrauchbar machen. Die große Empfindlichkeit der physikalischen Messgeräte lässt Restaktivitäten in der Größenordnung von 10^{-9} Ci im allgemeinen nicht mehr zu. Hinzu kommen radiotoxikologische Gesichtspunkte, die eine Verwendung kontaminierter Geräte verbieten - soweit sie nicht unter die allgemeine Freigrenze nach der 1. Strahlenschutzverordnung fallen. Aus wirtschaftlichen Gesichtspunkten ist ein fortlaufender Neueinsatz von Geräten unvertretbar und zieht ausserdem eine unerwünschte Vergrößerung der festen radioaktiven Abfallmenge nach sich. Für die Weiterbenutzung radioaktiv verseuchter Laborgeräte gelten im allgemeinen folgende Grundregeln: Kennzeichnung der oberflächlich gereinigten Geräte mit dem Namen des verwendeten Nuklids und Weiterbenutzung nur für dieses Nuklid; Dekontamination bis zur Grenze der Messgenauigkeit oder - bei kurzlebigen Nukliden - Lagern der Geräte und Abklingenlassen der Aktivität.

Bei der Dekontamination von Arbeitsgeräten unterscheidet man im allgemeinen in eine physikalische und in eine chemische Behandlungsmethode. Die physikalische Methode (z.B. mechanisches Behandeln wie Bürsten, Ultraschallreinigung, Sandstrahlen, Dampfstrahlen) wirkt auf Verkrustungen und unlösliche Ablagerungen. Mit Säuren, Basen, Komplexbildnern und Entfettungsmitteln wirkt man chemisch auf lösliche Ablagerungen ein. Die Aufkonzentrierung der Aktivität in den chemischen Dekontaminationsmitteln ist meist auf einfachste Weise durch Fällungsreaktionen oder Verdampfung zu erreichen. So hat sich die Dekontamination in der flüssigen Phase als das wichtigste Dekontaminationsverfahren durchgesetzt.

2. Problemstellung

In Laboratorien, in denen mit radioaktiv markierten Lösungen gearbeitet wird, haben Glasapparaturen noch immer dominierende Bedeutung. Hier stellt die Adsorption von Radionukliden an Glasoberflächen eine sehr lästige Begleiterscheinung für den präparativ oder analytisch arbeitenden Radiochemiker oder den Radioisotopen anwendenden Mediziner dar. Bei der Verwendung von Kunststoffen, in Form von Einmalpipetten, Einmalinjektionsspritzen und einfachstem Zubehör ist eine Volumenverminderung der kontaminierten Geräte leicht durch Verbrennung zu erreichen. Glasgeräte müssen - mit wenigen Ausnahmen - dekontaminiert werden. Als allgemeiner Richtsatz kann angesehen werden, eine Dekontamination ist dann vom wirtschaftlichen Standpunkt aus vertretbar, wenn ihre Kosten, unter Berücksichtigung aller Folgeschritte, wie Eindampfen der Dekontaminationslösung und deren Lagerung, erheblich unter den Neuanschaffungskosten - zuzüglich der Verdichtung und Einlagerung des kontaminierten Materials - liegen. Wir haben deshalb als Trägermaterial für die Kontaminierung auf den Glasnormschliff NS 14,5 als typischen Bestandteil einer Glasapparatur zurückgegriffen und als Dekontaminationsmethode das statische und dynamische Einwirken von labor- und handelsüblichen Reinigungsmitteln auf diese kontaminierten Schriffe untersucht. Das Trägermaterial hatte den Vorteil gegenüber bereits früher für ähnliche Versuche verwendeten Objektträgern, aufgrund seiner angerauten Oberfläche große Mengen Aktivität aufzunehmen. Es existiert zwar keine Normung wie die Dekontaminationswirkung der von uns getesteten Mittel zu bestimmen ist, doch glauben wir, durch die von uns angewendete Methode eine Aussage über die Rangfolge der Wirksamkeit der einzelnen Mittel geben zu können.

3. Experimentelles

3. 1. Auswahl der Nuklide

Die Nuklide, mit denen wir die Normschliffe radioaktiv markierten, wurden nach folgenden Gesichtspunkten ausgesucht: Cäsium-137 wurde als Leit isotop für einwertige Kationen ausgewählt. Als viel verwendetes Isotop in radiochemischen Laboratorien und als Spaltprodukt besitzt es eine weite Verbreitung und seine chemische Verwandtschaft mit dem Natrium im Glas ließ eine besonders gute Haftung an der Glasoberfläche erwarten. Das Cäsium-137 wurde in Form von 10^{-4} m CsCl-Lösung mit einer spezifischen Aktivität von $1 \mu\text{Ci/ml}$ aufgebracht.

Barium-133 wurde als Leit isotop für zweiwertige Kationen ausgewählt. Neben seinem gegen das Cäsium unterschiedlichen Komplexierungs- und Adsorptionsverhalten spielte bei seiner Auswahl die chemische Verwandtschaft zum Radium und zum Spaltprodukt Sr-90 eine Rolle. Es stand in einer 10^{-4} m BaCl_2 -Lösung mit einer spezifischen Aktivität von $0,5 \mu\text{Ci/ml}$ zur Verfügung.

Jod-131 wurde als Leit isotop für einwertige Anionen ausgewählt. Neben seiner Bedeutung als Spaltprodukt wurde bei der Auswahl besonders seine Verwendung in der medizinischen Applikation berücksichtigt. J-131 wurde aus einer trägerfreien Lösung mit einer spezifischen Aktivität von $4 \mu\text{Ci/ml}$ aufgebracht. Alle verwendeten Radionuklide wurden im Vielkanalanalysator auf ihre radiochemische Reinheit geprüft.

3.2. Markierung der Schliffe

Die Versuche wurden mit Normschliffen NS 14,5 Duran 50 der Firma Schott + Gen., Mainz, - alle aus einer einheitlichen Lieferung - durchgeführt. Die durchschnittliche Schlifffläche betrug 10 cm^2 . Für jeden Versuch wurde ein neuer Schliff verwendet. Die Schliffe wurden mehrere Stunden in Aceton belassen, mit destilliertem Wasser abgespült und mit dem Föhn getrocknet. Nach Verschließen der unteren Schlifföffnungen

mit Gummistopfen wurden die Schliffe bis 1 mm oberhalb der Schliffgrenze in die markierten Lösungen eingehängt. Die Gummistopfen verhinderten eine Markierung der Schliffinnenwand, die bei der nachfolgenden Dekontamination vom Spülmittel unterschiedlich hätte gespült werden können. In einer Serie von Vorversuchen wurde die Kontaminationszeit bestimmt, die praktisch zur Sättigung der Schliffoberfläche mit Aktivität notwendig war. Nach der so festgelegten Zeit wurden die Schliffe aus den Lösungen herausgehoben, abtropfen gelassen und mit dem Föhn getrocknet.

3.3. Messtechnik

Die Schliffe wurden nach dem Trocknen und Entfernen des Gummistopfens in ein dünnwandiges Polystyrol-Reagenzglas gesteckt und dann in einem $1\frac{1}{2}' \times 1\frac{1}{2}'$ Bohrlochkristall ausgemessen. Nach dem Ausmessen wurde mit dem verwendeten Reagenzglas die Nullrate bestimmt. Jedes Reagenzglas wurde nur einmal verwendet. Die Messzeit richtete sich nach der Impulsrate, um den statistischen Fehler möglichst klein zu halten. Die Ausgangszählrate der kontaminierten Schliffe [A] betrug in der Regel mehrere hunderttausend Impulse/min und sank im Laufe der Dekontamination bis zu 100 Imp./min über dem Untergrund.

3.4. Durchführung der Versuche

Die Versuchsreihen wurden nach zwei Gesichtspunkten ausgeführt: einerseits ein statisches Belassen der kontaminierten Schliffe in der unbewegten Dekontaminationsflüssigkeit und andererseits ein dynamisches Bewegen der Flüssigkeit. Ferner wurde die Spülmitteltemperatur in der Mehrzahl der Versuche von 20° auf 50° und 70° C erhöht und ausserdem im Falle des EDISONITE eine Konzentrationsabhängigkeit der Dekontaminationswirkung bestimmt. Allen Versuchen gemeinsam war folgende experimentelle Ausführung: jeweils drei der wie oben beschriebenen kontaminierten Schliffe wurden in drei, auf die jeweilige Versuchstemperatur thermostatisierte Gefässe mit je 40 ml der zu untersuchenden Mittel eingehängt. In festgelegten Zeitabständen (zunächst Minuten - später Stunden) wurden die drei Schliffe gleichzeitig aus der Lösung

gehoben, abtropfen gelassen, trocken geföhnt und wie oben ausgemessen. Nach Bestimmen der jeweilig auf dem Schliff verbliebenen Aktivität [A] wurden die Schliffe wieder in die Lösung eingehängt und einer erneuten Einwirkung der Mittel ausgesetzt. Auf diese Weise wurde jeder Messpunkt aus drei Parallelwerten ermittelt. Die Zeitintervalle wurden nach den Gesichtspunkten ausgewählt, ob sich a) das eingesetzte Mittel innerhalb kürzester Zeit als Dekontaminationsmittel bewährt, oder b) erst ein stunden- oder gar tagelanges Belassen der kontaminierten Schliffe in der jeweiligen Lösung eine vernünftige Dekontaminationswirkung zeigt.

3.5. Die untersuchten Mittel

Die im folgenden mit den Ziffern 1 - 10 bezeichneten Mittel bedeuten im einzelnen:

1	1%ige EDISONITE-Lösung
1a	3,2%ige EDISONITE-Lösung
2,3,4,5,9	handelsübliche Reinigungsmittel in den jeweils vom Hersteller empfohlenen Konzentrationen
6	1 n HCl
7	1 n NaOH
8	ca. 1 n Chromschwefelsäure
10	destilliertes Wasser

Die pH-Werte der Lösungen wurden wie folgt ermittelt:

1 : 9,9	4 : 12,2	7 : 14
2 : 11,4	5 : 10,2	8 : 0,3
3 : 12,8	6 : 0	9 : 6,5

Eine chemische Analyse wurde nicht durchgeführt; über die Zusammensetzung der Reinigungsmittel werden von den Herstellern keine Angaben gemacht.

4. Versuchsergebnisse

4.1. Die statischen Versuche

Die Ergebnisse der statischen Versuche sind in den Abbildungen 1 - 12 dargestellt. In den Kurven ist die experimentell ermittelte Abnahme der Schliffaktivität aufgetragen gegen die "Einwirkzeit" (A/A_0 [%] = Verhältnis der Aktivität zur Zeit t (in Minuten oder Stunden) zur Anfangsaktivität A_0 in %). In jeder Versuchsreihe sind zwei verschiedene Zeitmaßstäbe gewählt worden: die Kurzzeiteinwirkung bis 80 min und die Langzeiteinwirkung bis 16 Stunden.

Beim C ä s i u m (Abb. 1 und 2) zeigt die beste Dekontaminationswirkung bei 20 °C die Chromschwefelsäure (8) und die 1 n Salzsäure (6), gefolgt vom Reinigungsmittel (5); sie bringen nach längerer Einwirkzeit einen Abbau der Aktivität auf ca. 4 % der Anfangsaktivität. Die übrigen Reinigungsmittel (1), (2), (7), (9) erreichen nach langer Einwirkzeit einen Endwert von ca. 10 %. Erwartungsgemäss zeigt destilliertes Wasser (10) die schlechtesten Endwerte.

Die Erhöhung der Temperatur auf 50 °C (Abb. 3 und 4) bringt eine wesentliche Verbesserung des Aktivitätsabbaues. Hier zeigt das EDISONITE (1) schon nach kurzer Zeit Endwerte zwischen 1 % und 2 % zusammen mit den Reinigungsmitteln (2) und (3), die sich auch bei längerem Einwirken nur noch unwesentlich verbessern. Eine weitere Temperaturerhöhung auf 70 °C (Abb. 5 und 6) bringt in den Kurzzeitversuchen beim EDISONITE (1) wie beim Reinigungsmittel (5) keine Verbesserung der Dekontaminationswirkung gegenüber den 50 °C-Werten, während die Reinigungsmittel (2) und (3) Endwerte von ca. 0,6% erreichen. Bei der Langzeiteinwirkung verbesserte Reinigungsmittel (5) seine Wirksamkeit nicht mehr im Gegensatz zu EDISONITE (1), das die Endwerte von (2) und (3) mit ca. 0,4 % der Anfangsaktivität erreicht.

Beim B a r i u m (Abb. 7 und 8) zeigt die 1 n Salzsäure im Kurzzeitversuch die beste Dekontamination. Hier wurde nach 80 Minuten der Endwert von ca. 4 % erreicht. Verständlicherweise zeigt die Chromschwefelsäure (8) neben dem destillierten Wasser (10) keinerlei Dekontaminationswirkung - im ersten

Fall kommt es zu einer Ausfällung von Bariumchromat an der Schliffoberfläche. Die übrigen Lösungen (1), (2), (7), (9) erreichen Endwerte zwischen 10 und 30 %. Bei der Langzeit-einwirkung bleibt die Salzsäure praktisch auf ihrem Endwert von ca. 4 % stehen, während die 1 n Natronlauge (7) und das Spülmittel (2) diesen Wert nach ca. 16 Stunden erreichen, vermutlich hervorgerufen durch chemischen Angriff der beiden stark alkalischen Lösungen an der Glasoberfläche. Das EDISONITE verbessert seine Dekontaminationswirkung bei der Langzeiteinwirkung um den Faktor 2. Eine Variation der Temperatur wurde im Fall des Bariums nicht durchgeführt.

Bei den Kurzzeitversuchen mit J o d (Abb. 9 und 10) ergibt sich ein breites Spektrum von Endwerten zwischen 2 und 20 % bei 20 °C. Die 1 n Salzsäure (6) zeigt zusammen mit den Spülmitteln (2) und (9) nur eine mässige Dekontaminationswirkung. Das 1%ige EDISONITE, die Natronlauge (7) und die Chromschwefelsäure (8) erreichen Werte zwischen 7 und 10 %, während die beiden Lösungen (5) und (3) zu einem relativ günstigen Aktivitätsabbau auf 2 % und 4 % führen.

In der Langzeitdarstellung bleiben die Werte nahezu unverändert bis auf die Natronlauge (7), die einen Endwert von ca. 4 % zeigt, und einer weiteren Verbesserung der Wirkung des Mittels (3) auf 0,8 % der Anfangsaktivität.

Bei einer Temperaturerhöhung der Lösungen auf 70 °C wird die Wirkung der 1%igen EDISONITE-Lösung wesentlich verbessert. Sie erreicht zusammen mit Lösung (5) nach kurzer Zeit Werte unter 1 % und die 3,2%ige EDISONITE-Lösung (1a) zeigt zusammen mit den Reinigungsmitteln (2) und (3) eine gute Dekontaminationswirkung (ca. 0,4%). Nach Langzeiteinwirkung verbessert sich der Endwert der 1%igen EDISONITE-Lösung auf 0,5 % zusammen mit Lösung (5), und die 3,2%ige EDISONITE-Lösung (1a) verbessert ihre Wirksamkeit zu dem günstigen Wert von 0,25% der Anfangsaktivität zusammen mit den Mitteln (2) und (3).

4.2. Die dynamischen Versuche (Abb. 13 - 15)

Im Gegensatz zu den Vorversuchen, in denen die Lösungen durch Rühren den Schliff umspülten, zeigte sich durch Einführen der Schütteltechnik eine wesentliche Verminderung der Abweichungen in den jeweiligen Parallelversuchen. Bei den vorliegenden Ergebnissen wurde in thermostatisierten Doppelmantelgefäßen auf einer Schüttelmaschine mit definierter Frequenz gearbeitet. Da die statischen Untersuchungen beim Jod schon befriedigende Dekontaminationsergebnisse gebracht hatten - die durch die Schütteltechnik sicher noch verbessert würden - beschränkten sich die dynamischen Versuche auf die Dekontamination von Cäsium, das in den statischen Versuchen unbefriedigende Dekontaminierbarkeit gezeigt hatte.

Bei 20 °C erreichten alle Lösungen (1), (2), (3), (4), (5) und die 1 n Salzsäure (6) nach kurzer Zeit eine 97 - 99 %ige Dekontamination. Bei einer Temperaturerhöhung auf 50 °C zeigt sich nach 80-minütiger Einwirkzeit eine leichte Überlegenheit der 1 % EDISONITE-Lösung gegenüber der Lösung (3) bei erreichten Endwerten von 0,2 - 0,3 %. Bei 70 °C macht sich die relativ hohe Alkalität der Mittel (2) und (3) durch sehr gute Endwerte von 0,1 % und 0,06% der Anfangsaktivität wieder bemerkbar. Die 1%ige EDISONITE-Lösung (1) und die Lösung (4) erreichten Endwerte von 0,2 - 0,3 %, während die Lösung (5) keine merkliche Verbesserung seiner Wirkung durch Temperaturerhöhung zeigte.

Langzeitversuche wurden nicht durchgeführt; der Kurvenverlauf ließ vermuten, daß die Schliffe nach ca. 2 Stunden sich mit der Lösung im Gleichgewicht befanden. Dies wurde bestätigt von einigen Stichproben, die nach ca. 20-stündiger Schütteldauer keine Abweichungen - innerhalb der Fehlergrenze - von den Kurzzeitergebnissen mehr zeigten.

4.3. Temperaturabhängigkeit

Die Parameterverschiebung (A/A_0 [%] gegen die Temperatur) zeigt nach einstündiger Einwirkung das Dekontaminationsverhalten der eingesetzten Reinigungsmittel mit steigender Temperatur (Abb. 16 - 18).

Bei der statischen Dekontamination des Cäsiums macht der Kurvenverlauf deutlich, daß eine Temperaturerhöhung über 50 °C bei der 1%igen EDISONITE-Lösung (1) keine Verbesserung der Dekontaminationswirkung mehr zu erreichen ist.

(5) besitzt nur eine geringe Temperaturabhängigkeit, während die Wirksamkeit von Spülmittel (2) und (3) stark temperaturabhängig ist (hoher pH-Wert). Das gleiche Bild ergibt sich beim analogen dynamischen Versuche. Auch hier bringt die Erhöhung der Spültemperatur von 50 °C auf 70 °C keine wesentliche Verbesserung der Dekontaminationswirkung des EDISONITE (1). Reinigungsmittel (5) hat auch hier nur eine geringe, Reinigungsmittel (2) und (3) eine starke Temperaturabhängigkeit. Bei den statischen Jodversuchen reagieren die Lösungen (1), (2) und (5) in gleicher Weise auf eine Temperaturerhöhung, während auch hier Lösung (3) stärkere Temperaturabhängigkeit zeigt (hohe Alkalität).

4.4. Konzentrationsabhängigkeit

Die Dekontaminationswirksamkeit des EDISONITE in Abhängigkeit von der Konzentration wurde in dynamischen Versuchen bei 20 °C am Cäsium untersucht (Abb. 19). Eine Variation der Konzentration über 2 Größenordnungen (0,1% - 10%) brachte nur eine Verbesserung der Dekontaminationsrate von ca. 96% auf ca. 98%. Eine Erhöhung der Spülmittelkonzentration erscheint im Falle des Cäsiums nicht angebracht. Beim Jod liegen zwei Ergebnisse vor, für 70 °C. Die 3,2% EDISONITE-Lösung (1a) zeigt gegenüber der 1%igen Lösung (1) eine Verbesserung der 60-min-Werte von 0,8 % auf 0,25 %. Im Falle des Jod wäre eine evtl. Konzentrationserhöhung zur Verbesserung der Dekontaminationswirkung angebracht.

4.5. Analyse der Dekontaminationskurven

Die experimentell ermittelten Kurven (A/A_0 [%] gegen die Einwirkzeit aufgetragen Abb. 1 - 15) stellen im allgemeinen eine Überlagerung mehrerer Teilvorgänge dar. Analog einer Halbwertszeitanalyse beim radioaktiven Zerfall eines Nuklide-

mischer konnten auch hier an mehreren Beispielen im Fall der vorliegenden Dekontaminationskurven 3 Teilvorgänge identifiziert werden (Abb. 20). Der Teilvorgang II wurde durch Subtraktion des auf die Zeit $t = 0$ extrapolierten Teilvorganges III von der experimentell gefundenen Kurve (A) berechnet. Ebenso erfolgt die Bestimmung des Teilvorganges I aus der Kurve (B). So stellt der Wert A/A_0 [%] die Dekontaminationsrate des Gesamtvorganges dar und $t_{1/2}$ (III) ist die "Halbwertszeit" des 3., langsamen Teilvorganges. Auf diese Weise kann man eine Aussage über die Beteiligung der Einzelvorgänge an der Gesamtabnahme der Schliffaktivität machen. Die Halbwertszeit des ersten schnellen Schrittes der Dekontamination lag bei allen untersuchten Kurven zwischen 12 und 18 sec und war praktisch unabhängig von Nuklid und Lösungsmittel. Hier scheint es sich um das Abwaschen einer reinen "Verkrustung" der vorher aufgetrockneten Kontaminationslösung zu handeln. Die zweite Halbwertszeit lag je nach Reinigungsmittel, Temperatur und Nuklid zwischen 1,7 und 4,6 min und könnte einem heterogenen Ionenaustausch zwischen der Glasoberfläche und der Lösung zugeschrieben werden. Der dritte langsame Dekontaminationsschritt lag im Bereich von 1 bis 3 Stunden und ist prozentual nur gering am Gesamtvorgang beteiligt. Er könnte eine Folge der Reaktion zwischen den alkalischen Spülmitteln und der Schliffoberfläche sein - da er beim Wasser praktisch nicht in Erscheinung tritt -, oder auf dem diffusionsbestimmten Isotopenaustausch im praktischen Gleichgewicht zwischen Lösung und Glas beruhen. Erst das Verhältnis der beiden ersten schnellen Teilschritte bedingt das starke Abnehmen der Schliffaktivität und damit die Dekontaminationswirkung - während der 3., langsame Teilschritt für den Gesamtverlauf der Dekontamination nur eine untergeordnete Rolle spielt.

5. Zusammenfassung der Ergebnisse

Die vergleichende Untersuchung einiger handels- und laborüblicher Reinigungsmittel mit dem EDISONITE wurde in zwei Versuchsserien aufgeteilt. Ein statisches Einwirken, vergleichbar mit dem Einlegen kontaminierter Glasgeräte in eine Dekontaminationslösung, zeigte im Fall des Cäsiums bei erhöhter Temperatur (50 - 70 °C) bei der 1%igen EDISONITE-Lösung und den Lösungen (2) und (3) annehmbare Dekontaminationswerte von 99,6% - jedoch erst nach 12 Stunden Einwirkzeit. Beim Barium erreichten alle eingesetzten Mittel nur eine sehr unbefriedigende Dekontamination. Die Mittel (2) und (9) erreichten zusammen mit der 1 n NaOH (7) erst nach Stunden die Dekontaminationsrate der Salzsäure von 96%, die diesen Wert schon im Verlauf von einer Stunde erreichte. Das Jod wurde von den eingesetzten Lösungen bei Zimmertemperatur sehr unterschiedlich dekontaminiert; dabei lagen die Dekontaminationsraten nur im Bereich von 90 % bei der Kurzeiteinwirkung; ein stundenlanges Belassen der Schliffe in den Lösungen brachte nur für das stark alkalische Mittel (3) eine Verbesserung der Dekontaminationswirkung. Eine Temperaturerhöhung zeigte bei Joddekontamination gute Ergebnisse (bis zu 99,8%) für das EDISONITE (1a) und den Spülmitteln (2) und (3).

Eine statische Dekontamination von Cäsium, Barium und Jod führte von allen untersuchten Reinigungsmittel innerhalb kurzer Einwirkzeit und bei Zimmertemperatur nur zu relativ unbefriedigenden Ergebnissen. Erst bei einer Erhöhung der Spülbadtemperatur und bei Einwirkzeiten von mehreren Stunden zeigten das EDISONITE und die Reinigungsmittel (2) und (3) gute Dekontaminationswirkung. Allgemein muss zu den statischen Ergebnissen gesagt werden, daß eine Dekontamination um nur eine Größenordnung, d.h. auf ca. 10 % der Anfangsaktivität, nicht ausreicht, um eine Wiederbenutzung der kontaminierten Glasgeräte zu ermöglichen.

Die dynamischen Versuche, die einem "Spülen von Hand" oder einem Maschinenspülen vergleichbar sind, wurden mit Cäsium

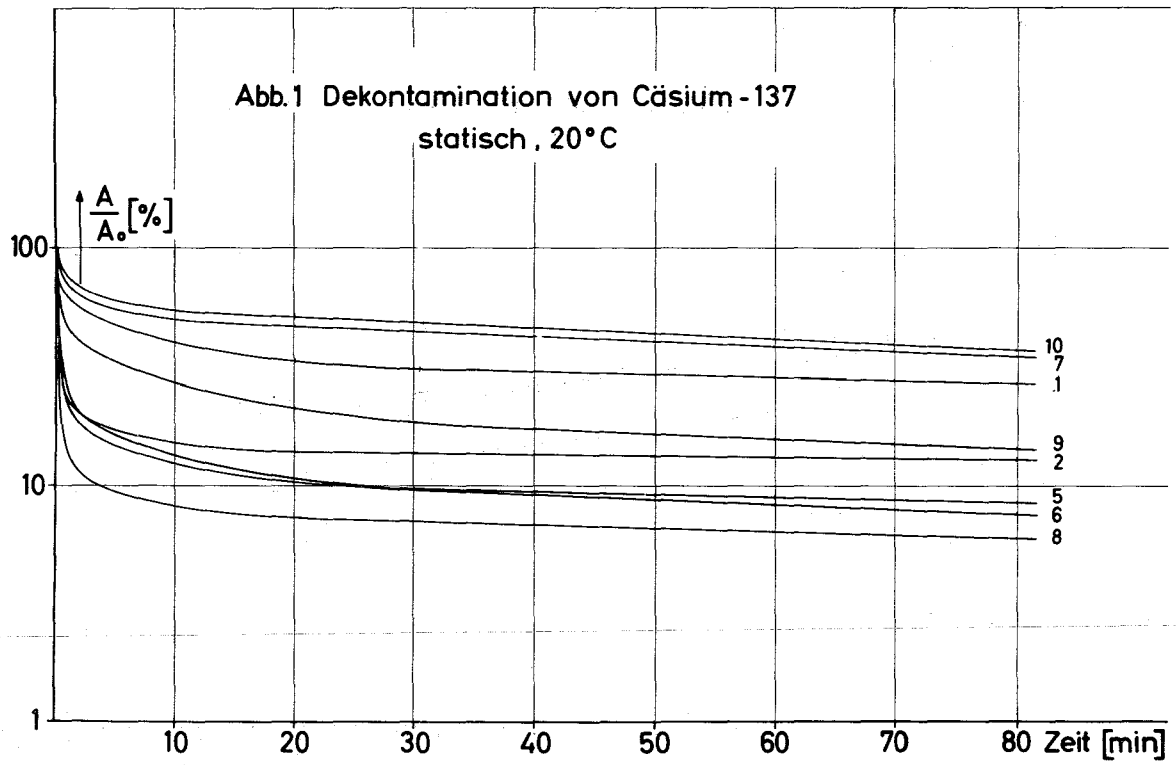
durchgeführt und brachten eine wesentliche Verbesserung der Dekontaminationsrate gegenüber den statischen Ergebnissen. Bei Zimmertemperatur wird von allen eingesetzten Mitteln in kurzer Zeit eine Dekontamination von 97 - 99 % erreicht. Eine Temperaturerhöhung auf 50 °C zeigte wesentlich verbesserte Endwerte beim EDISONITE (1a). Die weitere Erhöhung auf 70 °C brachte bei der EDISONITE-Lösung (1a) und den Lösungen (2) und (3) die Werte von 1% Restaktivität nach ca. 1 Stunde. Nach unserer Ansicht beinhaltet dieser Wert eine Dekontaminationsrate, die ein gutes Dekontaminationsmittel unter den hier angegebenen Bedingungen erreichen sollte.

Das EDISONITE - schon in 1%iger Lösung - erreicht ein Dekontaminationsverhalten, das bei radioaktivem Cäsium, Barium und Jod zu guten Endresultaten führt. Eine leichte Überlegenheit gegenüber den anderen Reinigungsmitteln zeigt das EDISONITE bei der dynamischen Cäsiumdekontamination bei einer Spülbad-Temperatur von 50 °C. Bei der statischen Joddekontamination liegt es bei erhöhter Temperatur innerhalb der Spitzengruppe aller hier untersuchten Mittel. Eine Konzentrationserhöhung über 1 % wäre evtl. bei der Joddekontamination zu empfehlen - während beim Cäsium eine Konzentrationsabhängigkeit der Dekontaminationsrate nicht feststellbar war.

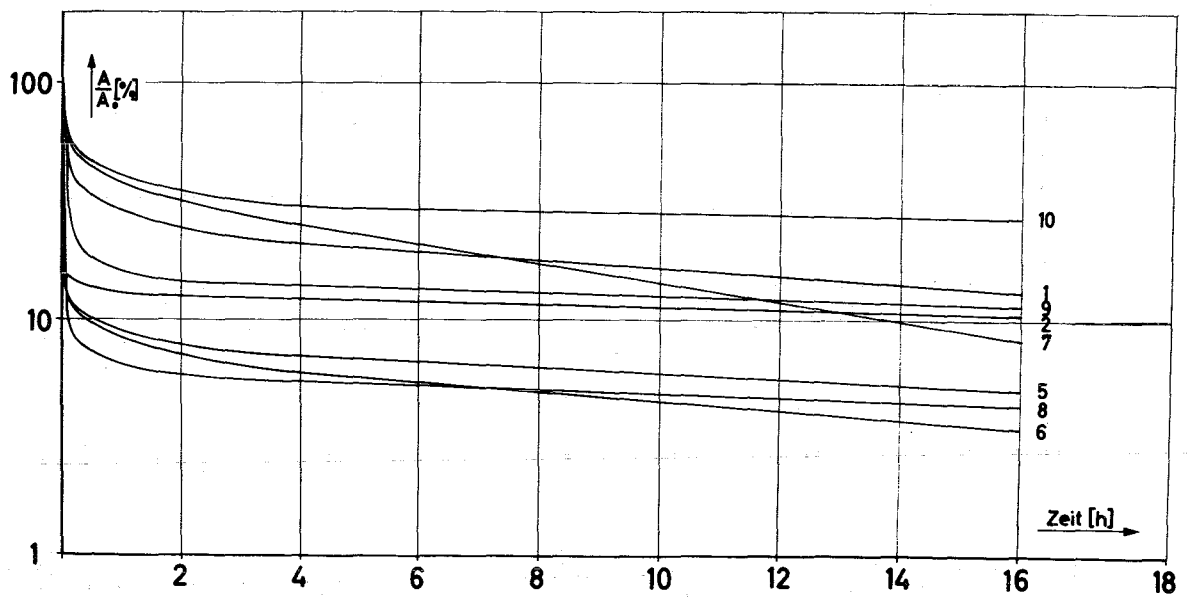
Fräulein Sylvia Kletzel habe ich für die sorgfältige Versuchsdurchführung sehr zu danken.

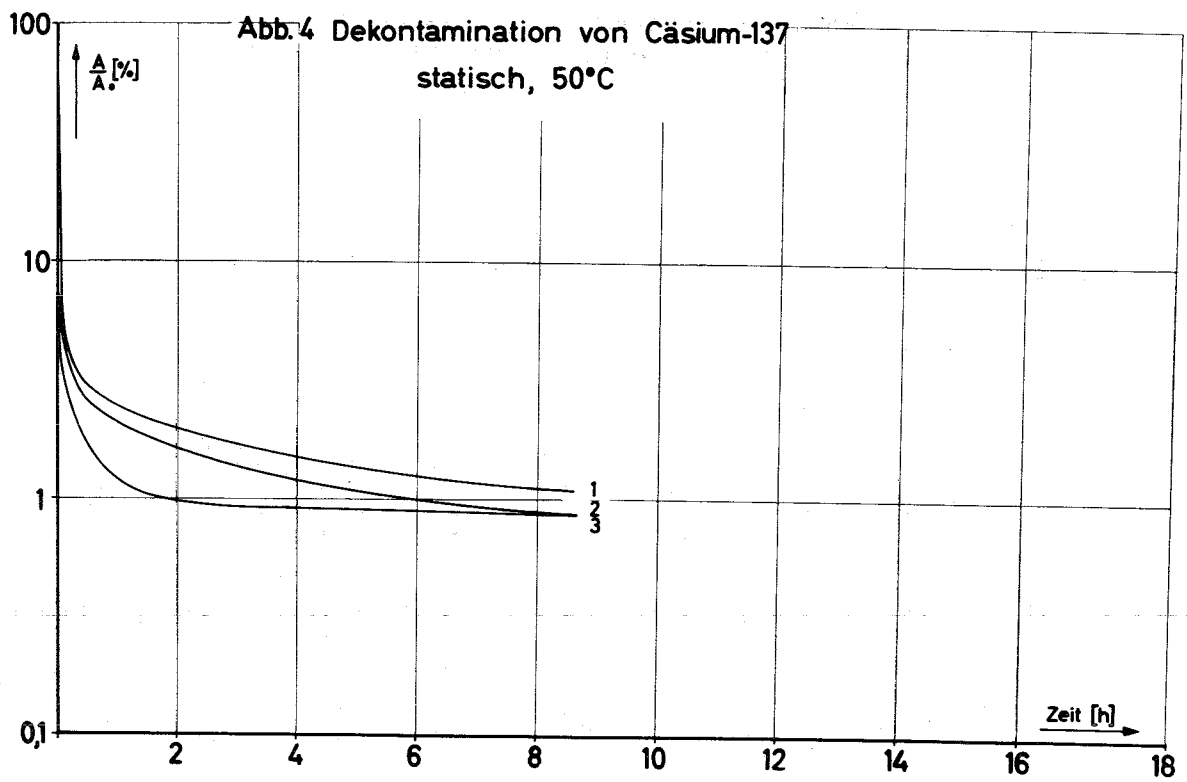
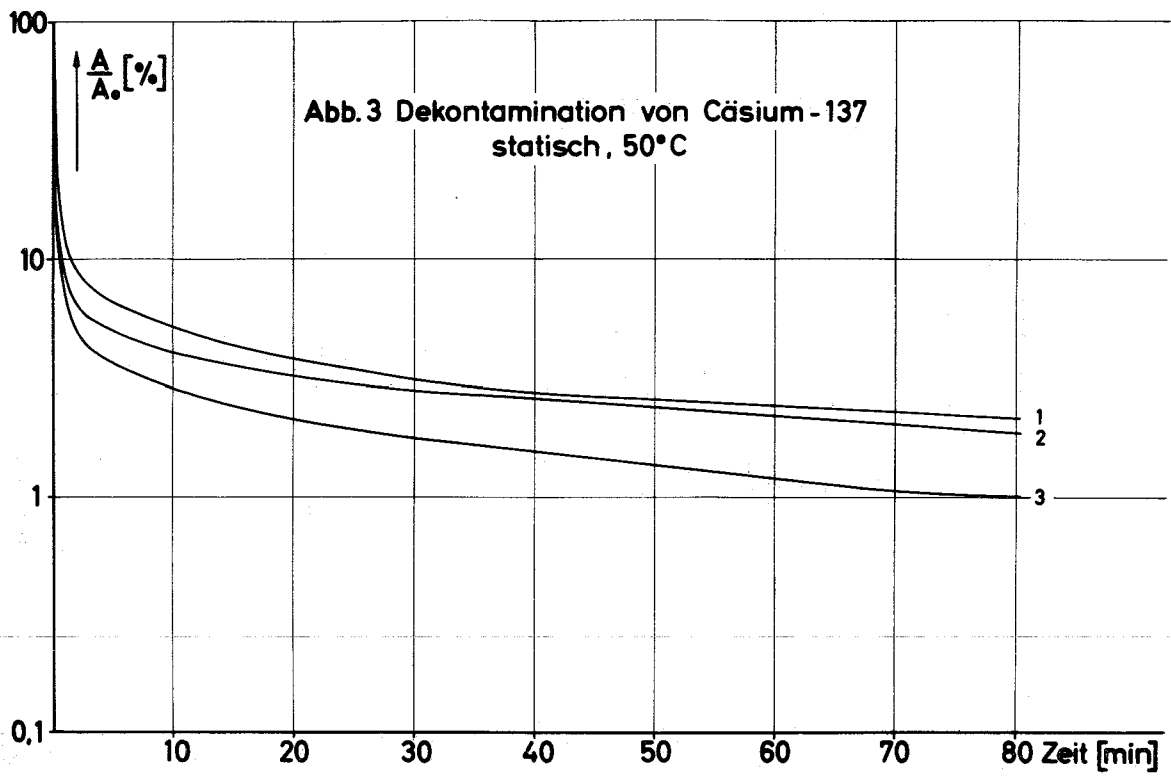
6. Literaturverzeichnis

- H. Stephan: Dekontaminationsverfahren
Kerntechnik 3 (1961) 3, S. 102
- H.W. Jensen: Kontamination und Dekontamination,
Kerntechnik 4 (1962) 2, S. 369
- B. Marchant: Über die Kontaminierung von Geräteglas,
Kerntechnik 4 (1962) 2, S. 395
- F. Reiff, K. Schuster, H. Heinen: Die Dekontaminierung von
Gewebe mit Polyphosphatlösung,
Atompraxis 9 (1963) 2, S. 1
- W. Lehfeld: Dekontamination mittels Ultraschall
Kerntechnik 4 (1962) 2, S. 415
- K.H. Lieser: Über die Haftfestigkeit radioaktiver Ionen an
Glasoberflächen,
Kerntechnik 8 (1966) 2, S. 74
- R. Otto, H. Rabold: Eine Dekontaminationslösung für radionuklid-
kontaminierte Lackoberflächen
Kernenergie 11 (1968) 3, S. 74
- R. Otto: Untersuchungen über die Dekontaminationsfähigkeit
radionuklidkontaminierter Oberflächen
Isotopenpraxis 5 (1969) 1, S. 27
- H. Vogg: Kontaminations- und Dekontaminationsversuche an ge-
schliffenen und feuerpolierten Glasflächen
G-I-T, (1968) 6, S. 572
- Ph. Fournier, St. Lachovier: Die industrielle Ausführung von
Dekontaminationsanlagen
Atompraxis 15 (1969) 1, S. 48



**Abb.2 Dekontamination von Cäsium-137
statisch, 20°C**





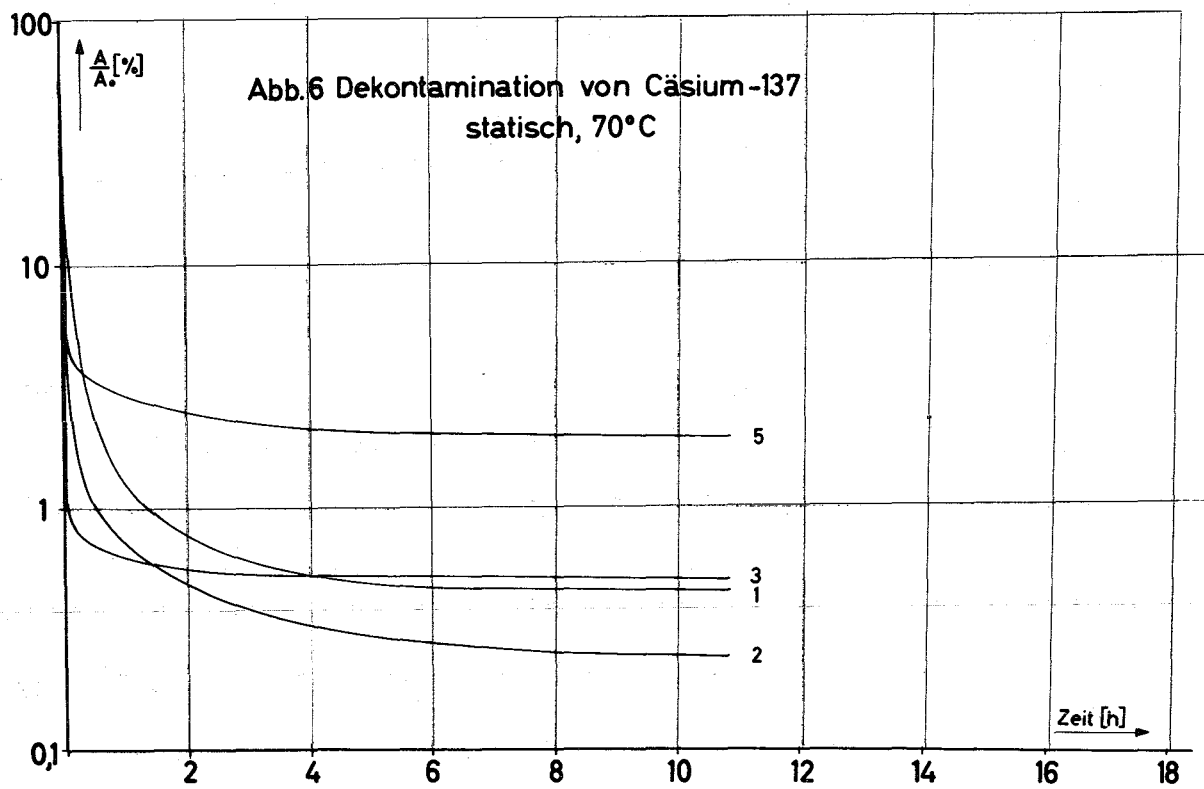
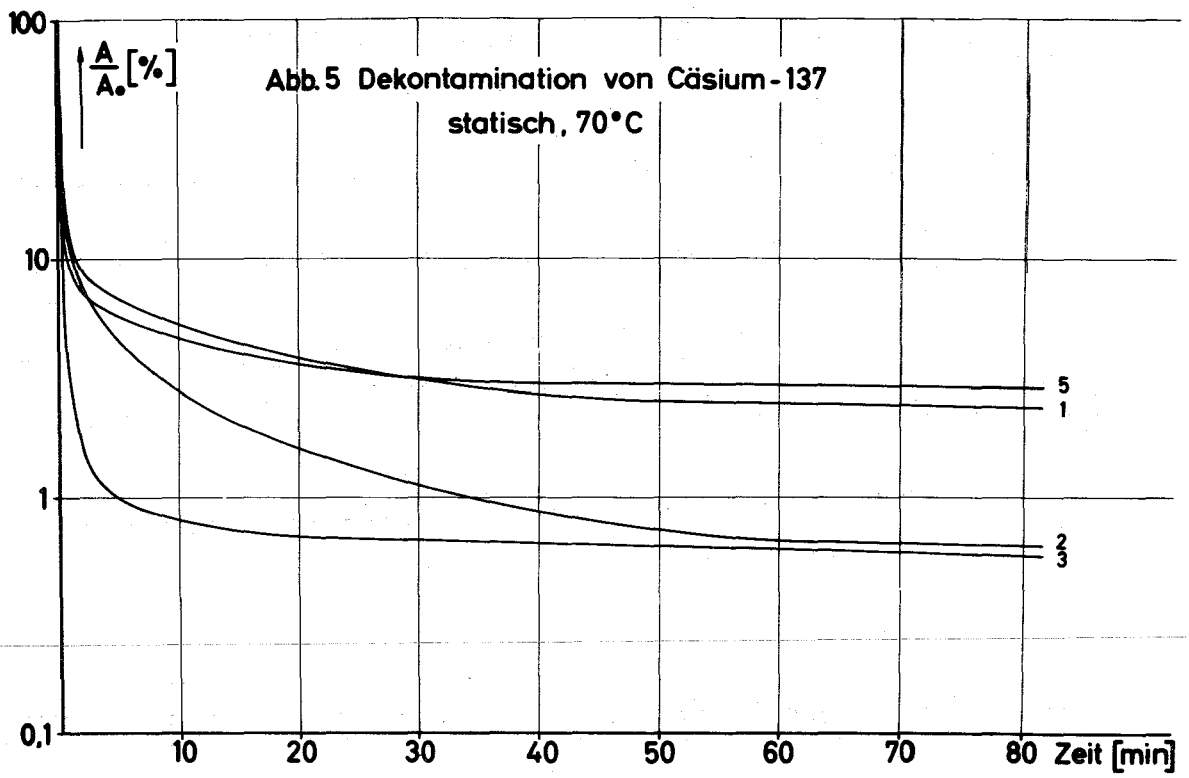


ABB. 7 DEKONTAMINATION VON BARIUM-133

STATISCH, 20°C

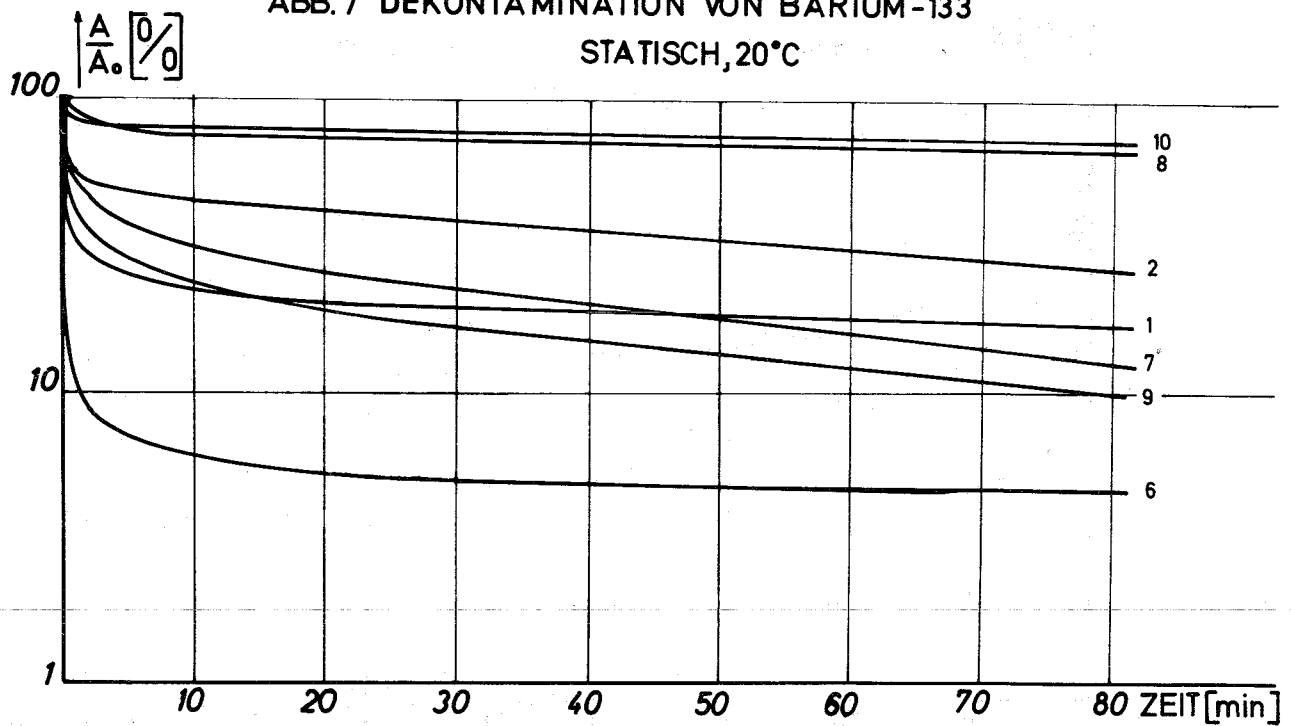


ABB. 8 DEKONTAMINATION VON BARIUM - 133

STATISCH, 20°C

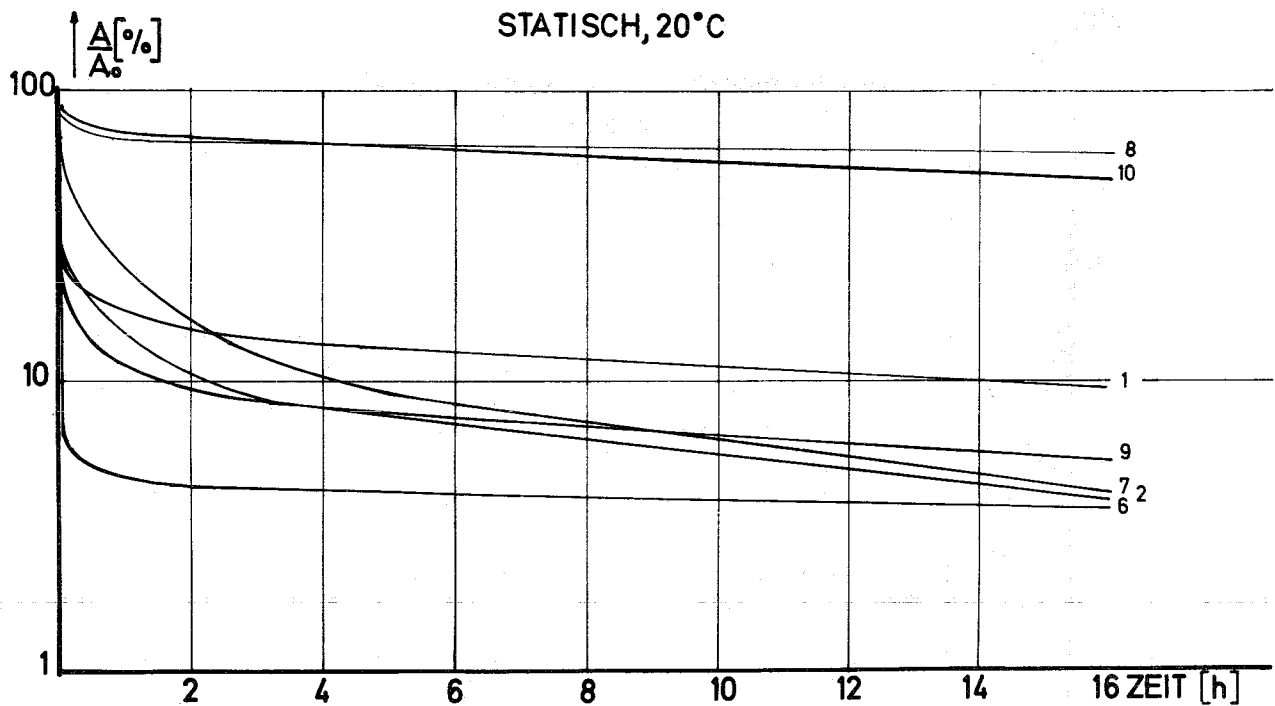


Abb.9 Dekontamination von Jod -131
statisch, 20°C

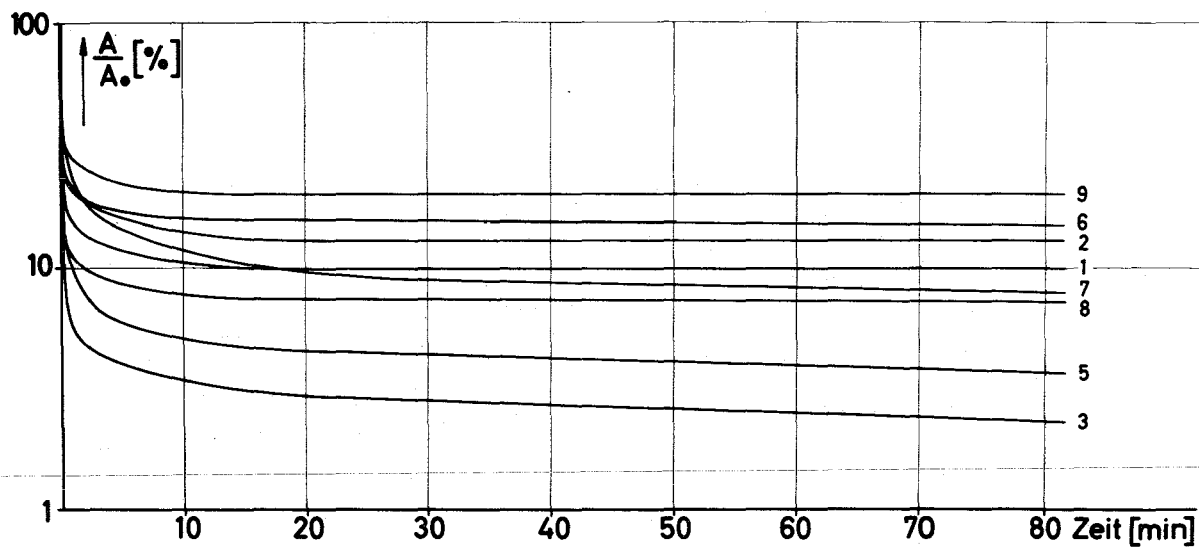


Abb.10 Dekontamination von Jod -131
statisch, 20°C

