

Stralingsbeschermingsdienst

Rapport nr. SBD 4889 .

Samenstelling:

Chr. J. Hyskens

J. Th. G. M. Hemelaar

P. J. H. Kicken

Datum: januari 1985

SBD -- 4889

STRALINGSDOSES TEN GEVOLGE VAN RADIOACTIVITEIT IN GLOEIKOUSJES

Terwille van de leesbaarheid wordt in dit rapport vaak de term "stralingsdosis" gebruikt. Wanneer het om uitwendige bestraling gaat wordt daarmee bedoeld het dosisequivalent voor totale lichaamsbestraling; bij inwendige besmetting met radionucliden wordt het effectief volgdosisequivalent bedoeld.

Als eenheid van dosis(equivalent) wordt de sievert (Sv) of daarvan afgeleid de millisievert (mSv) gebruikt.

N.B. Uitgedrukt in de oude dosiseenheid komt 1 sievert overeen met 100 rem.

INHOUD

	<u>blz.</u>
Samenvatting / Summary	1
1. Inleiding	2
2. Activiteit in de gloeikousjes	3
3. Methodiek bij dosisschattingen	4
4.1. Inhalatie van activiteit tijdens het branden	5
4.2. Inhalatie van geëxhaleerd radon	6
4.3. Inhalatie van radioactieve stofdeeltjes die vrijkomen tijdens het verwisselen	7
4.4. Inslikken van thoriumoxide	7
4.5. Uitwendige bestraling tijdens gebruik	8
4.6. Thorium-230 in gloeikousjes	8
4.7. Collectieve stralingsdosis ten gevolge van het gebruik	9
5.1. Stralingsdoses bij transport en opslag	9
5.2. Ongevalssituatie	10
6. Afval-aspect	10
Geraadpleegde literatuur	12

FIGUREN EN TABELLEN

Figuur 1: Distributieschema van gloeikousjes in Nederland	13
Tabel 2: Vervalschema van Th-232 met fysische gegevens van de radionucliden	13
Figuur 3: Activiteit van Th-232 en dochterprodukten als functie van tijdsverloop na zuivering van het erts	14
Tabel 4: Radioactiviteit in gloeikousjes per nuclide, op verschillende tijdstippen van gebruik	15
Tabel 5: Dosimetriegegevens van relevante radionucliden	15
Tabel 6: Samenvatting van individuele en collectieve stralingsdoses t.g.v. het gebruik van gloeikousjes	16

SAMENVATTING

In gloeikousjes voor gaslampen komt de radioactieve stof thorium voor. Het gebruik en mogelijk ook het transport en de opslag van de gloeikousjes kan een stralingsdosis veroorzaken. In dit rapport worden de schattingen voor eventuele stralingsdoses besproken.

De collectieve dosis voor alle gebruikers wordt in de Nederlandse situatie geschat in de orde van 100 sievert per jaar. Dit komt voor de betrokkenen (circa 700.000 personen) overeen met 5 à 10% van de collectieve stralingsdosis ten gevolge van stralingsbronnen die van nature aanwezig zijn in het leefmilieu.

Ongeveer driekwart van de collectieve dosis t.g.v. het gebruik van gloeikousjes hangt samen met het eventueel inademen van radium-activiteit tijdens het branden van de gloeikousjes.

Een pessimistische schatting voor de individuele dosis door inhalatie komt zelfs tot 0,2 mSv per gebruikte gloeikous. Dit betreft het gebruik van zeer oude gloeikousjes in een kleine niet geventileerde ruimte. Gebruikers dienen daartegen te worden gewaarschuwd.

Bij de dosisberekening wordt apart aandacht geschonken aan de eventuele aanwezigheid van Th-230.

Uit een globale beschouwing van de dosisconsequenties bij brand in een opslagloods blijkt dat het nodig is voor brandweerpersonnel om bij de bluswerkzaamheden adembescherming te dragen.

Geconcludeerd wordt dat ongecontroleerd verwijderen van resten van gloeikousjes naar het (bodem)milieu geen significante verhoging geeft van de natuurlijke achtergrondstraling.

SUMMARY

Thorium nitrate is used in the production of incandescent mantles for gas lanterns.

In this report dose estimates are given for internal and external exposure that result from the use of the incandescent mantles for gas lanterns.

The collective, effective dose equivalent for all users of gas mantles is estimated to be about 100 Sv per annum in the Netherlands. For the population involved (ca. 700,000 persons) this is roughly equivalent to 5% to 10% of the collective dose equivalent associated with exposure to radiation from natural sources.

The major contribution to dose estimates comes from inhalation of radium during burning of the mantles. A pessimistic approach results in individual dose estimates for inhalation of up to 0.2 mSv.

Consideration of dose consequences in case of a fire in a storage department learns that it is necessary for emergency personnel to wear respirators.

It is concluded that the uncontrolled removal of used gas mantles to the environment (soil) does not result in a significant contribution to environmental radiation exposure.

1. INLEIDING

Al sedert het einde van de vorige eeuw worden in gaslampen gloeikousjes gebruikt, waarin thoriumnitraat is verwerkt. Door verbranding ontstaat thoriumoxide dat, evenals oxiden van andere actiniden en lanthaniden bij verhitting tussen ca. 1400 en 1800 graden Celsius, een helder licht verspreidt. De lichtopbrengst en de spectrale verdeling worden beïnvloed door de temperatuur en de aanwezigheid van zgn. additieven, bijvoorbeeld ceriumoxide.

Alle isotopen van het element thorium zijn radioactief. De radionuclide Th-232 die in gloeikousjes aanwezig is, vervalt via een tiental radioactieve dochternucliden waaronder Th-228. Daarbij wordt alpha-bèta- en gammastraling uitgezonden. In paragraaf 2 wordt uiteengezet welke radioactiviteit gemiddeld in een gaskousje voorkomt.

De toepassing van thoriumoxide in de gloeikousjes berust uitsluitend op de fysisch/chemische eigenschappen van deze stof (hoge lichtintensiteit bij verhitting) en niet op de radioactiviteits-eigenschappen.

De aanwezigheid van radioactiviteit in gloeikousjes kan in principe worden opgevat als een ongewenst bijverschijnsel. Immers ten gevolge van deze radioactiviteit kunnen personen die betrokken zijn bij de produktie, distributie en het gebruik van gloeikousjes blootgesteld worden aan ioniserende straling.

Uit navraag bij de importeurs van gloeikousjes is gebleken dat in Nederland jaarlijks circa 700.000 gloeikousjes worden geïmporteerd en verkocht aan gebruikers. 97% hiervan wordt gebruikt door kampeerders; 1,5% door beampten van de Nederlandse Spoorwegen en 1,5% door personeel van de Koninklijke Landmacht. In Nederland worden geen gloeikousjes geproduceerd. De gegevens over distributie en gebruik zijn samengevat in figuur 1.

Op basis van deze gegevens zijn dosisberekeningen uitgevoerd om een inzicht te krijgen in de mogelijke stralingsbelasting ten gevolge van de toepassing van gloeikousjes in de Nederlandse situatie.

De berekeningsmethodiek die bij de dosisschattingen is gebruikt, wordt globaal beschreven in paragraaf 3.

Voor wat betreft de stralingsdosis ten gevolge van het gebruik door de kampeerder is er onderscheid gemaakt tussen:

- de inhalatie van radioactieve aerosolen tijdens het branden van de gaslamp
- de inhalatie van het radioactieve edelgas radon (Rn-220), dat uit het gloeikousje vrijkomt
- de inhalatie van thoriumoxide stofdeeltjes die vrijkomen in lucht bij het verwisselen van gloeikousjes
- het inslikken van thoriumoxide t.g.v. het verwisselen van gloeikousjes
- de uitwendige bestraling.

De resultaten worden toegelicht in paragraaf 4. De berekeningen die hieraan ten grondslag liggen, zijn uitgewerkt in een intern rapport (SBD 4889b).

In par. 4.6. is een aparte toelichting gegeven op de potentiële dosisverhoging t.g.v. de aanwezigheid van Th-230 in gloeikousjes als gevolg van thoriumwinning uit uraniumhoudend thoriumerts.

Verder zijn schattingen verricht voor de mogelijke stralingsdosis bij transport en opslag van grote hoeveelheden gloeikousjes. Ook is aandacht besteed aan de dosisconsequenties van een brand in een opslagloods (paragraaf 5).

In de laatste paragraaf wordt een korte beschouwing gewijd aan het afval-aspect.

2. ACTIVITEIT IN DE GLOEIKOUSJES

Het thoriumnitraat dat gebruikt wordt bij de fabricage van gloeikousjes wordt gewonnen uit thoriumerts.

Alle isotopen van het element thorium zijn radioactief. De radionuclide Th-232 die aanwezig is in gloeikousjes, vervalt via een tiental radioactieve dochternucliden tot het stabiele Pb-208. Een van de dochternucliden is Th-228. In tabel 2 is het vervalschema toegelicht.

In het erts heerst een absoluut activiteitsevenwicht tussen Th-232 en de radioactieve dochternucliden; d.w.z. dat de activiteit van elk* der dochterprodukten gelijk is aan de activiteit van Th-232.

Aangezien bij de chemische zuivering geen onderscheid kan worden gemaakt tussen de beide thoriumisotopen zijn Th-232 en Th-228 in het thoriumnitraat in dezelfde verhouding aanwezig als in het erts. Uit het grote verschil in halveringstijden voor beide thoriumisotopen valt overigens af te leiden dat de gewichtshoeveelheid Th-232 aanzienlijk groter is dan de gewichtshoeveelheid Th-228.

Direct na afscheiding van het thorium uit het erts is de activiteit van Th-228 gelijk aan de activiteit van Th-232. De activiteiten van de overige dochterprodukten uit de vervalreeks zijn na zuivering aanvankelijk nihil. De activiteit groeit aan tengevolge van radioactief verval van Th-232 en Th-228. Ongeveer 40 jaar na de thoriumzuivering is er weer absoluut evenwicht tussen de radionucliden uit de thorium-vervalreeks.

Over de eventuele aanwezigheid van Th-230, dat in de natuurlijke uraanreeks voorkomt, zijn onvoldoende gegevens bekend. In par. 4.6. is hieraan enige aandacht besteed.

De gemiddelde waarde voor Th-232 activiteit in een gloeikousje is circa 1000 Bq. De in de literatuur vermelde waarden liggen tussen 850 en 1425 Bq. De resultaten van eigen activiteitsmetingen zijn hiermee in overeenstemming.

Het tijdsafhankelijke verloop van de activiteit van elk van de radionucliden in een gloeikousje is als functie van de leeftijd van het thoriumnitraat grafisch weergegeven in figuur 3. E.e.a. is als volgt samen te vatten:

Thorium-232:

De activiteit van Th-232 blijft binnen het beschouwde tijdvak van honderd jaar als gevolg van de lange halveringstijd ($T_{1/2} = 1,4 \cdot 10^{10}$ jaar) nagenoeg constant (lijnstuk -*-*-*-*-).

Radium-228 en Actinium-228:

Door verval van Th-232 ontstaat Ra-228 en daaruit Ac-228 (lijnstuk). Als gevolg van de relatief korte halveringstijd is de activiteit van Ac-228 binnen korte tijd in evenwicht met Ra-228. Na circa 40 jaar is de Ra-228 activiteit (en dus ook de Ac-228 activiteit) in evenwicht met de Th-232 activiteit.

*Zoals uit het vervalschema blijkt is de gezamenlijke activiteit van Tl-208 en Po-212 gelijk aan de activiteit van Bi-212.

Thorium-228:

De aanvankelijk na afscheiding aanwezige Th-228 activiteit neemt door fysisch verval af met een halveringstijd van 1,9 jaar. Na circa 20 jaar is deze activiteit gereduceerd tot ongeveer 1 promille (lijnstuk - - -).

Uit het verval van Ac-228 wordt gelijktijdig nieuw Th-228 gevormd (lijnstuk -^--^--). De som van de activiteiten van het "oude" Th-228 en het "nieuwe" Th-228 is in de figuur voor de periode van 4 maanden tot 10 jaar apart weergegeven (lijnstuk ———). Na ongeveer 40 jaar is de Th-228 activiteit als gevolg van deze ingroei weer gelijk aan de Th-232 activiteit.

Radium-224, Radon-220, Polonium-216, Lood-212 en Bismuth-212:

De dochternucliden van Th-228 groeien door de korte halveringstijden vrij snel in ($T_{1/2} < 4$ dagen). Na circa 30 dagen is de activiteit van elk van deze radionucliden nagenoeg gelijk aan die van Th-228 (lijnstuk -.-.- en +++++). Na 30 dagen volgen de activiteiten van de dochterprodukten van Th-228 dan ook het activiteitsverloop van het "oude" Th-228.

Uit het "nieuwe" Th-228 ontstaan diezelfde dochterprodukten; deze zijn qua activiteit vrijwel direct gelijk aan de activiteit van het "nieuwe" Th-228. Zij groeien dan ook in met hetzelfde tempo als Th-228 (lijnstuk -^--^--). De activiteit van de dochterprodukten is derhalve na circa 40 jaar gelijk aan de activiteit van Th-232.

Uit literatuur zijn gegevens bekend over verandering in het activiteitsgehalte van de gloeikousjes tijdens het branden. Het blijkt dat de Th-232 en Th-228 activiteit ook tijdens het branden nagenoeg constant blijft.

Circa 30% van de radium-activiteit (Ra-228 en Ra-224) komt tijdens het branden vrij. Deze emissie gebeurt grotendeels binnen de eerste 45 minuten dat het kousje brandt.

Van de oorspronkelijk aanwezige activiteit van Pb-212 en Bi-212 blijkt 60 à 70% tijdens het branden in de lucht te worden verspreid. Deze uitstoot gebeurt grotendeels in de eerste 5 à 10 minuten van gebruik.

De activiteit van het Ac-228 blijft tijdens het branden nagenoeg constant; de verminderde ingroei ten gevolge van het verdwijnen van de moedernuclide Ra-228 heeft nauwelijks invloed. De activiteitsafname van het Ac-228 berust op fysisch verval en niet op verspreiding.

Over de andere radionucliden (Rn-220, Po-216, Po-212 en Tl-208) zijn geen gegevens bekend voor wat betreft de uitstoot uit het kousje tijdens het branden. Bij de verdere dosisschattingen in dit rapport wordt verondersteld dat de activiteit van deze nucliden in het gloeikousje steeds gelijk is aan de activiteit van Bi-212 en Pb-212.

Na de uitstoot van activiteit bij het zgn. eerste gebruik groeit de activiteit van sommige radionucliden vrij snel in als gevolg van hun korte halveringstijden. Op grond van het voorgaande valt in te zien dat het voor de activiteit verschil maakt of we te maken hebben met gloeikousjes waarin het thoriumnitraat slechts ten hoogste enkele jaren oud is, of met thoriumnitraat van een leeftijd meer dan ca. 40 jaar.

In tabel 4 is het overzicht gegeven van de geschatte activiteit van de diverse nucliden, in verschillende stadia van gebruik en afhankelijk van de leeftijd van het thoriumnitraat.

3. METHODEK BIJ DOSISSCHATTINGEN

De dosisberekeningen voor inwendige besmetting zijn uitgevoerd met gebruik van gegevens uit ICRP-publicatie 30. De belangrijkste gegevens zijn vermeld in tabel 5.

De stralingsdosis wordt berekend door de ingenomen activiteit te relateren aan de jaarlimiet voor inname (ALI) die in de stralingsbescherming wordt

gehanteerd voor personen die beroepsmatig met radioactieve stoffen omgaan. Onder de afgeleide grootheid ALI wordt verstaan de activiteit die bij inname door de mens een (effectief) volgdoosisequivalent veroorzaakt gelijk aan de jaardosislimiet. Zoals zal blijken zijn de individuele stralingsdoses zo laag dat acute stralingseffecten niet kunnen optreden. Daarom wordt gebruik gemaakt van de ALI-waarden die behoren bij de jaardosislimiet voor stochastische effecten. Deze is 50 mSv per jaar.

De modelbenaderingen ter berekening van de ingenomen activiteit worden in par. 4 steeds apart genoemd.

De stralingsdosis, uitgedrukt in millisievert volgt dan per nuclide uit:

$$\text{stralingsdosis} = \frac{\text{activiteitsinname}}{\text{ALI}} * 50$$

Hoewel de ICRP-modelbenadering bedoeld is voor toepassing bij beroepsmatig blootgestelde personen kunnen deze gegevens toch worden gebruikt bij het bepalen van de ordegrrootte van de stralingsdosis bij andere personen. Men dient er echter op bedacht te zijn dat de uitkomsten niet mogen worden geïnterpreteerd als een feitelijke individuele dosis. Immers als gevolg van verschillen in bijvoorbeeld lichaamsafmetingen, dieet en metabolisme kan inname van eenzelfde activiteit bij verschillende personen leiden tot afwijkende individuele stralingsdoses. Volledigheidshalve wordt opgemerkt dat de stralingsbelasting bij jongere personen (babies, kinderen) niet zijn verwerkt in deze schattingen.

Vooraf gelet op de radiotoxiciteit van het radium en op het verschil in voorkomen van de radiumisotopen in het thoriumnitraat, afhankelijk van de leeftijd, moet bij dosisschattingen verschil gemaakt worden tussen zeer oud thoriumnitraat (circa 40 jaar of ouder) en relatief jong thoriumnitraat (in de leeftijd van enkele jaren).

De dosisberekeningen in de verschillende fasen van gebruik zijn dan ook steeds gemaakt voor jong en oud thoriumnitraat.

Zoals eerder genoemd worden jaarlijks in Nederland 700.000 gloeikousjes geïmporteerd en verkocht aan gebruikers. Het overgrote deel (circa 97%) wordt gebruikt door kampeerdere.

Bij de berekening van de collectieve stralingsdosis is er vanuit gegaan dat alle gloeikousjes worden gebruikt door kampeerdere. De NS-beambten en militairen zijn in de berekeningen niet als aparte groepen meegenomen. Gelet op de wijze van gebruik en de hoeveelheden wordt deze vereenvoudiging toelaatbaar geacht.

4.1. INHALATIE VAN ACTIVITEIT TIJDENS HET BRANDEN

Tijdens het branden van het gloeikousje wordt een deel van de aanwezige radioactieve atomen in lucht verspreid. Als gevolg hiervan kunnen radioactieve stofdeeltjes (aerosolen) door inhalatie in het lichaam worden opgenomen.

Bij de dosisschattingen voor inhalatie is uitgegaan van de volgende veronderstellingen:

- De gaslamp wordt gedurende 2 uur per dag gebruikt.
- Het volume van de ruimte (tent, caravan, kampeerauto) wordt gesteld op 15 m³.
- Voor de luchtverversing wordt aangenomen dat de ventilatiesnelheid 2 per uur is.

- Het gemiddelde ademvolume van kampeerders wordt gesteld op $1,2 \text{ m}^3$ per uur; dit getal wordt in de ICRP-benadering gebruikt voor personen die lichte arbeid verrichten.

Uit de gegevens in tabel 4 blijkt dat de berekende activiteitsinhoud van het gloeikousje na de eerste keer te zijn gebruikt, merkbaar is afgenomen. Het duurt aanzienlijk langer dan een dag voordat het oorspronkelijke activiteitsniveau weer is bereikt. Dit hangt samen met de halveringstijd van de relevante nucliden. Bij het verdere gebruik op volgende dagen zal de in de lucht verspreide activiteit dientengevolge minder zijn dan op de eerste dag.

Wanneer bij de dosisschattingen uitsluitend de activiteit in rekening wordt gebracht die bij het eerste gebruik vrijkomt in lucht, wordt de stralingsdosis mogelijk onderschat. Er wordt dan verondersteld dat op de volgende dagen geen verspreiding van radioactiviteit in lucht plaatsvindt. In deze benadering wordt de stralingsdosis geschat op 0,01 en 0,025 mSv per persoon per gloeikousje voor resp. een jong en een oud gaskousje.

Een mogelijke overschatting van de dosis wordt verkregen wanneer we aannemen dat, met uitzondering van Th-232, Th-228 en Ac-228, alle andere radionucliden ook op de volgende dagen (aangenomen is 1 week gebruik) in de lucht terecht komen. De dochterprodukten van de radium-isotopen groeien in de wachtperioden tussen opeenvolgend gebruik weer langzaam in, zodat de totaal verspreide activiteit van deze radionucliden dan groter is dan de oorspronkelijk aanwezige activiteit. De berekening voor een jong en een oud gloeikousje levert een resultaat van resp. 0,04 en 0,09 mSv per persoon per gloeikousje. Het verschil houdt, zoals gezegd vooral verband met de grotere radiumactiviteit in oud thoriumnitraat. Uit berekeningen blijkt dat de dosis door inhalatie van aerosolen nagenoeg volledig bepaald wordt door Ra-224 en Ra-228.

Het lijkt redelijk om voor de gemiddelde situatie uit te gaan van een dosis van circa 0,02 à 0,06 mSv per persoon per gloeikousje. In de uiterst pessimistische benadering dat "zeer oude" gloeikousjes worden gebruikt in een kleine niet geventileerde ruimte zou de dosis 0,2 mSv kunnen zijn. Dergelijke blootstelling moet worden vermeden.

4.2. INHALATIE VAN GEGEHALZEERD RADON

Het Rn-220 dat in het gloeikousje ontstaat door fysisch verval uit Ra-224 kan door het inert chemisch karakter van dit gas uit de open structuur van het gloeikousje ontsnappen en vrijkomen in lucht (radon exhalatie). Door fysisch verval van dit radon ontstaan de radioactieve dochterprodukten Po-216, Pb-216, Bi-212, Po-212 en Tl-208.

Bij de dosisschattingen voor inhalatie tijdens het branden is reeds rekening gehouden met de bijdrage van het Rn-220.

Ook wanneer de gaslamp niet wordt gebruikt vindt radon-exhalatie plaats, zodat we in de (tent)ruimte te maken kunnen hebben met een verhoogde activiteitsconcentratie van het radon en zijn volgprodukten. De stralingsdosis die hierdoor kan worden veroorzaakt is geschat met de volgende aannamen:

- de gebruiksperiode van het gloeikousje is gesteld op 1 week
- aangenomen wordt dat men 8 uur per dag in rust in de ruimte verblijft
- het ademvolume wordt gelijk gesteld aan $0,5 \text{ m}^3$ per uur
- de gemiddelde Ra-224 activiteit in het gloeikousje wordt constant verondersteld, gelijk aan 500 Bq
- de luchtventilatiesnelheid wordt gesteld op 2 per uur.

Uit berekeningen volgt dan een extra stralingsdosis van circa 0,0015 mSv per persoon per gloeikousje.

Wanneer er totaal geen sprake zou zijn van ventilatie gedurende steeds 8 uren verblijf per dag zou de dosis kunnen oplopen tot 0,011 mSv.

4.3. INHALATIE VAN RADIOACTIEVE STOFDEELTJES DIE VRIJKOMEN TIJDENS HET VERWISSELEN

Tijdens het gebruik, verbrandt het weefselmateriaal dat aanvankelijk zorgt voor de vorm en stevigheid van het gloeikousje. Wat overblijft is een brosse structuur. Bij het manipuleren met gebruikte gloeikousjes kan het materiaal in de vorm van fijne stofdeeltjes worden verspreid in de lucht en vervolgens worden ingeademd. De feitelijke activiteitsverspreiding in lucht zal sterk variëren, afhankelijk van de wijze waarop het kousje wordt gehanteerd. Het wegblazen van resten van het gloeikousje uit de gaslamp zal eerder regel dan uitzondering zijn.

De verdere dosisschatting is gebaseerd op de volgende aannamen:

- Circa 0,1% van het brosse materiaal zou als respirabel stof in de lucht terecht komen.
- De AMAD* van deze stofdeeltjes is 1 micrometer.
- Verondersteld wordt dat de kampeerder tijdens tien minuten verblijf in de "stofwolk" van circa 2 m³ ongeveer eentiende deel van het respirabele stof inademt.

Aangezien het thorium tijdens het gebruik in het gloeikousje aanwezig is als thoriumoxide is bij de dosisberekening gebruik gemaakt van de ALI-waarde van thoriumverbindingen uit de jaarklasse (Y-class).

De stralingsdosis ten gevolge van eventuele inademing van thoriumoxide wordt dan geschat op circa 0,03 mSv per persoon per gloeikousje. Gelet op de relatief lagere toxiciteit van de andere radionucliden, zijn bij deze schatting alleen Th-232 en Th-228 in de berekening meegenomen.

4.4. INSLIKKEN VAN THORIUMOXIDE

Bij het verwisselen van gloeikousjes kan een deel van het stoffige materiaal van het oude gloeikousje op de handen terecht komen. Ook kan een deel van de in de lucht verspreide stofactiviteit gedeeltelijk neerslaan op gebruiksvoorwerpen en etenswaren (depositie). Er bestaat derhalve kans op inslikken van een deel van de thoriumactiviteit.

Nieuwe gloeikousjes zijn voorzien van een dunne plastic laag en zullen daarom in de regel veel minder risico opleveren.

Bij de schatting van de extra stralingsdosis die verband houdt met het inslikken van de radioactiviteit wordt aangenomen dat:

- circa 1% van de activiteit van het gloeikousje op de handen terecht komt;
- circa 1% van het stof op de handen wordt ingeslikt;
- circa 0,01% van de activiteit van het gloeikousje via depositie op voorwerpen alsnog wordt ingeslikt.

De aannamen komen neer op het inslikken van 0,02% van de activiteit. De stralingsdosis is berekend voor gloeikousjes waarin absoluut activiteits-evenwicht heerst en ook voor gloeikousjes waarin uitsluitend Th-232, Th-228 en Ac-228 aanwezig zijn.

Gemiddeld genomen wordt de extra stralingsdosis ten gevolge van het inslikken geschat op 0,0002 mSv per persoon per gloeikousje.

*AMAD = Activity Median Aerodynamic Diameter

4.5. UITWENDIGE BESTRALING TIJDENS GEBRUIK

Door gammastralingsemissie van de diverse dochternucliden van Th-232 kan een kampeerder een uitwendige stralingsdosis ontvangen.

Uitgaande van een absoluut activiteitsevenwicht met Th-232 en verwaarlozing van de radon exhalatie, is berekend dat het dosistempo op 1 meter gelijk is aan circa 3×10^{-7} mSv per uur per gaskousje (1000 Bq Th-232).

Onder de veronderstellingen dat de effectieve verblijftijd van een kampeerder op een afstand van 1 meter circa 4 uur per dag is, de kampeerduur 14 dagen bedraagt en een gloeikousje 7 dagen in gebruik is, wordt de uitwendige stralingsdosis geschat op circa $1,3 \cdot 10^{-5}$ mSv per persoon per gloeikousje. Bij deze schatting is geen rekening gehouden met de afname van de activiteit tijdens gebruik.

4.6. THORIUM-230 IN GLOEIKOUSJES

Uit literatuurgegevens blijkt dat thoriumerts vaak uranium bevat.

Thorium(nitrat) dat gewonnen wordt uit erts waarin zowel thorium alsook uranium voorkomt, zal behalve de twee reeds eerder vermelde thoriumisotopen Th-232 en Th-228 ook Th-230 bevatten. De andere thoriumisotopen uit de primordiale reeksen (Th-234, Th-231 en Th-227) worden i.v.m. de fysische halveringstijden en de radiotoxiciteit hier buiten beschouwing gelaten. De potentiële stralingsdosisbijdragen zijn ten gevolge van hun aanwezigheid in gloeikousjes in vergelijking met die van Th-232 verwaarloosbaar.

De radionuclide Th-230 heeft een lange fysische halveringstijd ($T_{1/2} = 7,7 \cdot 10^4$ jaar); via alfaverval ontstaat hieruit de radionuclide Ra-226 ($T_{1/2} = 1602$ jaar). De ingroei van de Ra-226 activiteit verloopt zo traag dat de stralingsdosis(bijdragen) van Ra-226 en zijn radioactieve volgprodukten verwaarloosbaar zijn. De gamma- en röntgenstraling van Th-230 is in vergelijking met de fotonemissie van de volgprodukten van Th-228 enkele orden lager. De stralingsbelasting t.g.v. uitwendige bestraling neemt dan ook door de aanwezigheid van Th-230 in gloeikousjes niet merkbaar toe. Er kan dan ook alleen bij inwendige besmetting sprake zijn van een extra stralingsdosis. In de in dit rapport gehanteerde modelbenadering kan inwendige besmetting met thoriumisotopen alleen optreden tijdens het verwisselen van de gloeikousjes in de kampeersituatie en bij ongevalssituaties.

In de literatuur zijn geen gegevens aangetroffen waaruit (gemiddelde) waarden van de Th-230 activiteit kunnen worden afgeleid. Uit eigen alfa-spectrometrische bepalingen aan enkele gloeikousjes (bij de SBD/THE) werd afgeleid dat de Th-230 activiteit in deze gloeikousjes en ten hoogste gelijk zou zijn aan de Th-228 activiteit.

In een andere onderzoekinstelling werd de Th-230 activiteit in een thoriumhoudend monster daarentegen bepaald op ruim 10 maal de Th-228 activiteit.

Uitgaande van dezelfde randvoorwaarden en modelaannamen als in voorgaande paragrafen wordt de extra stralingsdosis t.g.v. 1000 Bq Th-230 in een gloeikousje (= Th-232 activiteit) geschat op ca. 0,007 mSv t.g.v. inhalatie en op ca. $2,5 \cdot 10^{-5}$ mSv t.g.v. orale inname van stofdeeltjes tijdens het verwisselen van gloeikousjes.

Zonder Th-230 waren de dosisschattingen hiervan respectievelijk 0,022-0,033 en 0,00015-0,00028 mSv (zie tabel 6).

De geschatte stralingsbelasting t.g.v. inname van thorium in het lichaam neemt toe met circa 25% voor elke 1000 Bq Th-230. De invloed hiervan op de gemiddelde totale dosis per kampeerder is 3-13%.

Als de Th-230 activiteit echter een factor 10 hoger zou zijn dan de Th-232 activiteit neemt de schatting van de gemiddelde individuele stralingsdosis toe met ca. 0,07 mSv. In vergelijking met de gloeikousjes zonder Th-230 zou

de dosis per kampeerder hierdoor een factor 1,5 à 2,5 hoger worden.

In dit rapport zijn de eventuele dosisbijdragen van Th-230 niet in de tabellen verwerkt. Het verdient echter aanbeveling om het voorkomen van Th-230 in gloeikousjes nader te onderzoeken.

4.7. COLLECTIEVE STRALINGSDOSES TEN GEVOLGE VAN HET GEBRUIK

Op basis van de dosisschattingen in de vorige paragrafen wordt de collectieve stralingsdosis op jaarbasis berekend die het gevolg zou zijn van het gebruik van gloeikousjes. De collectieve dosis wordt berekend door de gemiddelde dosis per persoon en per gloeikousje te vermenigvuldigen met het aantal betrokken personen en het aantal gloeikousjes. In tabel 6 is een overzicht gegeven van de diverse bijdragen aan de jaarlijkse collectieve dosis onder de aanname dat:

- het aantal gloeikousjes gelijk is aan 700.000 per jaar
- per kampeereenheid per jaar 2 gloeikousjes worden gebruikt
- een kampeereenheid bestaat uit 2 personen.

Volgens deze benadering wordt de collectieve dosis voor het kampeergebruik geschat op 53 à 100 Sv per jaar. De grootste bijdrage hiertoe (35 à 80 Sv per jaar) is de eventuele stralingsdoses ten gevolge van de inhalatie van luchtstof tijdens het branden van de gloeikousjes. Verder zou circa 20 Sv per jaar het gevolg kunnen zijn van inhalatie van thoriumoxide tijdens het verwisselen van gloeikousjes. Het inslikken van thoriumoxide, het inademen van radongas en de uitwendige bestraling zijn verwaarloosbaar.

Het zal duidelijk zijn geworden uit de verschillende aannamen die werden gehanteerd, dat geen overdreven waarde mag worden gehecht aan de nauwkeurigheid van de berekende dosisbijdragen. De leeftijd van het thoriumnitraat blijkt van belang. Voor jong thorium ligt de collectieve dosis in het traject van 30 tot 76 Sv. Wanneer alle thoriumnitraat ouder dan 40 jaar zou zijn, blijkt de range 51 tot 150 Sv te zijn.

De spreiding in de individuele doses kan aanzienlijk worden beïnvloed door afwijkende aannamen voor ventilatie en verspreidingsmodel (pathway).

Juist om de invloed van de modelaannames te kunnen voorzien werden ze steeds per geval genoemd.

Belangrijker dan de uitkomsten op zich is de relatieve betekenis van deze collectieve dosis in verhouding tot bijvoorbeeld de stralingsdosis ten gevolge van de van nature aanwezige stralingsbronnen. Gemiddeld genomen is de natuurlijke jaardosis in de Nederlandse situatie circa 2 mSv per individu. Voor de beschouwde groep van 700.000 personen komt dit overeen met een collectieve jaardosis van circa 1200 Sv.

De collectieve stralingsdosis ten gevolge van het gebruik ligt dus in de orde van 5% à 10% hiervan. In afzonderlijke gevallen kan de individuele dosis zelfs meer dan 10% van de natuurlijke jaardosis zijn.

5.1. STRALINGSDOSES BIJ TRANSPORT EN OPSLAG

Tijdens transport en opslag van grote hoeveelheden gloeikousjes kunnen personen die daarbij betrokken zijn mogelijk blootstaan aan uitwendige bestraling. Bij de berekening van de stralingsdosis voor uitwendige bestraling is weer uitgegaan van het dosistempo op 1 meter afstand van een gaskousje te weten $3 \cdot 10^{-7}$ mSv per uur. In de meest pessimistische benadering zou de individuele uitwendige stralingsbelasting niet meer dan 1,5 mSv per jaar bedragen.

Voor een modelbenadering waarbij alle opslag in rekening wordt gebracht wordt de collectieve dosis door uitwendige bestraling geschat op 0,1 Sv per jaar. Op analoge wijze berekend wordt de collectieve stralingsdosis voor transport van gloeikousjes naar achtereenvolgens de importeur, de groothandel, detailhandel en gebruiker geschat op circa 0,004 Sv per jaar. De gloeikousjes zijn tijdens transport en opslag zodanig verpakt dat onder normale omstandigheden het vrijkomen van radioactieve stoffen is uitgesloten. Eventuele inwendige besmetting bij transport en opslag wordt dan ook buiten beschouwing gelaten.

5.2. ONGEVALSSITUATIE

Slechts onder abnormale omstandigheden, in bijzonder bij brand in een opslagloods, zou er sprake kunnen zijn van inwendige besmetting. Om een inzicht te krijgen in de ordegrrootte van het risico is een dosisschatting gemaakt voor geval bij de bluswerkzaamheden geen adembescherming zou worden gedragen. Verder is aangenomen dat:

- in de opslagloods 10.000 gloeikousjes opgeslagen zijn
- 10% van de activiteit zich homogeen verspreid in een luchtvolume van 1000 kubieke meter
- de gemiddelde activiteitsconcentratie constant blijft gedurende de bluswerkzaamheden
- de inzetijd van brandweerlieden circa 1 uur bedraagt
- het ademvolume 2,5 m³ per uur bedraagt.

Er zou dan sprake kunnen zijn van een activiteitsconcentratie in luchtstof van 1000 Bq Th-232 per kubieke meter die een inhalatie van 2500 Bq Th-232 tot gevolg kan hebben. Een dergelijke inname zou overeenkomen met ongeveer 25 maal de (niet-stochastische) limietwaarde zoals die geldt voor de jaarlijkse inname van radioactiviteit door personen die beroepsmatig daarmee werken.

De conclusie moet dan ook zijn dat (ook) gelet op de stralingsrisico's, het dragen van adembescherming noodzaak is.

Bij brand kan overigens ook de chemische toxiciteit belangrijk worden. Rekening houdend met circa 500 microgram beryllium per gloeikousje kan de beryllium-concentratie in lucht bij brand oplopen tot enkele honderden microgrammen per kubieke meter. (In de literatuur is een meetresultaat vermeld waaruit afgeleid werd dat de hoeveelheid beryllium in de gloeikous na één uur branden afneemt van circa 500 naar 200 microgram. Extrapolatie van dit gegeven naar het model van de brandende opslagplaats leidt tot een berylliumconcentratie van 3000 microgram per m³.)

Dit moet worden gezien in vergelijking met bijvoorbeeld een Amerikaanse norm die aangeeft dat de beryllium-concentratie in lucht niet groter mag zijn dan 25 microgram per kubieke meter. Dit om acute effecten te voorkomen.

De zgn. MAC-waarde voor beryllium-oxide is gelijk aan 2 microgram per kubieke meter lucht.

6. AFVAL-ASPECT

Het is bekend dat in het algemeen geen bijzondere maatregelen worden genomen om te voorkomen dat de resten van gebruikte gloeikousjes en dus ook de radioactiviteit, in het milieu terecht komen als afval. De vraag rijst in hoeverre dit dosisconsequenties zou kunnen hebben voor de bevolking. Berekeningen hieraan zijn nagenoeg onmogelijk omdat geen algemeen geldende

veronderstellingen kunnen worden gemaakt over de routing van dergelijke afvalstoffen. Het lijkt wel mogelijk - bijvoorbeeld aan de hand van de hierna uiteengezette redeneertrant - aannemelijk te maken dat er geen sprake kan zijn van een extra stralingsdosis op bevolkingsschaal die significant uitkomt boven het niveau van de natuurlijke achtergrondstraling in Nederland.

Een bovenschatting van de milieubelasting (bodem) volgt uit de veronderstelling dat jaarlijks de activiteit van 700.000 gloeikousjes homogeen verspreid in het normale huisvuil terecht zou komen. Het gaat dan om circa $7 \cdot 10^8$ Bq Th-232 in evenwicht met alle dochternucliden. Uitgaande van een jaaromvang aan huisvuil van circa $5 \cdot 10^9$ kg zou de concentratie aan thorium in dat huisvuil dan ongeveer 0,15 Bq Th-232 per kilogram zijn.

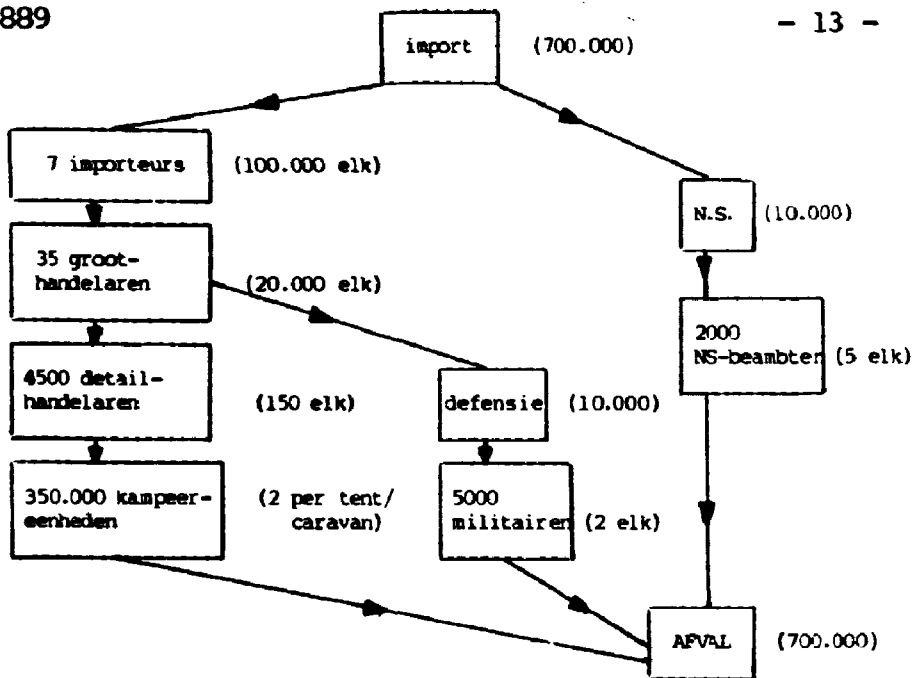
De van nature aanwezige Th-232 concentratie in de grond aan het bodemoppervlak is gemiddeld circa 25 Bq Th-232 per kilogram. De - niet realistische - aanname dat alle resten van gloeikousjes geconcentreerd op de vuilnisstortplaatsen terechtkomen, zou betekenen dat de Th-232 concentratie in de bodem plaatselijk met minder dan 1% zou toenemen.

Het jaarlijkse effectief dosisequivalent ten gevolge van de in de natuur voorkomende hoeveelheid Th-232 en de bijbehorende dochterprodukten wordt geschat op gemiddeld 0,3 mSv per individu. Ongeveer 40% hiervan wordt veroorzaakt door uitwendige bestraling en het overige door inwendige bestraling t.g.v. inhalatie en de inname via voedsel en drank.

De totale jaarlijkse stralingsdosis die de mens gemiddeld gesproken, ontvangt ten gevolge van de stralingsbronnen die in het leefmilieu aanwezig zijn is 1,5 à 2 mSv. Geconcludeerd kan worden dat het ongecontroleerd verwijderen van resten van gloeikousjes naar het (bodem)milieu geen significante verhoging kan opleveren.

GERAADPLEEGDE LITERATUUR

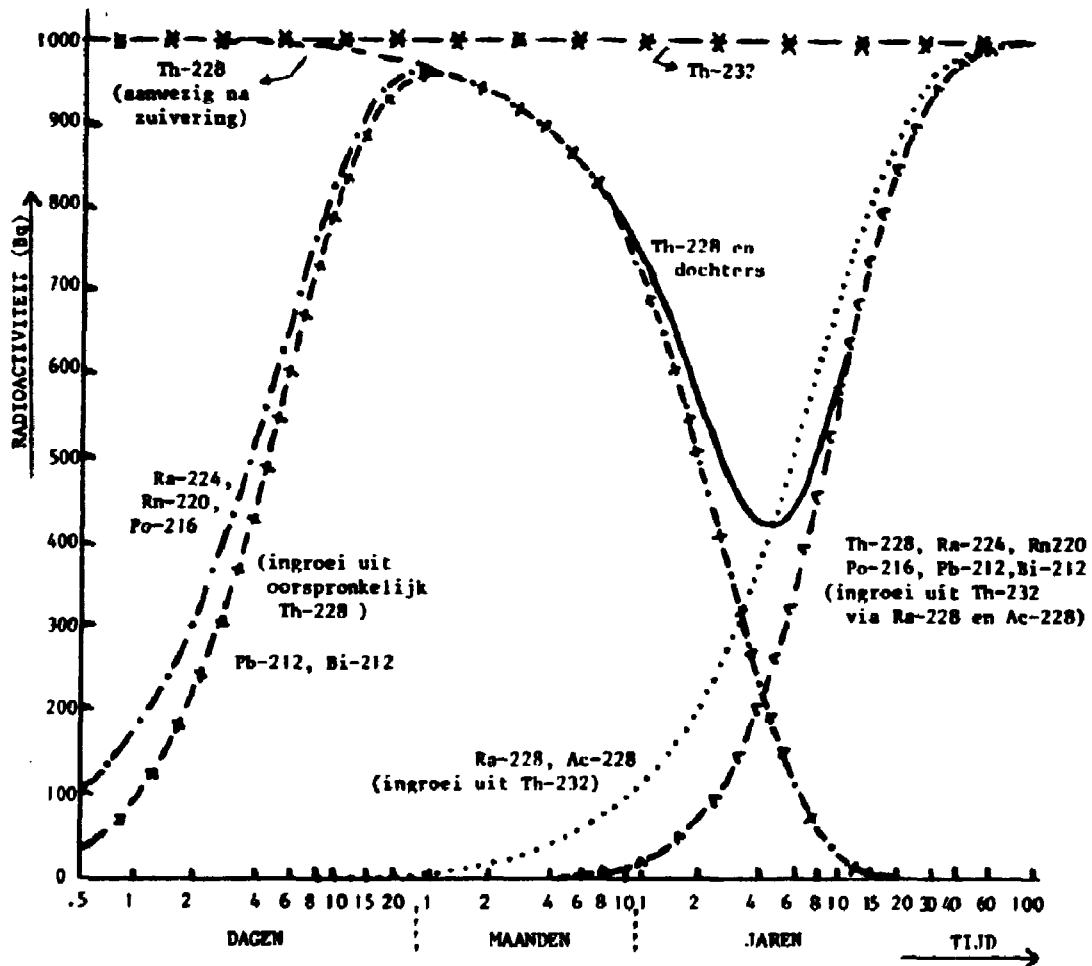
- [1] ICRP-Publication 30, Limits for intakes of radionuclides by workers, part 1, Pergamon Press, Oxford, 1979.
- [2] ICRP-Publication 32, Limits for inhalation of radon daughters by workers, Pergamon Press, Oxford, 1981.
- [3] Radiological Health Handbook, US Department of Health, Education and Welfare, Washington, 1970.
- [4] Luetzelschwab J.W. and Gogins S.W., Radioactivity released from burning gas lantern mantels, Health Physics, Vol. 46, no. 4, pp.873-881, 1984.
- [5] NCRP-Report No. 56, Radiation exposure from consumer products and miscellaneous sources, Washington, 1977.
- [6] Hannibal L., On the radiological significance of inhaled uranium and thorium ore dust, Health Physics, Vol. 42, no. 3, pp. 367-371, 1982.
- [7] O'Donnell, Assessment of radiation doses from radioactive materials in consumer products - methods, problems, and results, Radioactivity in consumer products, NUREG/CP-0001, 1978.
- [8] Environmental assessment of consumer products containing radioactive material, NUREG/CR 1755, US Nuclear Regulation Commission, 1980.
- [9] Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York, 1982.
- [10] O'Donnell, R.R. and Etnier, E.L. An Assessment of Radiation Doses from Incandescent Gas Mantles that contain Thorium, NUREG/CR-1910, 1981.
- [11] Luetzelschwab, J. Determining the Age of Gas Lantern Mantles Using Gamma-ray Analysis, Am.J.Phys. 51 (6), pp. 538-542, 1983.
- [12] Zutphen, P. van, Metingen aan de alfa- en gammastraling, die uitgezonden wordt door gloeikousjes van campinggaslampen. Afstudeerverslag Afdeling der Technische Natuurkunde, Technische Hogeschool Eindhoven
- [13] Blatz, H. Radiation Hygiene Handbook, McGraw Hill Book Company, Inc. New York, 1959.



Figuur 1 Distributieschema van gloeikousjes in Nederland met tussen haakjes het gemiddeld aantal gloeikousjes per jaar.

Tabel 2 Vervalschema van Th-232 en fysische gegevens van de radionucliden

Nuclide	Historical name	Half-life	Major radiation energies (MeV) and intensities†		
			α	β	γ
²³² ₉₀ Th	Thorium	1.41x10 ¹⁰ y	3.95 (24%) 4.01 (76%)	---	---
²²⁸ ₈₈ Ra	Mesothorium I	5.7y	---	0.055 (100%)	---
²²⁸ ₈₈ Ac	Mesothorium II	6.13h	---	1.18 (35%) 1.75 (12%) 2.09 (12%)	0.34c† (15%) 0.908 (25%) 0.96c (20%)
²²⁸ ₉₀ Th	Radiothorium	1.910y	5.34 (28%) 5.43 (71%)	---	0.084 (1.6%) 0.214 (0.3%)
²²⁸ ₈₈ Ra	Thorium X	3.64d	5.45 (6%) 5.68 (94%)	---	0.241 (3.7%)
²²⁰ ₈₈ Ra	Emanation Thoron (Tn)	55s	6.29 (100%)	---	0.55 (0.07%)
²¹⁶ ₈₄ Po	Thorium A	0.15s	6.78 (100%)	---	---
²¹² ₈₂ Pb	Thorium B	10.64h	---	0.346 (81%) 0.506 (14%)	0.239 (47%) 0.300 (3.2%)
²¹² ₈₃ Bi	Thorium C	60.6m	6.05 (25%) 6.09 (10%)	1.55 (5%) 2.26 (55%)	0.040 (2%) 0.727 (7%) 1.620 (1.8%)
²¹² ₈₄ Po	Thorium C'	304ns	8.78 (100%)	---	---
²⁰⁸ ₈₂ Pb	Thorium C''	3.10m	---	1.28 (25%) 1.52 (21%) 1.80 (50%)	0.511 (23%) 0.583 (8%) 0.840 (12%) 2.614 (100%)
²⁰⁸ ₈₂ Pb	Thorium D	Stable	---	---	---



Figuur 3 Activiteit van Th-232 en dochterprodukten als functie van tijdsverloop na zuivering van het thoriumerts.

Uitgegaan is van 1000 Bq Th-232 per gloeikousje.

$$\text{Act}(Tl-208) = 0,36 * \text{Act}(\text{Bi-212})$$

$$\text{Act}(\text{Po-212}) = 0,64 * \text{Act}(\text{Bi-212})$$

Tabel 4 Radioactiviteit (in Bq) per radionuclide in een gloeikousje op verschillende tijden van gebruik en voor verschillende ouderdom T_L van het thoriumnitraat [jaar]

Radio-nuclide	Niet gebruikt gloeikousje (nul branduren)			Direct na de eerste twee branduren			22 uur na de eerste twee branduren		
	$T_L=1/12$	$T_L=4$	$T_L=40$	$T_L=1/12$	$T_L=4$	$T_L=40$	$T_L=1/12$	$T_L=4$	$T_L=40$
Th-232	1000	1000	1000	1000	1000	1000	1000	1000	1000
Ra-228	10	380	1000	7	270	700	7	270	700
Ac-228	10	380	1000	10	370	980	7	270	700
Th-228	1000	425	1000	1000	425	1000	1000	425	1000
Ra-224	1000	425	1000	700	300	700	700	300	700
Rn-220	1000	425	1000	300	130	300	700	300	700
Po-216	1000	425	1000	300	130	300	700	300	700
Pb-212	1000	425	1000	300	130	300	620	270	620
Bi-212	1000	425	1000	300	130	300	620	270	620
Po-212	640	275	640	190	85	190	400	170	400
Tl-208	360	150	360	110	45	110	220	100	220

Tabel 5 Dosimetriegegevens van relevante radionucliden

Nuclide	ALI Ingestie [Bq]	ALI inhalatie (AMAD = 1 μ m) [Bq]			R_1 m
		D	W	Y	
Th-232	$7 \cdot 10^4$			$2 \cdot 10^{2*}$	—
Ra-228	$1 \cdot 10^5$		$4 \cdot 10^4$		—
Ac-228	$9 \cdot 10^7$	$6 \cdot 10^5$	$2 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^6$	$7 \cdot 10^{-14}$
Th-228	$5 \cdot 10^5$			$6 \cdot 10^2$	$3 \cdot 10^{-16}$
Ra-224	$6 \cdot 10^5$		$6 \cdot 10^4$		$1,3 \cdot 10^{-15}$
Rn-220	—	$5 \cdot 10^8$			$5 \cdot 10^{-17}$
Po-216	—				—
Pb-212	$5 \cdot 10^6$	$1 \cdot 10^6$			$1,8 \cdot 10^{-14}$
Bi-212	$2 \cdot 10^8$		$1 \cdot 10^7$		$1,4 \cdot 10^{-14}$
Po-212	—				—
Tl-208	—	$7 \cdot 10^{10}$	$7 \cdot 10^{10}$	$7 \cdot 10^{10}$	$4,1 \cdot 10^{-13}$
Th-230	$1 \cdot 10^5$			$6 \cdot 10^2$	—

Vermeld zijn de ALI-waarden [in Bq] behorend bij de jaarlimiet voor stochastische effecten.

R_1 is het dosistempo [in Sv per uur] op 1 meter afstand voor 1 Bq van het betreffende nuclide.

*Voor Th-232 is de ALI-waarde, behorend bij de jaarlimiet voor niet-stochastische effecten, gelijk aan 100 Bq.

Tabel 6 Samenvatting van schattingen voor gemiddelde individuele en collectieve stralingsdoses t.g.v. het gebruik van gloeikousjes.

Oorzaak stralings- dosis (handeling)	Gemiddelde individuele dosis per gloeikousje [mSv]			Collectieve dosis per jaar [Sv]	
	$1/12 < \lambda_v < 4$	$T_L=40$	$T_L=40$	$1/12 < \lambda_v < 4$	$T_L=40$
	$\lambda_v=2$	$\lambda_v=2$	$\lambda_v=0$	$\lambda_v=2$	$\lambda_v=2$
Inhalatie radioactieve aerosolen tijdens het branden	0,025 (0,01-0,04)*	0,06 (0,025-0,09)*	0,2 (0,1-0,3)*	35 (14-56)*	80 (35-126)*
Inhalatie van geïnhaleerd radon tijdens nachtrust	0,001 ($6 \cdot 10^{-4}$ - $15 \cdot 10^{-4}$)**	0,0015	0,011	1,4 (0,8-2,1)**	2,1
Inhalatie thoriumoxide tijdens het vervisselen	0,024 (0,022-0,026)**	0,026	0,033	16,8 (15,4-18,2)**	18,2
Inslippen van radioactieve deeltjes tij- dens en na het vervisselen	$1,7 \cdot 10^{-4}$ ($1,5 \cdot 10^{-4}$ - $1,9 \cdot 10^{-4}$)*	$2,2 \cdot 10^{-4}$ ($1,6 \cdot 10^{-4}$ - $2,8 \cdot 10^{-4}$)*	$2,2 \cdot 10^{-4}$ ($1,6 \cdot 10^{-4}$ - $2,8 \cdot 10^{-4}$)*	0,12 (0,11-0,13)*	0,15 (0,11-0,2)*
Uitwendige bestraling	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-5}$	0,01	0,01
Totaal	0,05 (0,033-0,067)	0,085 (0,05-0,12)	0,24 (0,14-0,34)	53 (30-76)	100 (51-150)

T_L is de ouderdom van het thoriumnitraat [jaar].

λ_v is de ventilatiesnelheid [per uur]

*range ten gevolge van onbepaaldheden met betrekking tot verspreidingsfactor.

**range ten gevolge van ouderdom van het thoriumnitraat.