



A NATO 2008. ÉVI NEMZETKÖZI RADIOLÓGIAI ÖSSZEMÉRÉSÉNEK (SIRA-2008) TAPASZTALATAI

Vágföldi Zoltán, Ferencz Bernadette

MH Görgei Artúr Vegyivédelmi Információs Központ, H-1101 Budapest, Zách. u. 4.

e-mail: vagfoldi@hotmail.com

Paksi Atomerőmű Zrt. Vegyészeti Ellenőrzési Osztály, H-7031 Paks, Pf. 71.

e-mail: ferenczb@npp.hu

XXXV. Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam

Hajdúszoboszló

2010. április 27-29.



Előadás vázlat

- 2008 NATO Sampling and Identification of Radiological Agents II. Laboratory Exercise bevezetés, célja, scenario
- A minta
- Elvégzett mérések (gamma és alfa spektrometria)
- A magyar mérési eredmények összefoglalása
(MH Radiológiai Laboratórium, PA Zrt., MGSZH)
- A körmérés eredményei
- Tapasztalatok összefoglalása



SIRA-2008 bevezetés alapinformációk

- NATO tagállamainak 2008. évi II. radiológiai összemérési gyakorlata (2008 NATO Sampling and Identification of Radiological Agents II. Laboratory Exercise)
- Szervező: Institute of Technology La Maranosa (ITM, Madrid, Spanyolország)
- Ideje: 2008. november - december
- Résztvevők: 13 NATO tagország 14 laboratóriuma, 1 (MH Rad. Lab.) védelmi célú laboratóriumai
- Feladat: 1 db. folyadék minta radionuklid összetételének meghatározása (24 h, 1 hónapos mérési eredmény, jelentési minta)





SIRA-2008 célkitűzései

- Összehasonlítsák a laboratóriumok felkészültségét, képességeit a NATO tagországokon belül
- Tapasztalatcsere
- Referencia laboratóriumok kijelölése „valós” helyzet esetén
- Javaslat a parancsnokok részére

A laborok analitikai munkájának elhelyezése a vezetői/parancsnoki döntésben (további vizsgálat, mentesítés stb.)

N°	Country	Laboratory
1-	Canada	Defence R&D
2-	Czech Republic	NBC Defence Institute
3-	France	SPRA
4-	Germany	Deployable NBC-AL
5-	Hungary	MH Radiológiai Lab.
6-	Italy	C. T. Log. Interforce NBC.
7-	Netherlands	OPCW Laboratory
8-	Norway	Norw. Def. Res. Estab. FFI
9-	Poland	Mil. Inst. Of Chem. & Rad.
10-	Slovakia	Ref. Chemical Laboratory
11-	Spain	ITM
12-	Sweden	FOI
13-	United Kingdom	AWE
14-	United Kingdom	DSTL



SIRA-2008 scenario

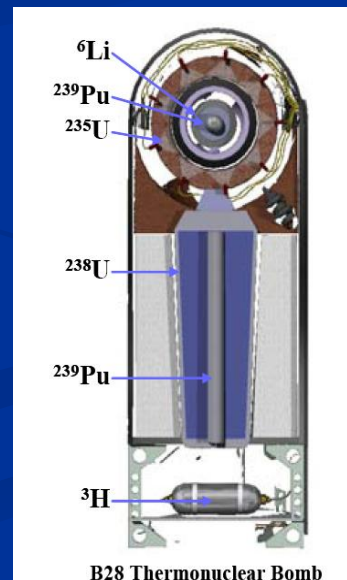
■ Megadott információ:

SIRA csoport vezetője feladatul kapta, hogy egy lezuhant (ismeretlen szállítmányú, külföldi), kigyulladt repülőgép oltóvizéből vegyen mintát. Korábbi felderítések kis mértékű gamma háttérsugárzás emelkedést jeleztek. A mintát laboratóriumba szállították.



■ Nem megadott:

Korábban megtörtént nukleáris fegyvert szállító repülő balesetet szimuláló mintát állítottak össze, oltóvízre jellemző mátrixot (oltóhab kémiai interferencia, H-3 zavarást nem adtak a mintához).



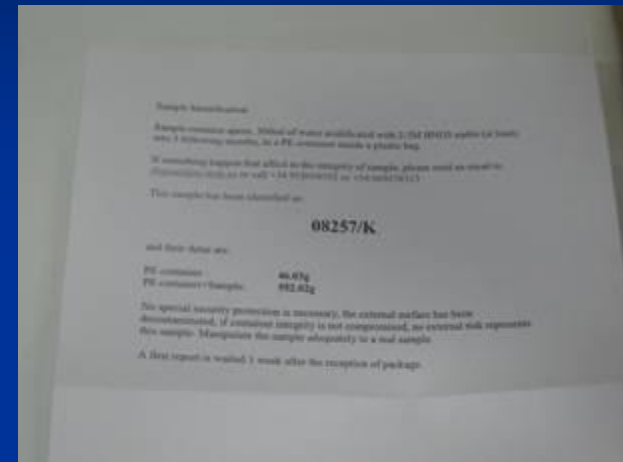


A minta

- A mintákat a szervező (ITM) készítette standardok felhasználásával (standardok, ultra-pure HNO_3 , nagytisztaságú víz)
- Az ITM egy mintát készített és osztott szét 21 egyenlő részre (14 + tartalék). A laboroknak kiküldött mintarészleteken homogenitás és stabilitás vizsgálatokat végeztek
- Csomagolást követően gyorspostával (légi úton) küldte ki a résztvevő laboratóriumoknak
- Mintakísérő lap mellékelve: Mintaszám: 08257/K,

Nettó tömege: 506 g (ebből a másodlagos csomagolásban kiömlött 18,3 g)

PE tartó edény, savas oldat





A gyakorlat lefolyása

- Ismeretlen minta radioaktív anyag tartalmának meghatározása
- 24 órás jelentés (report) kiadott minta alapján (főbb tartalmi elemek)
 - Cél az „azonnali” információ
 - Minta elővizsgálatok (nem radiológiai vizsgálatokat is kellett végezni)
 - Elvégzett radiológiai vizsgálatok ismertetése
 - Javaslatok az atom-, bio-, vegyi (ABV) csoport parancsnoknak (kárhelyszíni beavatkozóknak)
 - További tervezett vizsgálatok az 1 hónapos jelentéshez
- 1 hónapos jelentés
 - 24 órás mérések eredményének megerősítése



Elvégzett mérések

■ 24 h alatt (1 hét)

- Elővizsgálat, műa. zacskó (másodlagos csomagolás) α , β , γ felületi szennyezettség mérés (Thermo Electra) és (Berkeley SAM 940 "3x3" NaI szcintillációs detektor) – nincs detektálható sugárzás növekedés.
- Gamma spektrometriás mérőrendszerrel HpGe félvezető detektorral (GC2020, Canberra) 50-2500 keV tartományban „screen”, *mérési idő 10 000 s* (2,77 h) analizátor: inspector-2000 MCA, nincs kiértékelhető csúcs. További mérés szükséges. A minta aktivitása 100 Bq/kg alatti.

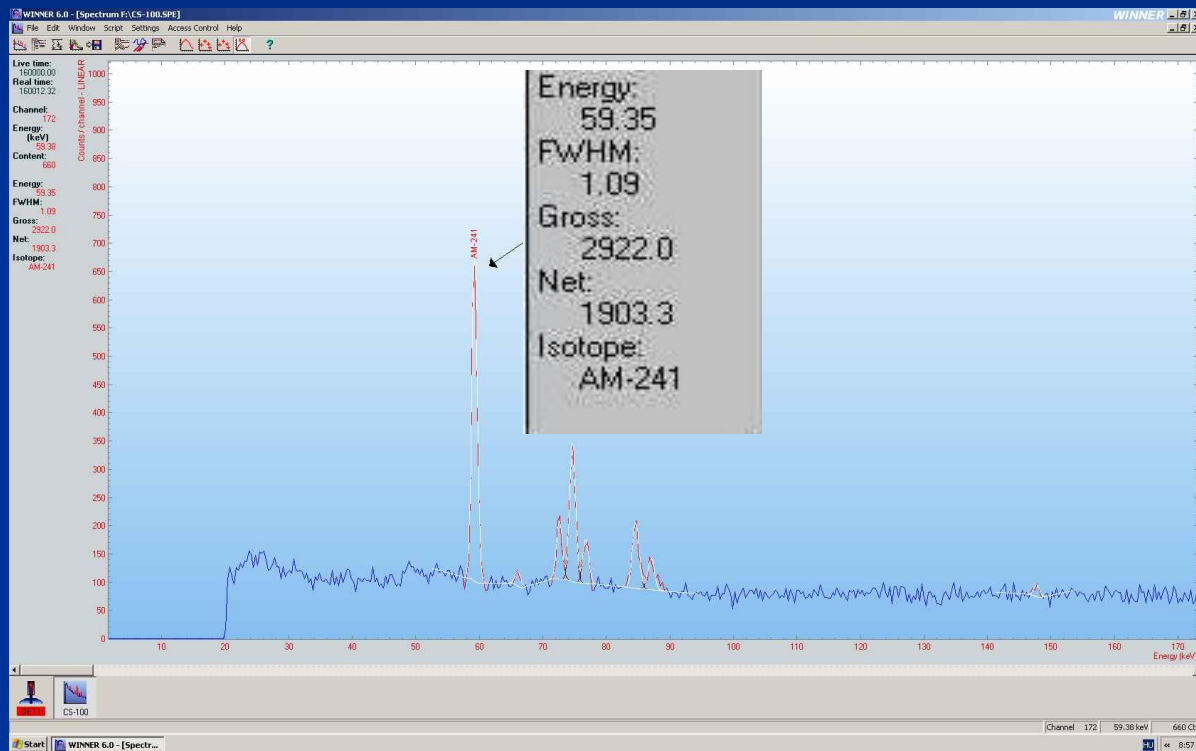
■ A második 24 h alatt (1 hónap)

- A minta Am-241 aktivitását (^{241}Am : $4 \pm 1 \text{ Bq/kg}$) gamma spektrometriás mérőrendszerrel HpGe félvezető detektorral határoztuk meg, hosszabb mérési idővel, *mérési idő 160 000 s* (44,4 h) méréstartomány 50-2500 keV, analizátor: inspector-2000 MCA,
- 100 ml mérése MGSZH Radioanalitikai Referencia Laboratóriumban megerősítő gamma és alfa spektrometriás vizsgálatokra.



Elvégzett mérések

Am-241 eredmény



Am-241 aktivitáskonc:
 $4,0 \pm 1$ Bq/kg

Winner 6.0 (FAST ComTec GmbH) konvertált gamma spektrum részlet
HpGe detektor, $T_{\text{mérés}} = 160\,000$ sec, n-típusú, 10-2500 keV



Magyarországi laboratóriumok eredményei

Nuklid	NATO referencia [Bq/kg]	MH Rad. Lab. [Bq/kg]	MGSZH [Bq/kg]	PA Zrt. VEO [Bq/kg]
Am-241	$3,94 \pm 0,16$	$4,0 \pm 1,1$	$3,8 \pm 0,2$	$3,66 \pm 0,46$
Pu-239 (²³⁹ Pu+ ²⁴⁰ Pu)	$15,47 \pm 0,72$	MGSZH eredménye	$20,0 \pm 2,0$	$17,8 \pm 1$

- Minta száma: 08257/K (MH) (nettó tömege: 487,7 g veszteség kb.: 18,3g)
- Az MGSZH Radioanalitikai Referencia Laboratóriumban (100 ml) alfa spektrometriás vizsgálatokat végeztünk. Eredmény: Pu-239+Pu-240: 20 ± 2 Bq/kg
- NATO körmérésen kívül 50 ml minta átadása PA Zrt. VEO részére (ICP-MS, alfa spektrometriás vizsgálatokra).



A körmérés eredményei

- Eredmények 2010. márc.
- Anonim, csak a saját mintaszám ismert

Minta száma: 08257K (MH)

A pontos összetétel:

^{241}Am :

$3,94 \pm 0,16 \text{ Bq/kg}$ ($1,97 \text{ Bq/500g}$)

$^{239+240}\text{Pu}$

$15,47 \pm 0,72 \text{ Bq/kg}$ ($7,74 \text{ Bq/500g}$)

(^{239}Pu 99.9%+ ^{240}Pu 0.1%)

($15,45 \text{ Bq/kg } ^{239}\text{Pu} + 0,0154 \text{ Bq/kg}$)

Sample	24 h Report Communicated Results		1 Month Report Communicated Results	
	Detected Isotopes	Certified Activity	Detected Isotopes	Certified Activity
08257/A	Am^{241} α/β	1.3 Bq/L Isotopes presence	Am^{241}	5.46 Bq/L
08257/B	Am^{241} Pu^{239}	$4.5 \pm 1 \text{ mBq/mL}$ $16 \pm 4 \text{ mBq/mL}$	Am^{241} Pu^{239}	$3.7 \pm 0.5 \text{ mBq/g}$ $21.6 \pm 3.0 \text{ mBq/g}$
08257/C	Am^{241}	$3.91 \pm 1.09 \text{ Bq/L}$	Am^{241} Pu^{239} α β	$4 \pm 1 \text{ Bq/L}$ $20 \pm 1 \text{ Bq/L}$ $26 \pm 9 \text{ Bq/L}$ $< 1.8 \text{ Bq/L}$
08257/D	Tl^{204} Co^{57} Am^{241} U^{235}	Detected in bag Detected in bag Detected in sample Detected in sample	K^{40} Cs^{137} Th^{231} U^{235} Pa^{234m} Am^{241}	1.7 Bq/mL $< 0.05 \text{ Bq/mL}$ $< 0.05 \text{ Bq/mL}$ $< 0.05 \text{ Bq/mL}$ $< 0.1 \text{ Bq/mL}$ $< 0.05 \text{ Bq/mL}$
08257/E	Am^{241}	$1.36 \pm 0.15 \text{ Bq/L}$	Am^{241}	$1.36 \pm 0.15 \text{ Bq/L}$
08257/F	None		Am^{241} U^{238} U^{235}	$3.7 \pm 0.3 \text{ Bq/l (1s)}$ 2.12 mBq/l (1s) 0.1 mBq/l (1s)
08257/G	Am^{241} $\text{Pu}^{239+240}$	$3.88 \pm 0.21 \text{ Bq/kg (k=2)}$ $15.0 \pm 1.3 \text{ Bq/kg (k=2)}$	Am^{241} $\text{Pu}^{240}/\text{Pu}^{239}$ Pu^{239} Pu^{240} $\text{Pu}^{239}-\text{Pu}^{240}$	$3.88 \pm 0.21 \text{ Bq/kg (k=2)}$ $0.0011 \pm 0.0003 \text{ (n/n) (k=2)}$ $14.9 \pm 0.2 \text{ Bq/kg (k=2)}$ $0.06 \pm 0.02 \text{ Bq/kg (k=2)}$ $14.9 \pm 0.2 \text{ Bq/kg (k=2)}$
08257/H	Am^{241}	$4.87\text{E-}3 \pm 2.08\text{E-}4 \text{ Bq/g (1s)}$	Am^{241} Pu^{239}	$4.10\text{E-}3 \pm 3.09\text{E-}4 \text{ Bq/g(1s)}$ $0.0135 \text{ Bq/g} \pm 4\% \text{ (Alpha)}$ $0.0132 \text{ Bq/g} \pm 3\% \text{ (MS)}$
08257/I	U^{238} Th^{232} U^{235} U^{238} Pu^{239} Am^{241} Ra^{226} Pb^{212} Pb^{214} Ti^{208} Bi^{214} Zr^{95}	Qualitative Qualitative 0.092 ppb 0.034 ppb 0.013 ppb Qualitative Qualitative Qualitative Qualitative Qualitative Qualitative Qualitative	Am^{241} Pb^{212} Pb^{214} Bi^{212} Bi^{214} Ti^{208} Zr^{95} Ra^{226} Ba^{131} Fe^{59} U^{235} U^{238} Pu^{239}	101 Counts/10000s 597 Counts/10000s 40 Counts/10000s 58 Counts/10000s 18 Counts/10000s 182 Counts/10000s 88 Counts/10000s 27 Counts/10000s 34 Counts/10000s 7 Counts/10000s 0.092 ppb 0.034 ppb 0.016 ppb
08257/J	Pu^{239}	Qualitative	Pu^{239} Am^{241}	Qualitative Qualitative
08257/K	Further analysis are needed		Am^{241} $\text{Pu}^{239+240}$ α total β total	$4 \pm 1 \text{ Bq/kg}$ $20 \pm 2 \text{ Bq/kg}$ $24 \pm 2 \text{ Bq/kg (Bq/l)}$ None
08257/L	Am^{241}	$3.74 \pm 0.38 \text{ Bq/L}$	No participation	
08257/M	Am^{241}	$2.13 \pm 0.45 \text{ Bq/L}$	Am^{241}	$2.96 \pm 0.21 \text{ Bq/L}$
08257/N	Am^{241} $\text{Pu}^{239+240}$	$4.01 \pm 0.11 \text{ Bq/kg (k=2)}$ Qualitative	Am^{241} $\text{Pu}^{239+240}$	$4.01 \pm 0.11 \text{ Bq/kg (k=2)}$ $15 \pm 1.2 \text{ Bq/kg (k=2)}$



Körmérés eredményei

Am-241

■ A szervező ITM a beérkezett eredményeket kiértékelte

■ Jelmagyarázat

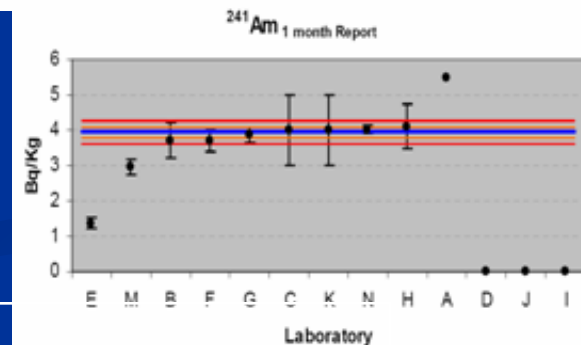
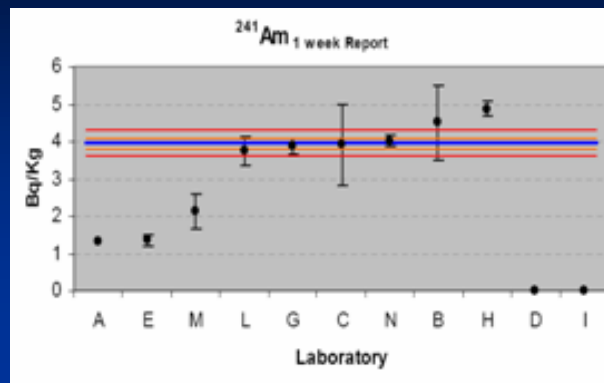
Kék: valódi érték (3,94 Bq/kg)

Narancssárga: minta bizonytalansága

($\pm 0,16$ Bq/kg)

Piros: min. és max. elfogadási érték

(valódi érték ± 10 %, $\pm 0,39$ Bq/kg)



Eredmény (1 hét) Am-241						
Értékelés				A 8 nem megfelelő közül:		
Eredmény	9 labor kvantitatív	ebből 5 megfelelt	8 nem megfelelő	4 elfogadási határon kívül	2 kvalitatív	2 nem közölt mérési adatot
résztvevők %	69 %	38 %	62 %	30 %	15 %	15 % (MH)
Eredmény (1 hónap) Am-241						
Értékelés				A 6 nem megfelelő közül		
Eredmény	10 labor kvantitatív	ebből 7 megfelelt	6 nem megfelelő	3 elfogadási határon kívül	2 kvalitatív	1 nem közölt mérési adatot
résztvevők %	77 %	54 % (MH)	46 %	23 %	15 %	8 %



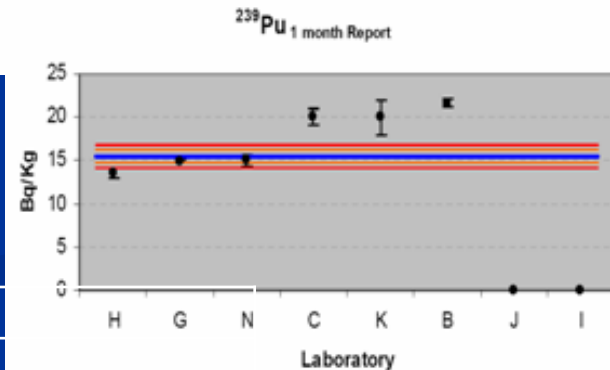
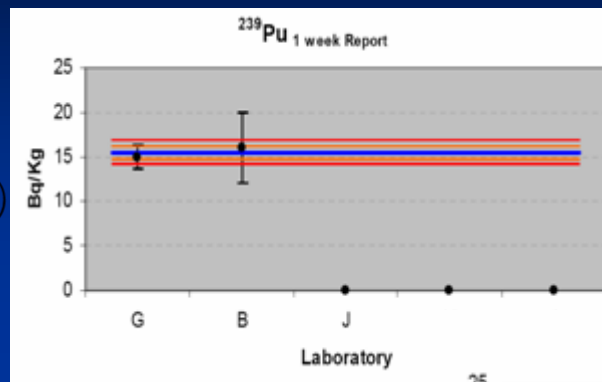
Körmérés eredményei

Pu-239

Kék: valódi érték ($15,47 \text{ Bq/kg}$ $^{239+240}\text{Pu}$)

Narancssárga: minta bizonytalansága
($\pm 0,72 \text{ Bq/kg}$)

Piros: min. és max. elfogadási érték
(valódi érték $\pm 10\%$, $\pm 1,55 \text{ Bq/kg}$)



Eredmény (1 hét) Pu-239 + Pu-240

Értékelés (13 labor)

A 11 nem megfelelő közül:

Eredmény	2 labor kvantitatív	ebből 2 megfelelt	11 nem megfelelő	elfogadási határon kívül	3 kvalitatív	8 nem közölt mérési adatot
résztvevők %	15 %	15 %	85 %	-	23 %	62 % (MH)

Eredmény (1 hónap) Pu-239 + Pu-240

Értékelés (13 labor)

A 10 nem megfelelő közül

Eredmény	6 labor kvantitatív	ebből 3 megfelelt	10 nem megfelelő	3 elfogadási határon kívül	2 kvalitatív	5 nem közölt mérési adatot
résztvevők %	46 % (MH)	23 %	77 %	23 %	15 %	38 %



Körmérés eredményeinek statisztikai kiértékelése

- Statisztikai kiértékelés ISO 13528 (2005) és ISO/IEC 43 guide (1997) szerint

- Egymintás u-próba eredmények

- Piros: nincs mérés

- Det:

nincs mérési bizonytalanság,

nem lehet u-próbával kiértékelni

- Zöld:

mintabeli átlag szignifikánsan nem tér el

a populációs átlagtól

$U > 2,58$ elfogadás

$U < 2,28$ elvetés

Table 10: U-Score results

Lab.	U-score							
	1 st week				1 st month			
	²⁴¹ Am Val. Cat.	²³⁹ Pu Val. Cat.	²⁴¹ Am Val. Cat.	²³⁹ Pu Val. Cat.	²⁴¹ Am Val. Cat.	²³⁹ Pu Val. Cat.	²⁴¹ Am Val. Cat.	²³⁹ Pu Val. Cat.
A	Det.				Det.			
B	0.19 <2.58	0.23 <2.58	0.46 <2.58	7.00 >2.58				
C	0.36 <2.58		0.31 <2.58	2.41 <2.58				
D	Det.		Det.					
E	12.7 >2.58		12.7 >2.58					
F			1.75 <2.58					
G	0.23 <2.58	0.32 <2.58	0.23 <2.58	0.78 <2.58				
H	3.50 >2.58		0.25 <2.58	2.20 <2.58				
I	Det.	Det.	Det.	Det.				
J		Det.	Det.	Det.				
K			0.06 <2.58	2.13 <2.58				
L	1.36 <2.58							
M	4.51 >2.58		4.92 >2.58					
N	0.32 <2.58	Det.	0.35 <2.58	0.33 <2.58				

Where : "Det" = "Detected"; the participant has reported the isotope but he has not given an estimation of uncertainty that allows U-score calculus.



Tapasztalatok

- Jelentős különbségek a NATO laboratóriumok között erőforrás, képesség (műszerezettség) és gyakorlat terén
- Az Am-241 meghatározása a legtöbb laboratóriumnál sikeres volt, a Pu-239 jóval nagyobb gondot okozott
- Nagyobb aktivitású mintára gondoltunk, az első 24h jelentésben csak „tapogatóztunk”
- Az 1 hónapos jelentésben a MH Rad. Laboratóriuma az Am-241 izotópot gamma Hp-GE Canberra GC2020 detektorral kimérte
- A Pu meghatározását az MGSZH Rad. Laboratóriuma végezte el.
- Kontroll mérésre a minta 50 ml-ét átadtuk a PA Zrt. részére (**eredmények külön poszteren, Ferencz Bernadette: Ismeretlen minta radioaktív anyag tartalmának meghatározása**)
- Angol nyelvű dokumentáció
- Folyamatos tapasztalatcsere a laboratóriumok között kiemelten fontos



Köszönjük a Paksi Atomerőmű Zrt. Vegyészeti Ellenőrző Osztálya és a Tarján Sándor vezette Mezőgazdasági Szakigazgatási Hivatal Központ Radioanalitikai Referencia

Laboratóriuma valamint kollegám, Csurgai József segítségét, közreműködését a mérések elvégzésében.

Köszönöm a figyelmet!

Kérdések?