CAMPOVERDE

IRPA Airp
Associazione Italiana di Radioprotezione

Rifiuti radioattivi in Italia: Gestione, Problemi, Prospettive

La gestione dei rifiuti radioattivi prodotti da acceleratori medicali

Dott. Carlo Bergamaschi
Esperto Qualificato Campoverde

Remtech Ferrara, 21 settembre 2017

www.campoverde-group.com

Ciclotroni – acceleratori di particelle - in sostituzione dei reattori nucleari nella produzione di radioisotopi per uso medicale

Cos'è un ciclotrone?

Il ciclotrone è un acceleratore di particelle. Questo dispositivo, alimentato elettricamente, produce un fascio di particelle cariche che possono essere utilizzate per processi medici, industriali e di ricerca. Come suggerisce il nome stesso, il ciclotrone accelera le particelle cariche in un percorso a spirale, consentendo così un'accelerazione molto più lunga di un acceleratore a linea retta.

Come funziona?

Il corpo di un ciclotrone è costituito da elettrodi, chiamati "dees" per la loro forma, situati all'interno di una camera a vuoto. Questa camera è piatta e alloggia in uno stretto spazio tra i poli di un grande magnete, creando così un campo magnetico perpendicolare. Un flusso di particelle cariche viene prodotto al centro della camera e, attraverso gli elettrodi, viene applicata una tensione alternata ad alta frequenza. Tale tensione attira e respinge alternativamente le particelle cariche, inducendole così ad accelerare.

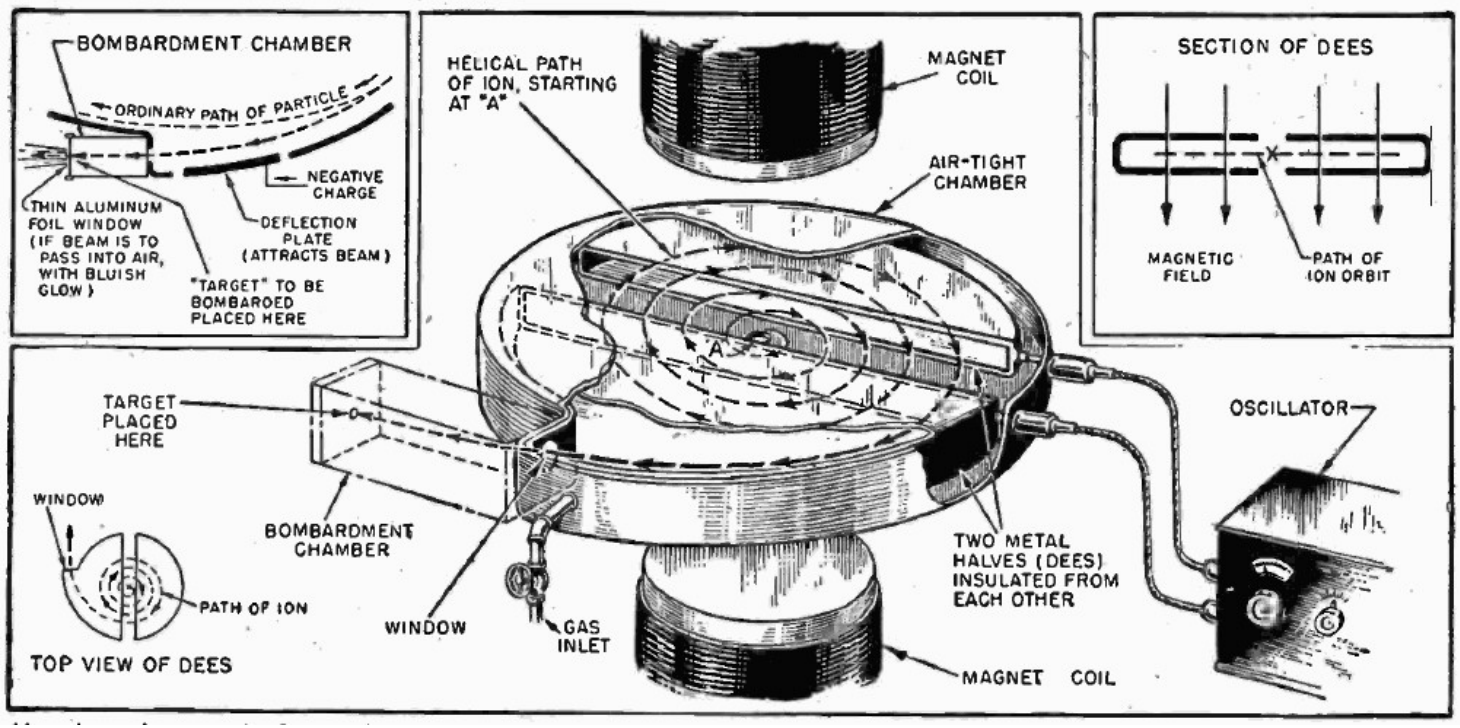
Il campo magnetico muove le particelle in un percorso circolare; man mano che l'energia posseduta dalle particelle cresce, queste si spostano verso l'esterno della spirale raggiungendo il bordo esterno della camera.

I ciclotroni moderni accelerano gli ioni negativi creati in un plasma. Quando questi ultimi raggiungono il bordo esterno della camera, gli elettroni in eccesso vengono *strippati* dagli ioni, andando così a formare particelle positive (un protone o un deutone), che possono essere estratte dal ciclotrone come fascio. La dimensione della camera a vuoto determina la lunghezza del percorso a spirale e dunque la quantità di energia raggiunta dalla particella.

Ciclotroni – acceleratori di particelle - in sostituzione dei reattori nucleari nella produzione di radioisotopi per uso medicale

Ciclotroni medicali

I ciclotroni medicali producono fasci di protoni utilizzati per produrre i radioisotopi impiegati in diagnostica. I radioisotopi prodotti in un ciclotrone decadono mediante emissione di positroni o cattura di elettroni. La tomografia a emissione di positroni (**PET**) e la tomografia ad emissione di fotone singolo (**SPECT**), che utilizzano i raggi gamma associati alla cattura di elettroni, sono due tecniche di imaging che **si basano su radioisotopi prodotti dal ciclotrone**.



Esempi di ciclotroni non auto-schermati

Siemens Eclipse HP

11 MeV protons

60 μA (x2)max. current

MAX. POWER: 660 W (x2)

IBA Cyclone® 18/9 -HC

18 MeV protons

9 MeV deuterons

150 μA max. current

MAX. POWER: 2700 W

Ciclotroni non auto-schermati: installazione tipica

Large Vault (~190 cm

Shielding (neutrons)

NCRP 144

Reinforce floor

Beam direction

Negative pressure

Conduits – Power and utilities

Trenches – Product delivery

Corner Pit – Decay in storage

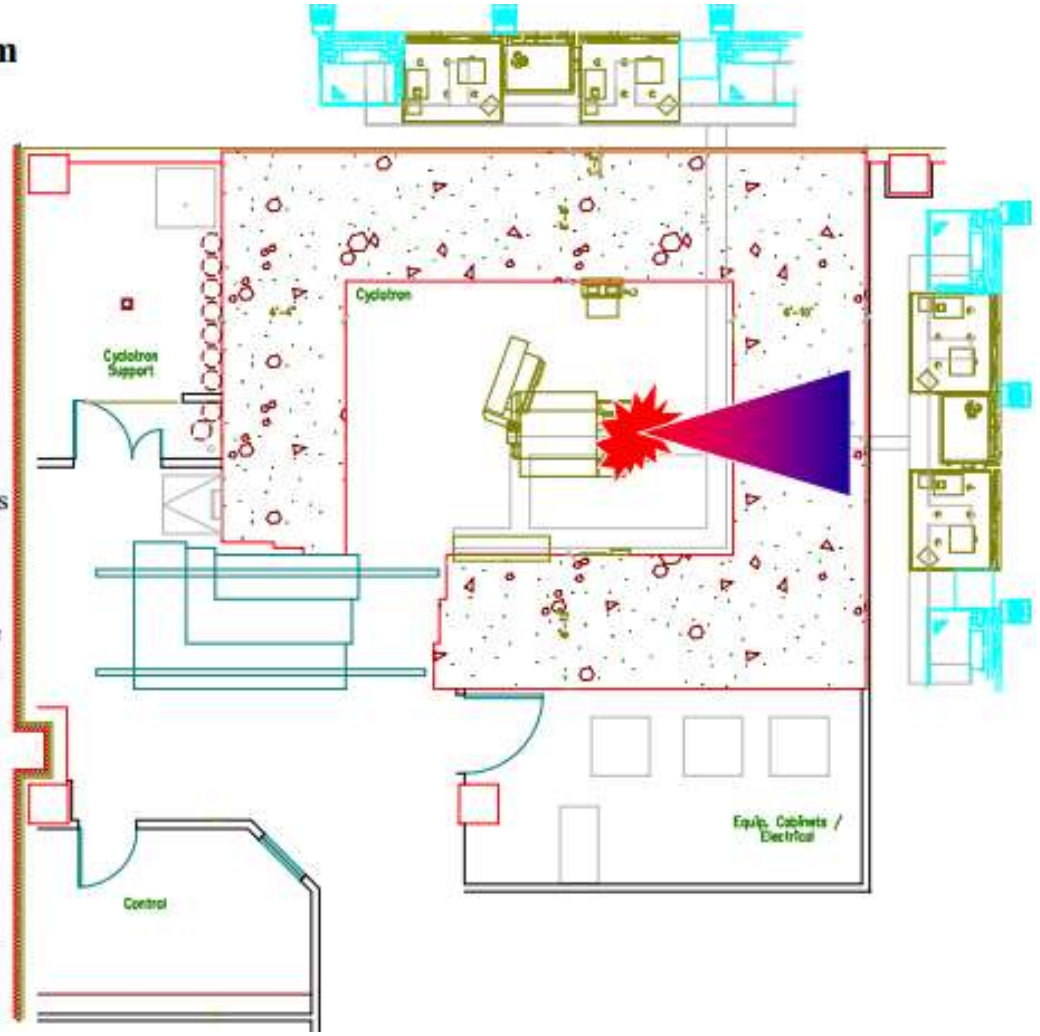
Power supply room

Support room

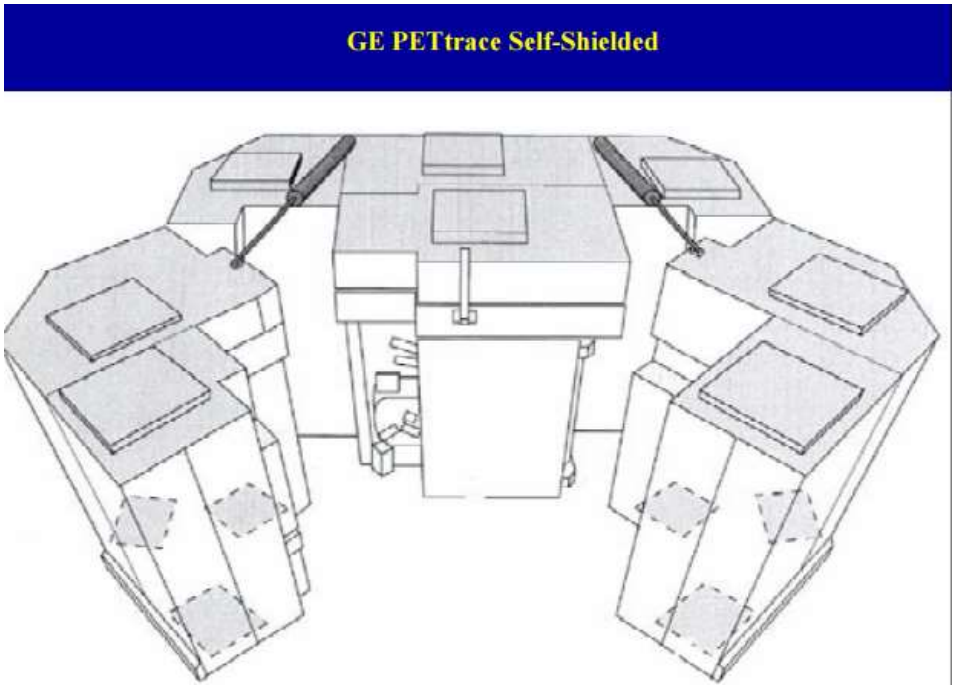
Control room – Vault door

Work bench – targets service

Product distribution valves



Esempi di ciclotroni auto-schermati



GE PETtrace

16 MeV protons
8 MeV deuterons (option)
60 μA max. current

MAX. POWER: 960 W

Ciclotroni non auto-schermati: installazione tipica

Self-shielded (~30 cm

Shielding (neutrons)

NCRP 144

Reinforced floor

Beam direction

Negative pressure

Conduits – Power and utilities

Trenches – Product delivery

Corner Pit – Decay in storage

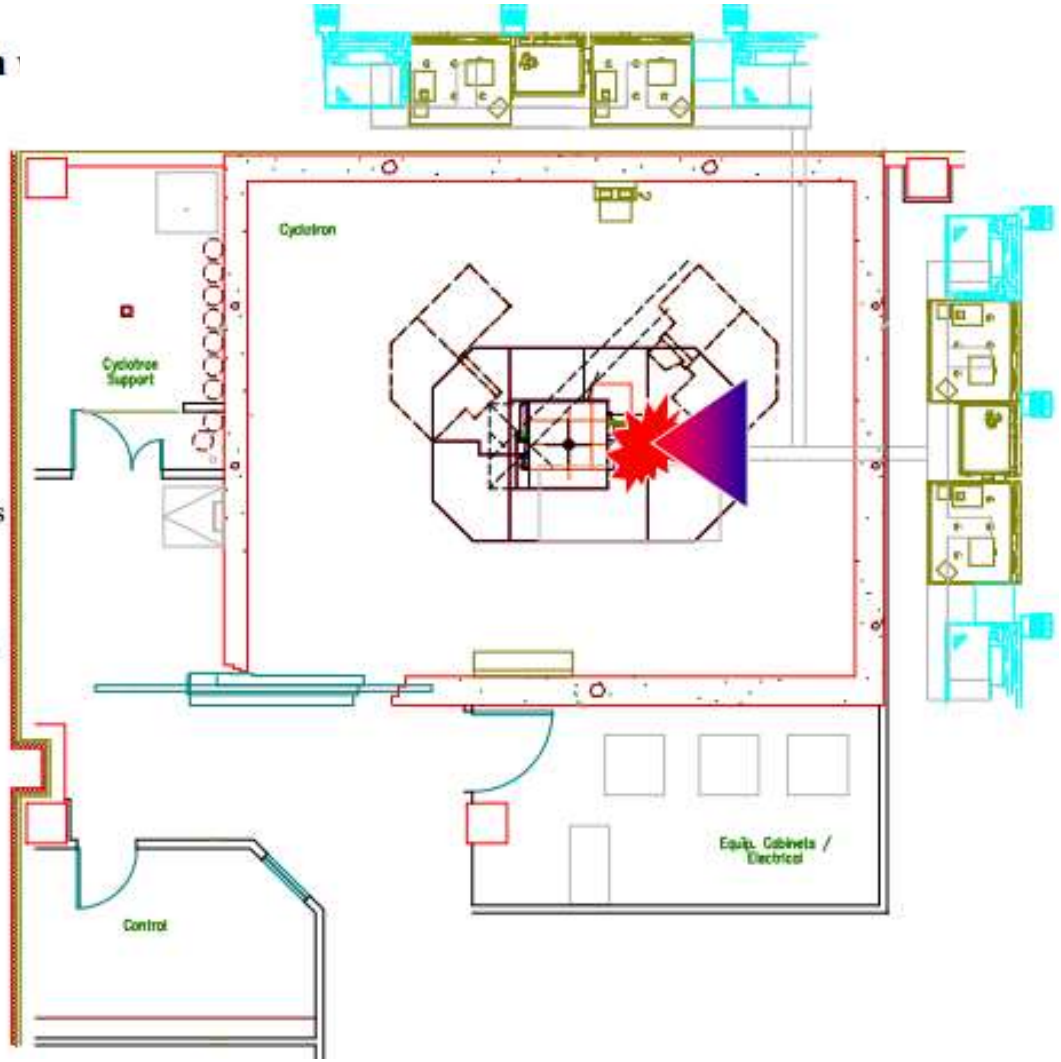
Power supply room

Support room

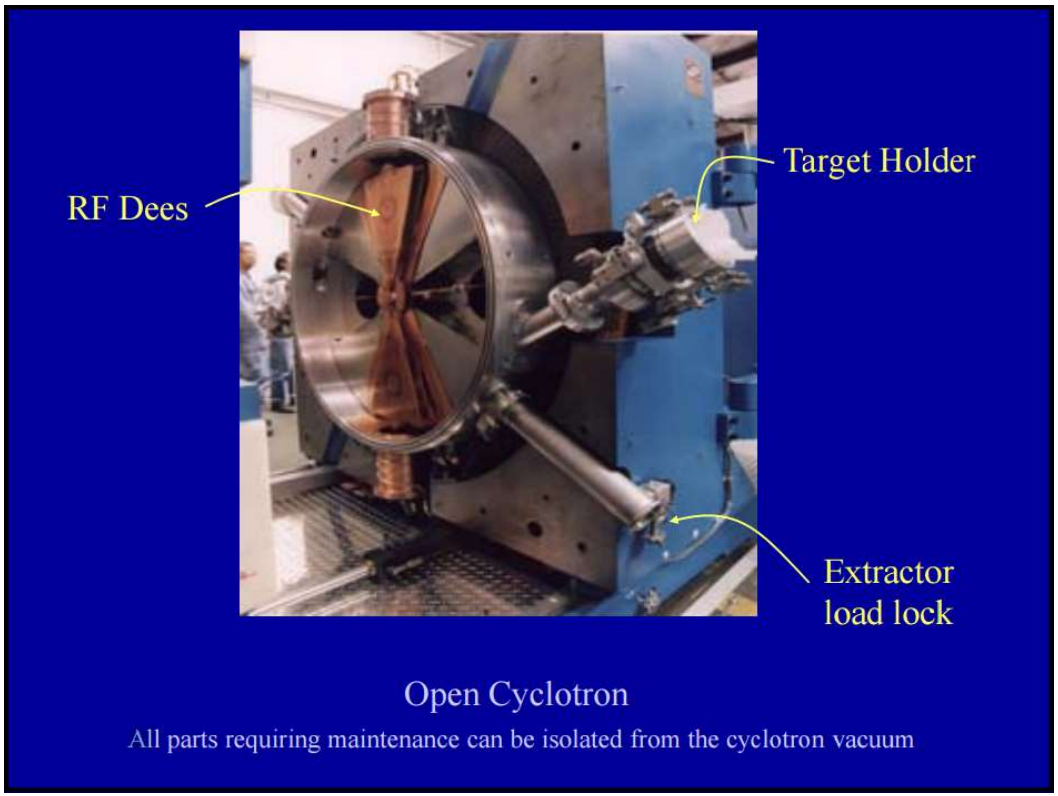
Control room – Vault door

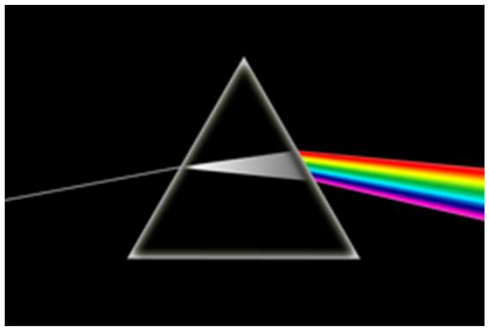
Work bench – targets service

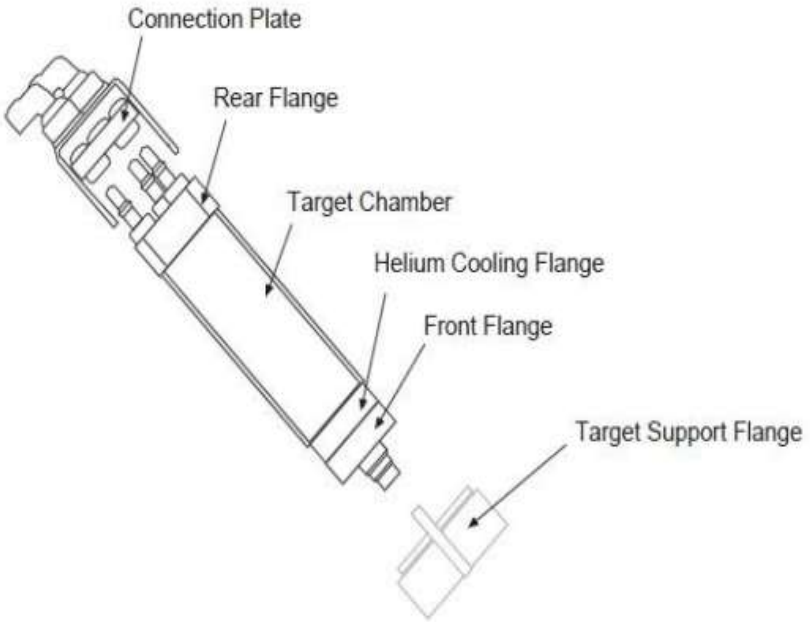
Product distribution valves



“The dark side” of the cyclotron



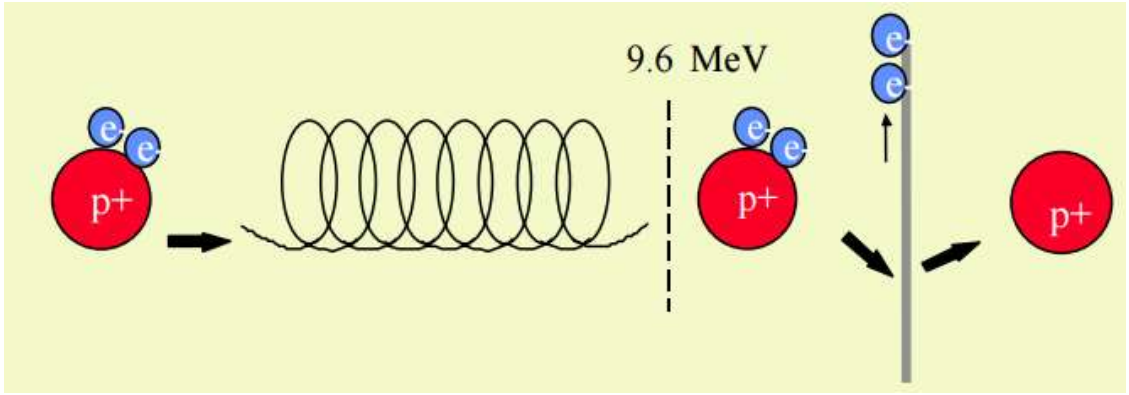


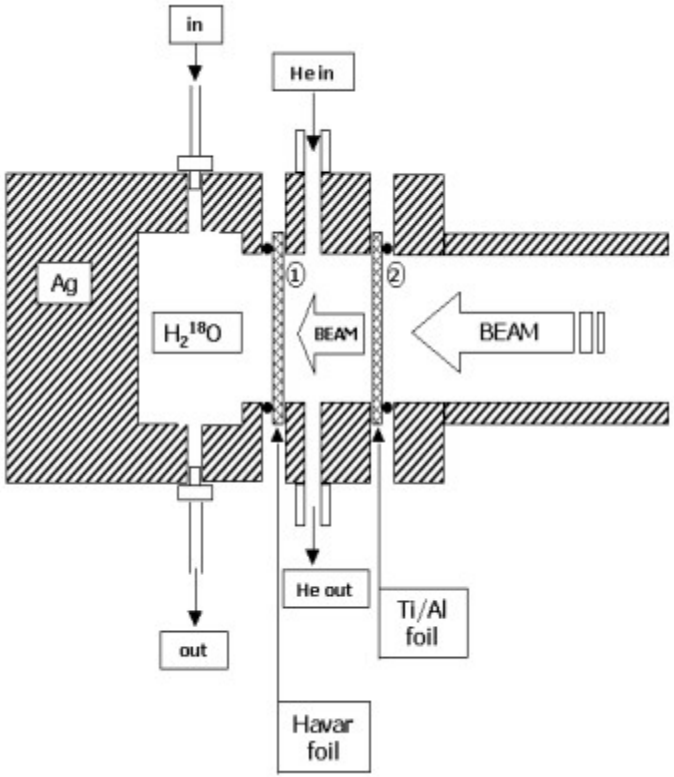


Target chamber

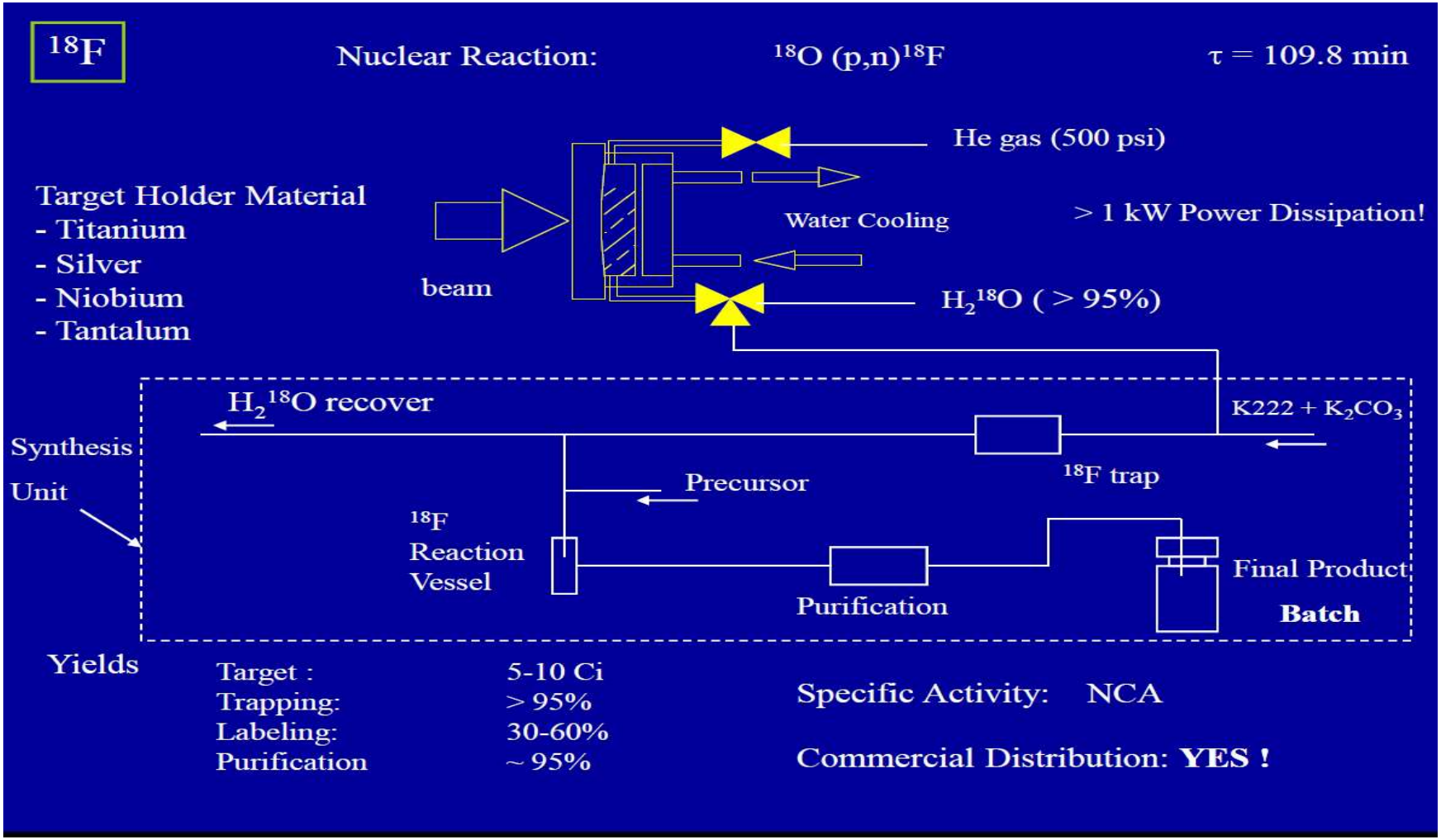
Dopo lo stripping - che avviene attraverso un foil in carbonio - e dopo aver passato il collimatore, gli ioni positivi del fascio attraversano due finestre in alluminio e/o Havar (che isolano il corpo del target dalla camera a vuoto) ed uno strato di elio tra le due finestre.

Il target contiene il volume di $H_2\,{}^{18}O$; le leghe in Argento sono state gradualmente sostituite con Titanio o Niobio.





Esempio di circuito di sintesi di ^{18}F



Rifiuti radioattivi prodotti durante l'uso di ciclotrone

CONSUMABILI

- Foil
- Liquidi vari
- Cartuccia radiochimica
- Rifiuti combustibili (guanti, tute, ecc.)
- Oggetti ingombranti (ad esempio dump, magneti, collimatori, kicker, blocchi di schermatura, parti di rivelatori, targhet…..)

RIPARAZIONI

- Componenti per il vuoto (pompe, valvole, tubi ...)
- Cavi
- Unità di ventilazione e filtri
- Calcestruzzo

MODIFICHE E UP-GRADE

- Rifiuti combustibili (guanti, tute, ecc.)
- Raffreddamento e sistemi a gas

DECOMMISSIONING

La spettrometria gamma nei laboratori Campoverde

2 Detector ITECH Coaxial

- 1 N-Type Crystal
- 1 P-Type Crystal
- Software INTERWINNER
- WINNERTRACK per MC

2 Detector ORTEC Coaxial

- 1 PROFILE –S P-Type Crystal
- 1 DX 100 PORTABLE P –Type Crystal
- Software GAMMAVISION

- ❑ **Calibrazione in energia ed efficienza**
  - Sorgenti di controllo multi-gamma Eckert & Ziegler
  - 46.5 – 1836 keV; 60 – 1836 keV in diverse geometrie
- ❑ **Contenitore schermato in piombo**
  - Campioni a basso conteggio
  - importante minimizzare il background
  - 48 ore di background dello spettro prima dell'esecuzione

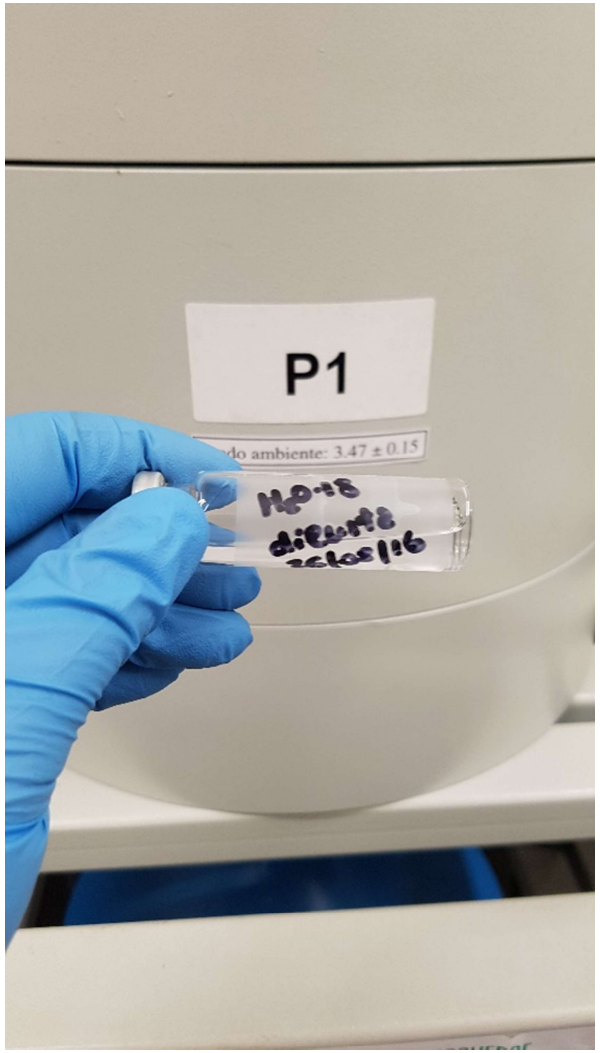
Valutazioni di attivazione eseguite nei nostri laboratori per ciclotroni medicali

- ALLUMINIO: **Na-22**, **Al-26, Co-60**
- ACCIAIO: **Ti-44**, Mn-54, Co-57, Co-58, **Co-60**, Zn-65, **Fe-55**, **Ni-63**
- RAME: **Ti-44**, Co-57, **Co-60**, Zn-65, **Ni-63**, **Fe-55**
- CAVI: **Na-22**, **Ti-44**, Mn-54, **Fe-55**, **Co-60**, Zn-65, **Ni-63**, **Rh-101**, **Ag-108m**, Ag-110m, **Sb-125, Ba-133**, **Bi-207** **H-3, C-14**

In grassetto i radionuclidi con tempo di dimezzamento > 365 gg

In carattere normale i radionuclidi con $T_{1/2}$ < 365 gg ma con concentrazioni significative

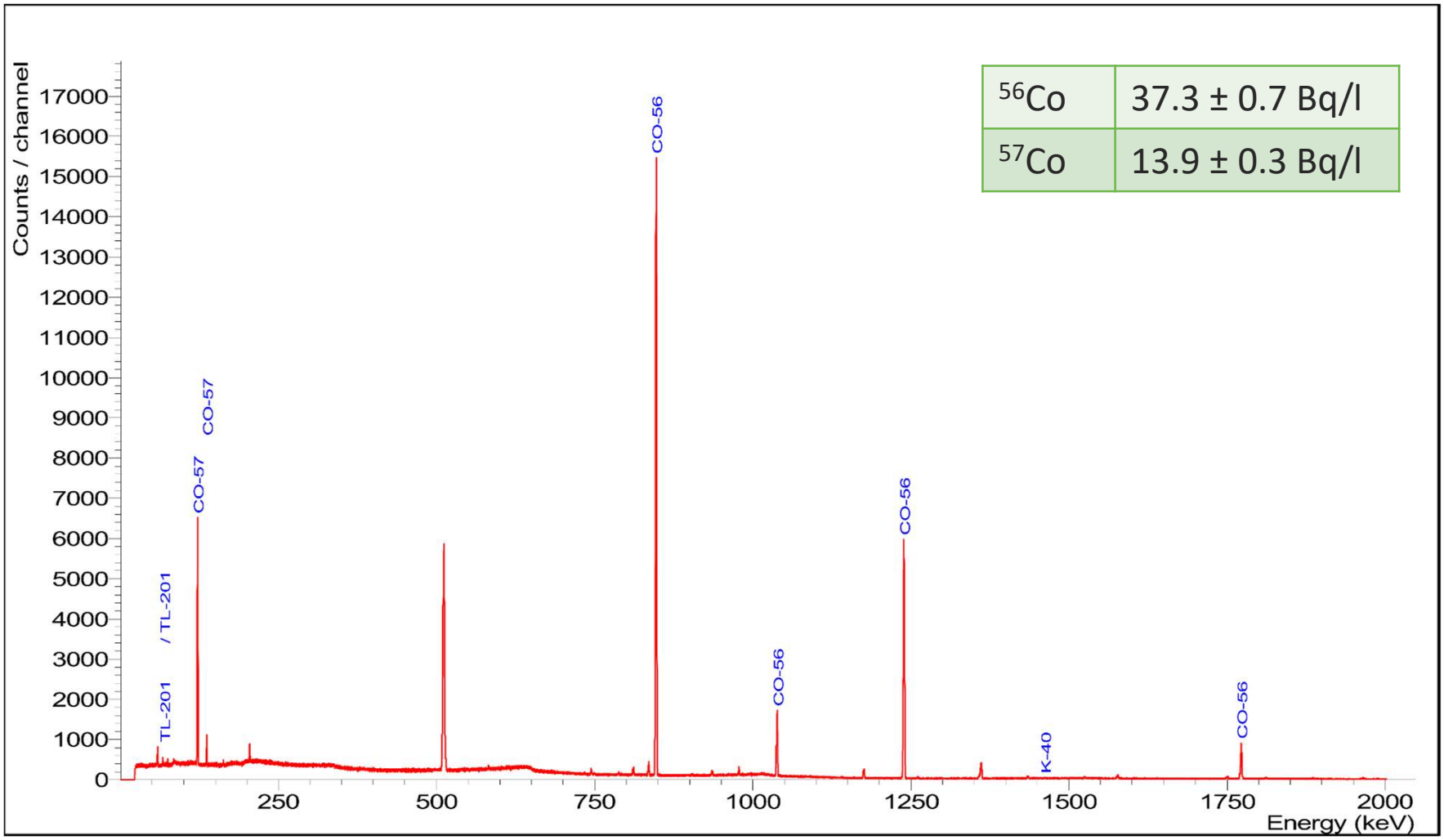
Liquidi attivati e contaminati



SPETTROMETRIA GAMMA E LSC

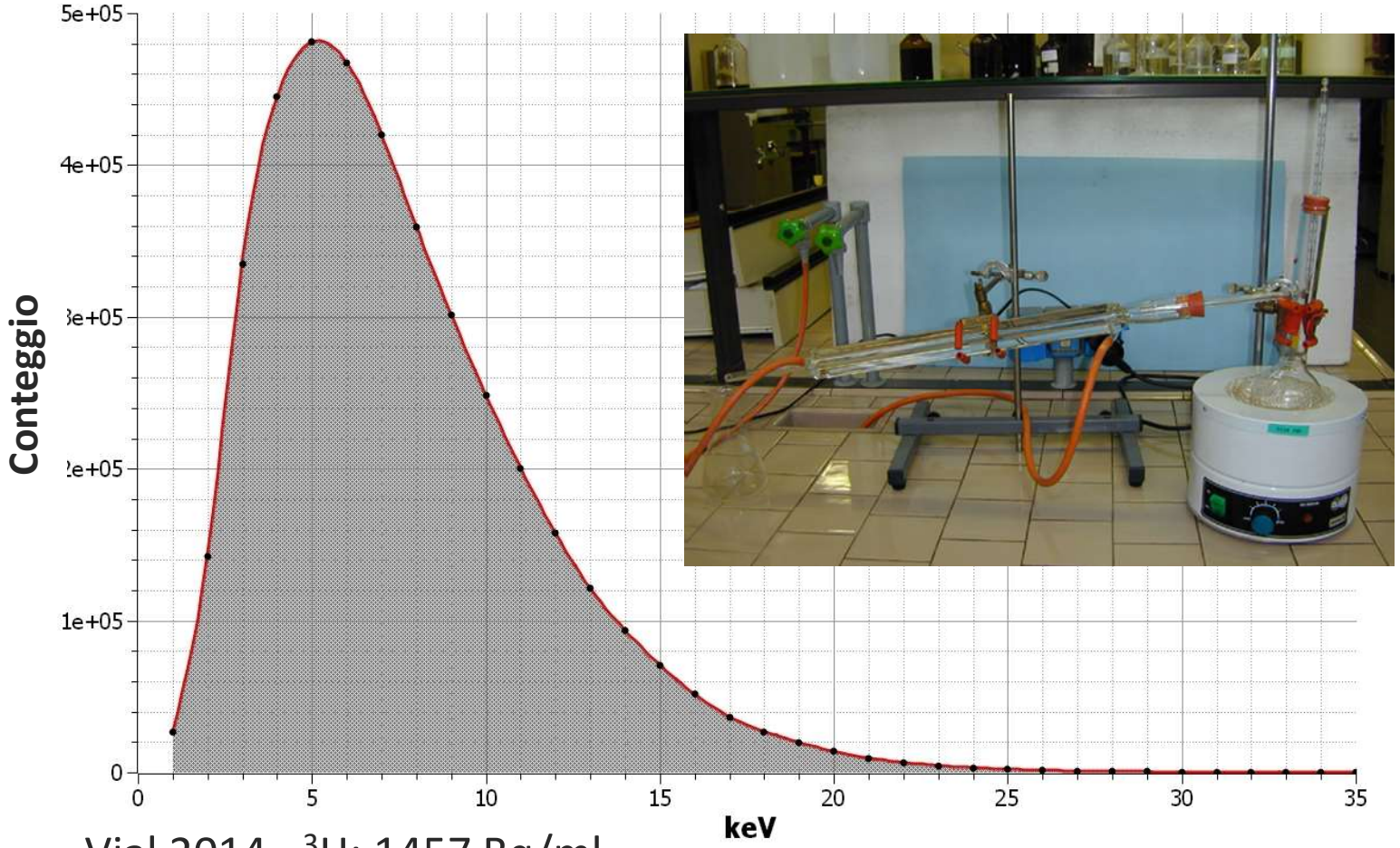
SU LIQUIDI ATTIVATI E CONTAMINATI

Spettrometria gamma



^{56}Co	37.3 ± 0.7 Bq/l
^{57}Co	13.9 ± 0.3 Bq/l

LSC



Vial 2014 - ^{3}H: 1457 Bq/ml

Vial 2016 - ^{3}H: 79557 Bq/ml

Foil

La camera contenente il materiale target è isolata con due fogli di metallo in Havar.

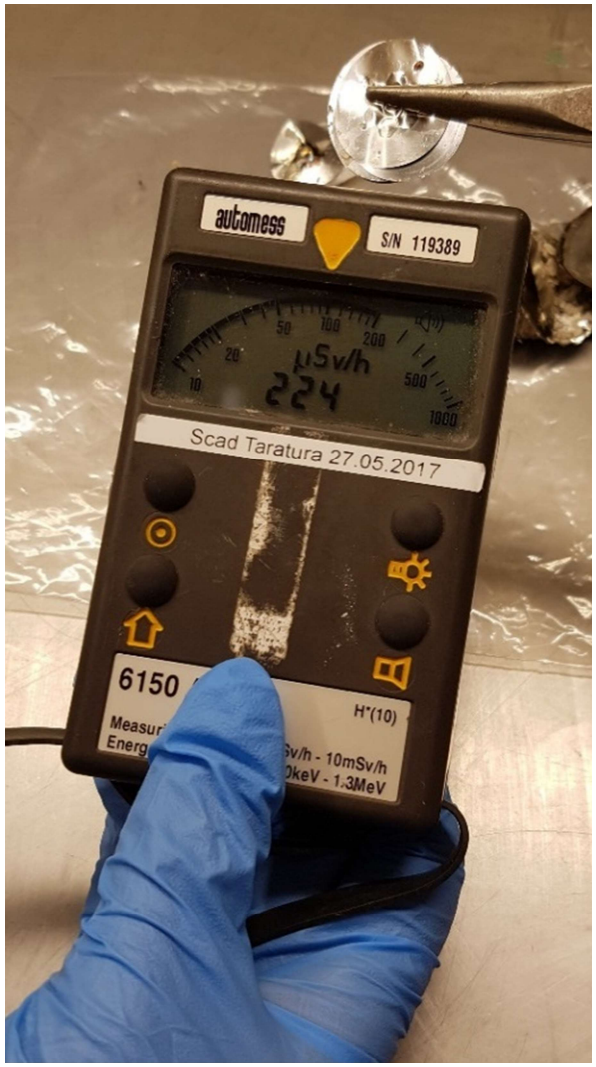
L'Havar è una lega costituita da:

42.5%	Co
20%	Cr
17.9%	Fe
13%	Ni
2.8%	W
2%	Mo
1.6%	Mn
0.2%	C
0.04%	Be

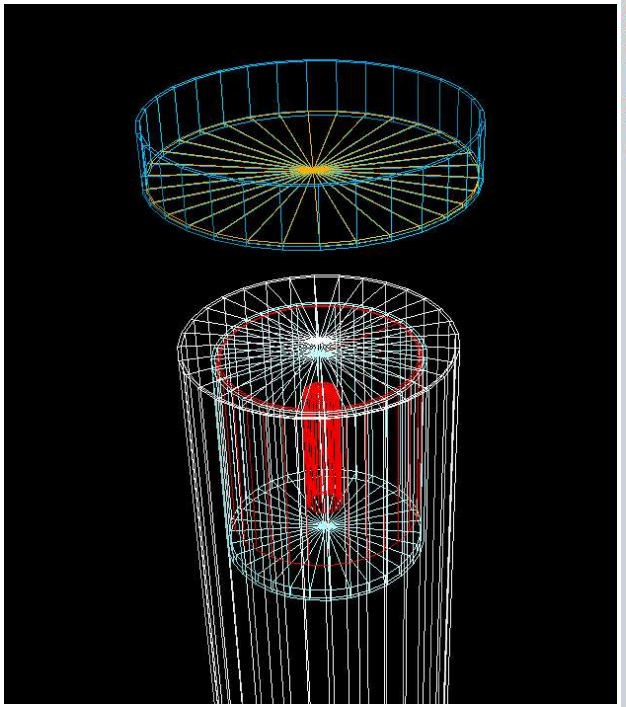
Foil

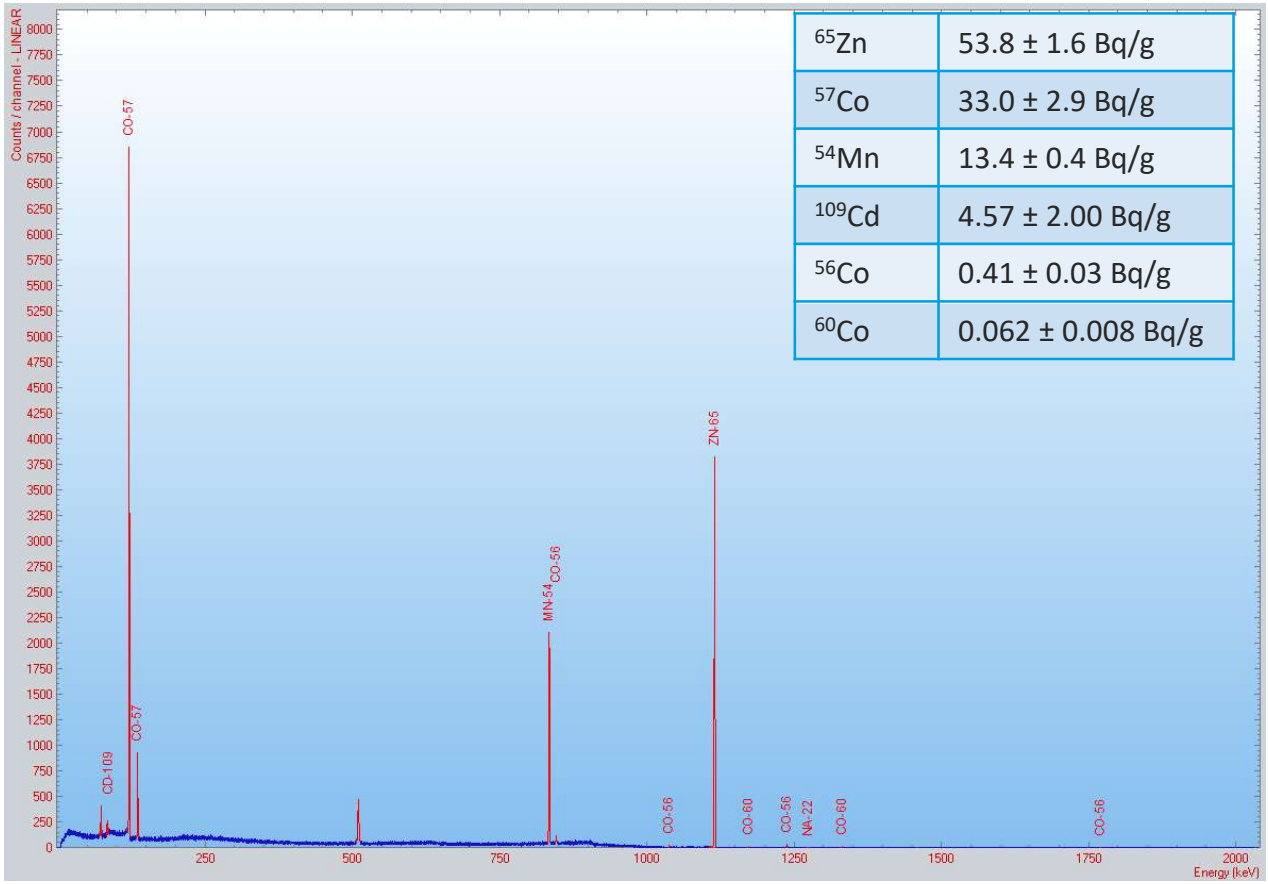
RADIOACTIVE

automess
S/N 119389
µSv/h
183
Scad Taratura 27.05.2017

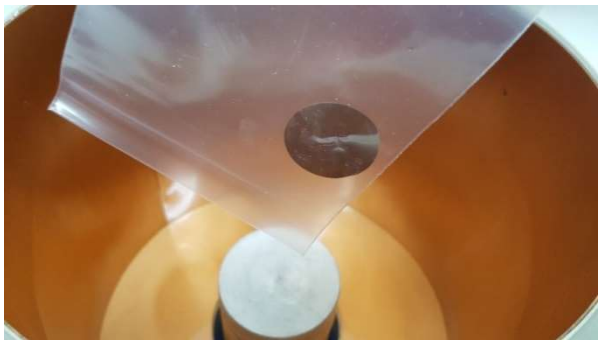

automess
S/N 119389
µSv/h
224
Scad Taratura 27.05.2017
H*(10)

Foil





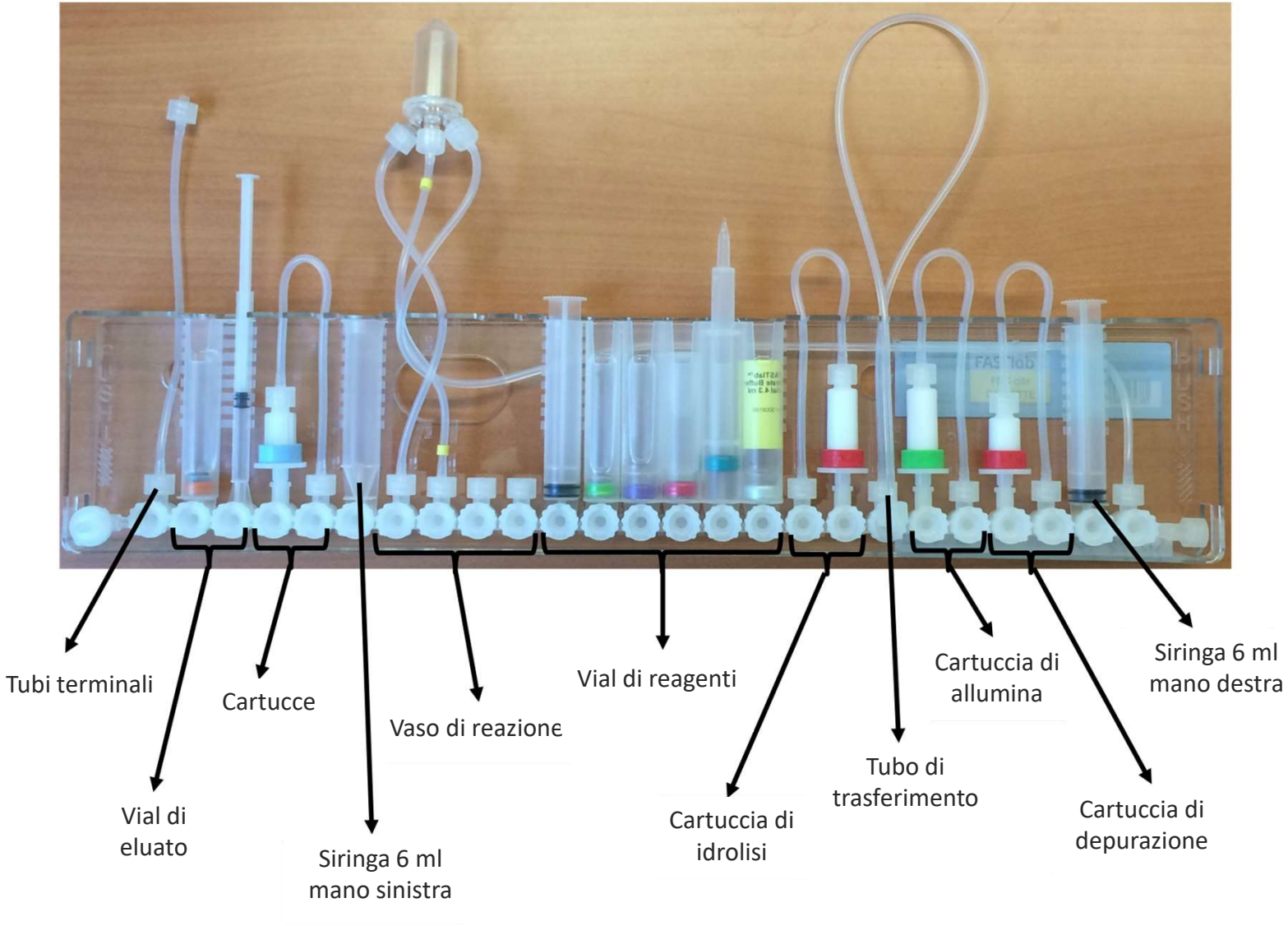
^{65}Zn	53.8 ± 1.6 Bq/g
^{57}Co	33.0 ± 2.9 Bq/g
^{54}Mn	13.4 ± 0.4 Bq/g
^{109}Cd	4.57 ± 2.00 Bq/g
^{56}Co	0.41 ± 0.03 Bq/g
^{60}Co	0.062 ± 0.008 Bq/g



Sintetizzatore FASTlab (sistema di purificazione del FDG)

- Sistema radiochimico automatizzato GE Health Care Design
  - purifica e converte il fluoruro ^{18}F prodotto esternamente in tracciante [1]
- Produzione di FDG attraverso singole cassette di tracciamento
- Ritrovamento di diverse cartucce tra i rifiuti raccolti

FDG Cassette di citrato



Rifiuti radioattivi

- Rifiuti a breve vita
  - ^{18}F e altri isotopi PET

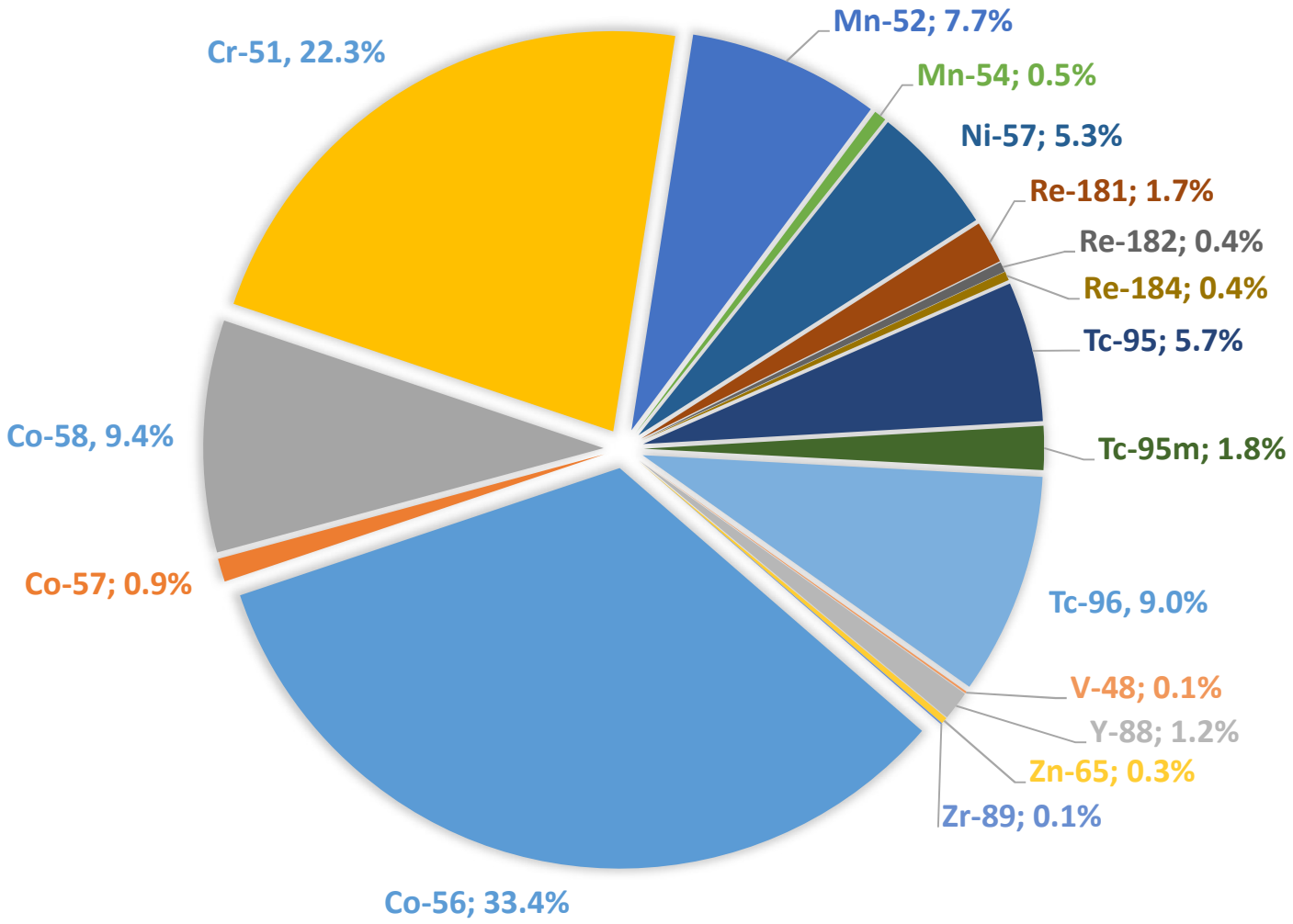
  Metodo "Decay-in-storage" (DIS)

- Rifiuti a lunga vita
  - Cassettes FDG

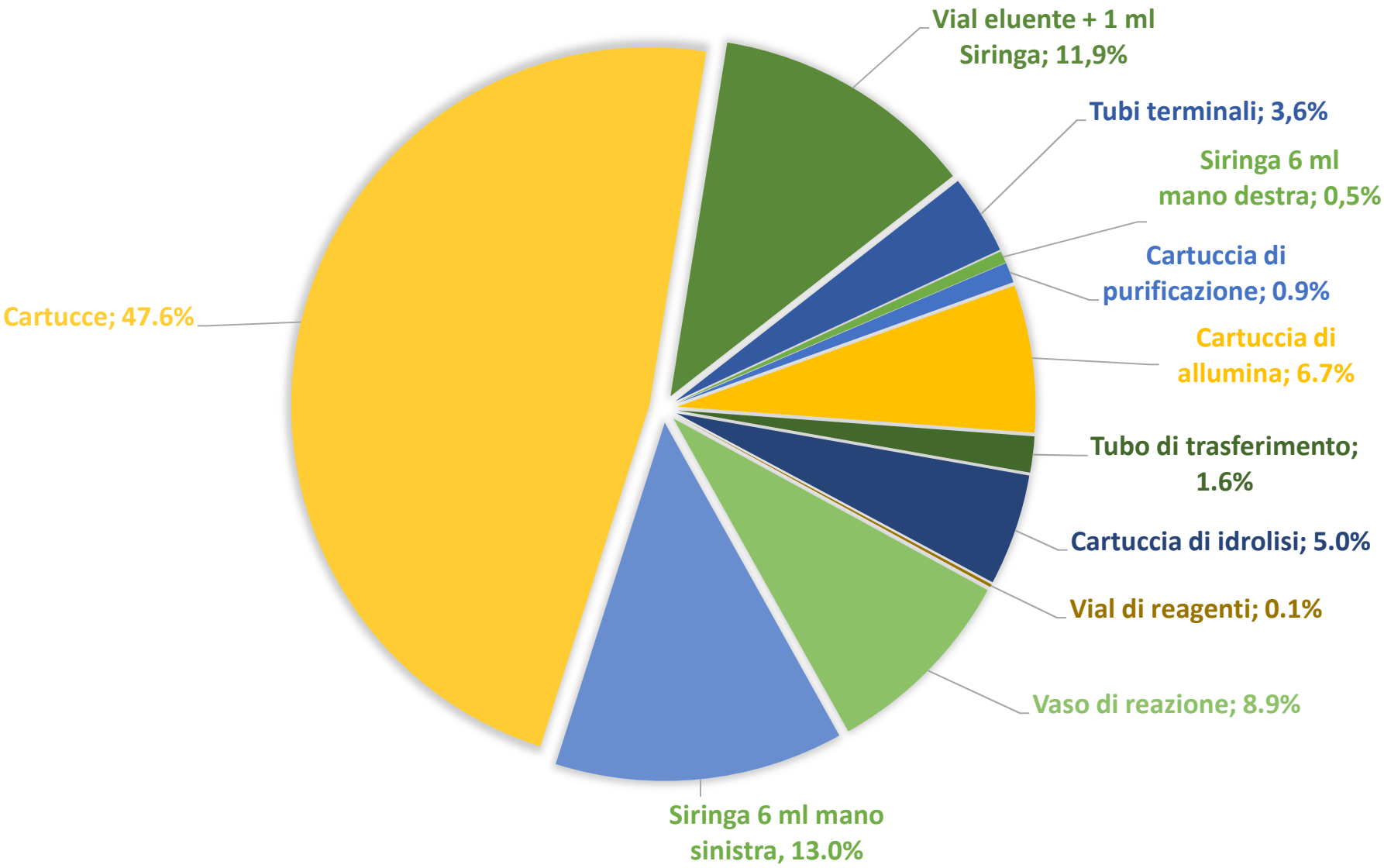
  Richiedono la caratterizzazione
    - ✓ **Isotopi, attività**

<u>In caso di conferimento indifferenziato, i rifiuti a lunga vita prevalgono nella metodologia di classificazione</u>

Composizione dell'isotopo all'irraggiamento



Attività attraverso il conteggio di campioni



Risultati

16 isotopi in 4 cassette

- 0.8 – 312 giorni di dimezzamento
- 122 – 1434 gamma keV
- 370 – 74k Bq di attività
- Molti di questi isotopi hanno un tempo di dimezzamento > 75 giorni
- Secondo la normativa italiana attualmente in vigore non sono esenti

Materiali attivati

***CUPPER GRID END OF BEAM* - 2012**

***CUPPER GRID END OF BEAM* - 2014**

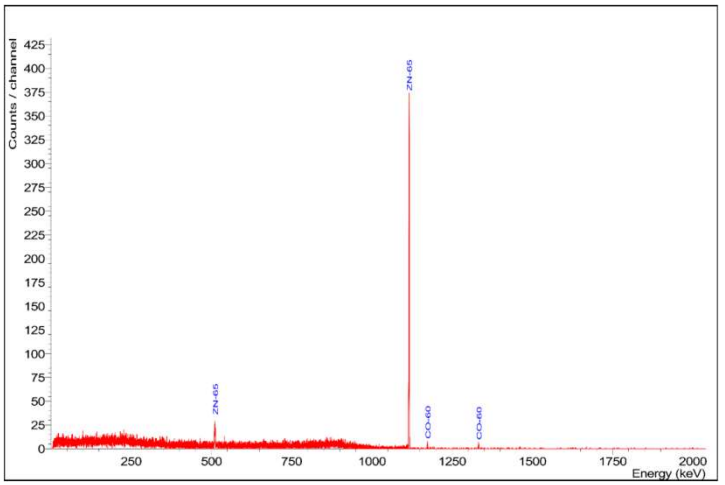
Materiali attivati

CUPPER GRID END OF BEAM - 2016

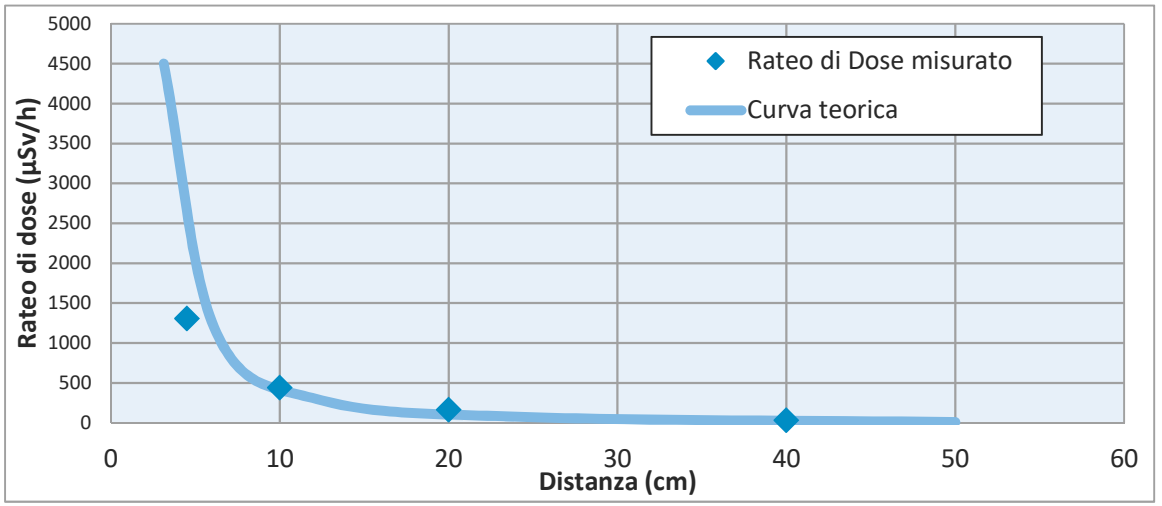
Distanza [cm]	Rateo di dose [µSv/h]
5	1308
10	441
20	167
40	32

Attività cupper grid	c.a. 45 MBq

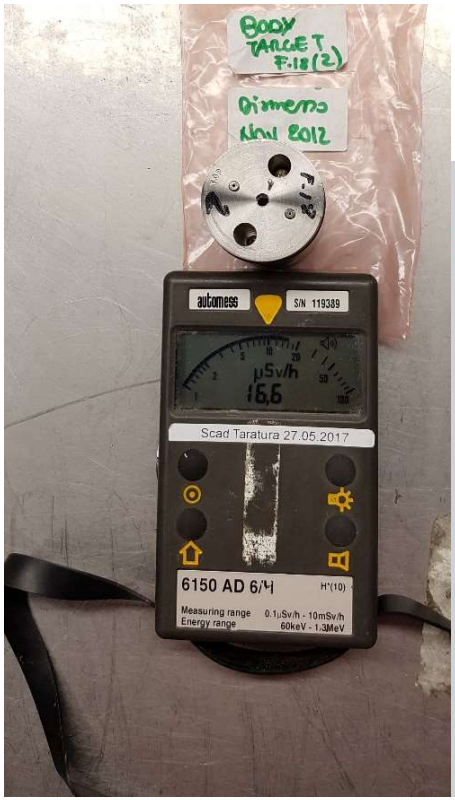
ANALISI QUALITATIVA : ZN-65 PROMINENTE



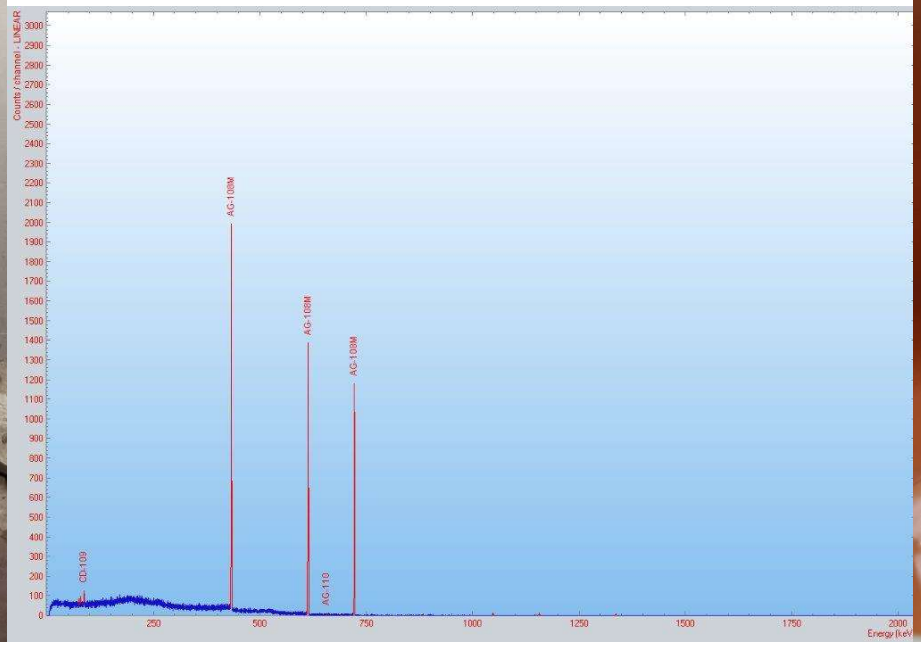
ANALISI QUANTITATIVA : COSTANTE GAMMA



Materiali attivati



BODY TARGET ^{18}F
END OF BEAM - 2012



Filtrazione dell'aria e stoccaggio dei gas attivati in serbatoi di decadimento

Controllo degli effluenti

FILTRAZIONE

- Carbone attivo
- HEPA

RACCOLTA

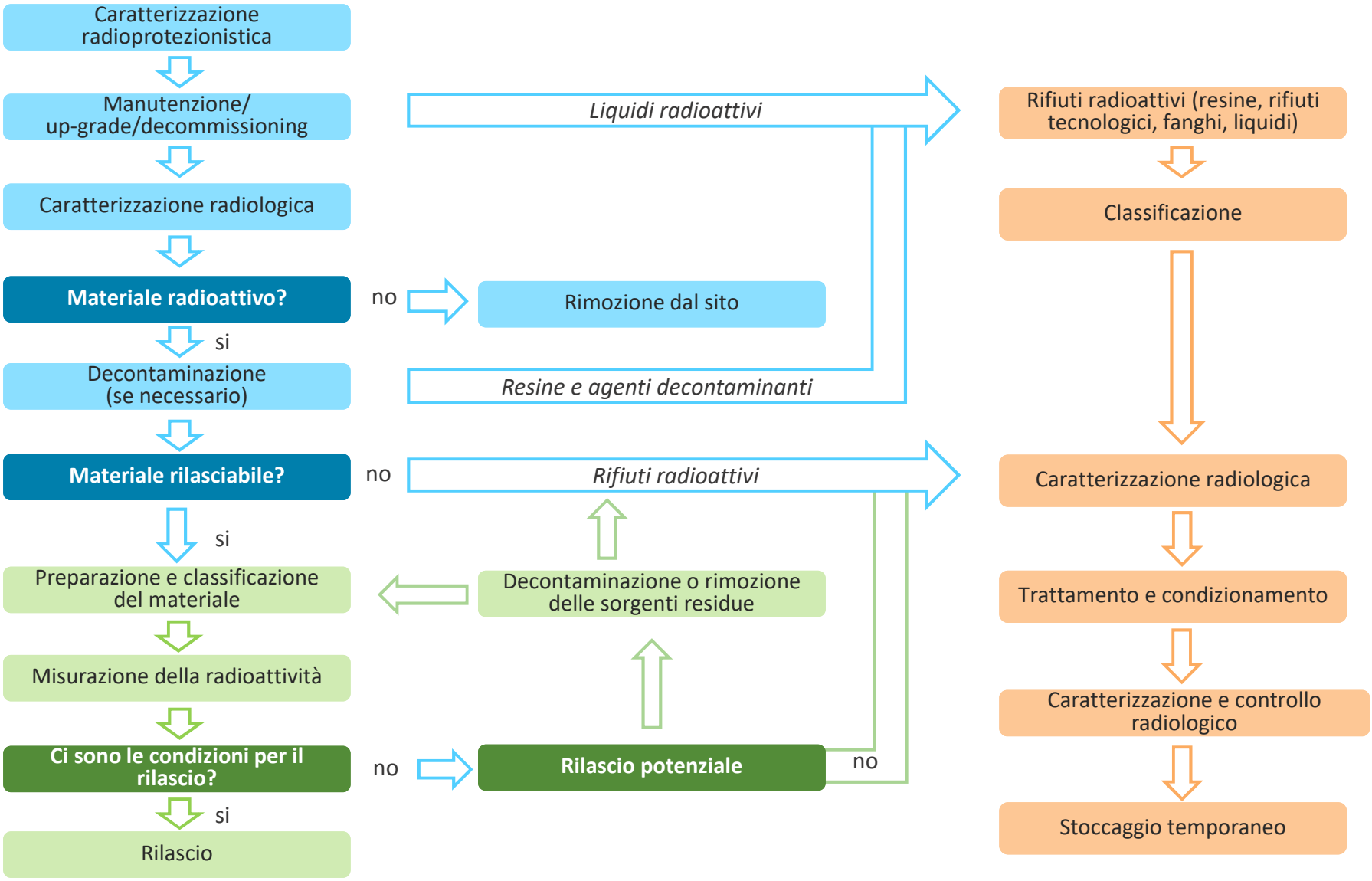
- Possibile attivazione dei serbatoi contenenti i gas attivati compressi

La gestione dei rifiuti radioattivi gassosi provenienti dalla sintesi radiofarmaceutica PET può essere integrata con il sistema di ventilazione della stanza ove installato il ciclotrone

Decommissioning

PROCEDURE DI DECOMMISSIONING DI UN CICLOCTRONE MEDICALE AUTO-SCHERMATO 11 MeV DOPO 16 ANNI DI ATTIVITA'

Processo decisionale sui materiali da definire rifiuti radioattivi



Decommissioning

R. Calandrino e altri

Dipartimento di Fisica Sanitaria IRCCS San Raffaele, Milano

Nel gennaio 2004 fu deciso lo spegnimento del Ciclotrone CTI RDS I 12 dopo più di 16 anni di attività di produzione di isotopi nel Dipartimento di Medicina Nucleare dell'"Istituto di Ricovero e Cura a Carattere Scientifico (IRCCS) San Raffaele"

La tabella mostra i **livelli di attivazione** dei vari componenti, come riportato nella letteratura delle macchine ad alta energia (Commissione Europea 1999).

Item	Weight (kg)	Expected activity class (kBq kg^{-1})
Magnet	21,020	1.0–200
Targets	10	1.0–200
Ion source	5	1.0–200
Shields	16,000	1.0–200
Vacuum chamber	100	1.0–200
Perimetric walls		0.1–0.4
Cyclotron vault floor		0.1–0.4

Decommissioning

R. Calandrino e altri

Dipartimento di Fisica Sanitaria IRCCS San Raffaele, Milano

Prima dell'inizio dello smantellamento, allo scopo di valutare il rischio per il personale coinvolto, venne adottato un codice di simulazione Monte Carlo (MC) (MC- PX, MCNP4C2), per prevedere l'attivazione dei componenti del ciclotrone.

Possibili reazioni che generano elementi radioattivi con tempi di decadimento superiori ai 30 giorni nel «extractor body and targets»

Nuclide	Reaction	Activated element	Half-life
^{65}Cu	(p,n)	^{65}Zn	244.06 (d)
^{109}Ag	(p,n)	^{109}Cd	461.00 (d)
^{181}Ta	(p,n)	^{181}W	121.20 (d)

Decommissioning

R. Calandrino e altri

Dipartimento di Fisica Sanitaria IRCCS San Raffaele, Milano

In generale, è stato raggiunta una buona concordanza tra dati simulati e dati misurati.

Un programma di calcolo appropriato, come i sopracitati codici Monte Carlo MCNPX e MCNP4C2, può essere di grande aiuto nella previsione dell'attivazione generata dal fascio diretto dei protoni e dalla reazione nucleare dei neutroni secondari con i componenti dell'acceleratore.

CONCLUSIONI GENERALI

Il decommissioning di un ciclotrone auto-schermato di 11 MeV, dopo 16 anni di attività e un lungo periodo di stoccaggio, non comporta alcun rischio per il personale coinvolto nello smantellamento

Decommissioning

R. Calandrino e altri

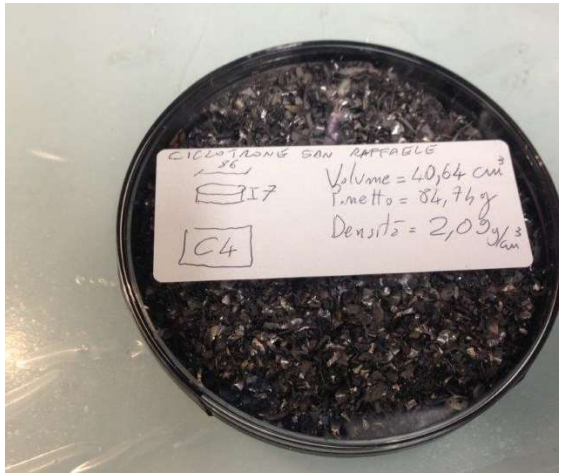
Dipartimento di Fisica Sanitaria IRCCS San Raffaele, Milano

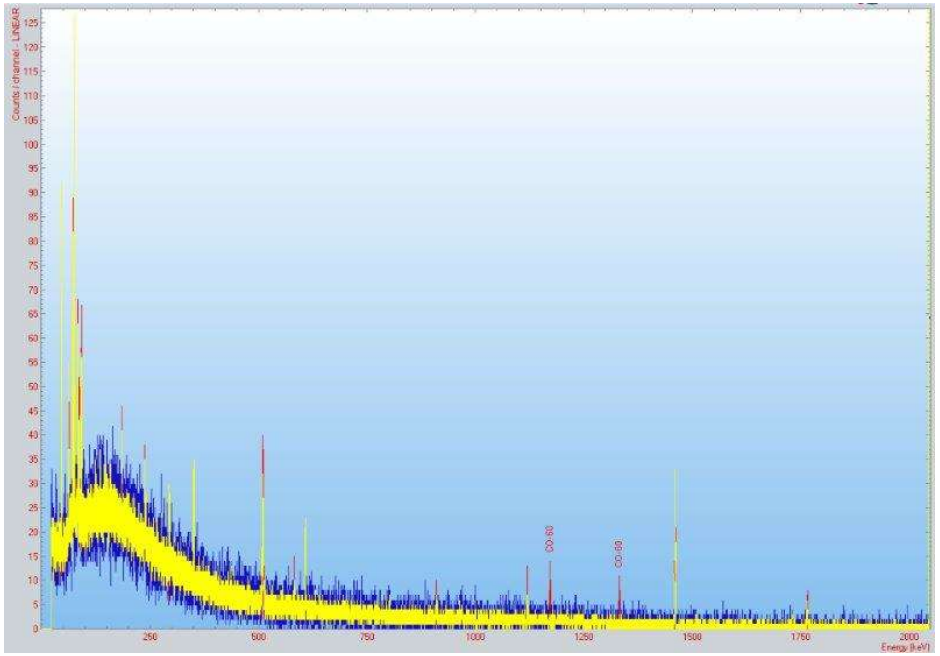
Su commissione dell'IRCCS San Raffaele di Milano, nel 2016 CAMPOVERDE ha avviato l'analisi delle parti attualmente detenute presso l'Istituto, allo scopo di verificare se a 13 anni dallo spegnimento i livelli di radioattività ancora presenti ne permettono il rilascio secondo i livelli applicabili di clearance.

R. Calandrino e altri

Dipartimento di Fisica Sanitaria IRCCS San Raffaele, Milano

CAMPIONI CONTENENTI FRAMMENTI DI FERRO PRODOTTI DALLA TRAPANATURA





Radionuclide	Concentrazione (Bq/g)	Incertezza (Bq/g)	MAR (Bq/g)
^{60}Co	3.85E-02	1.98E-03	3.42E-04

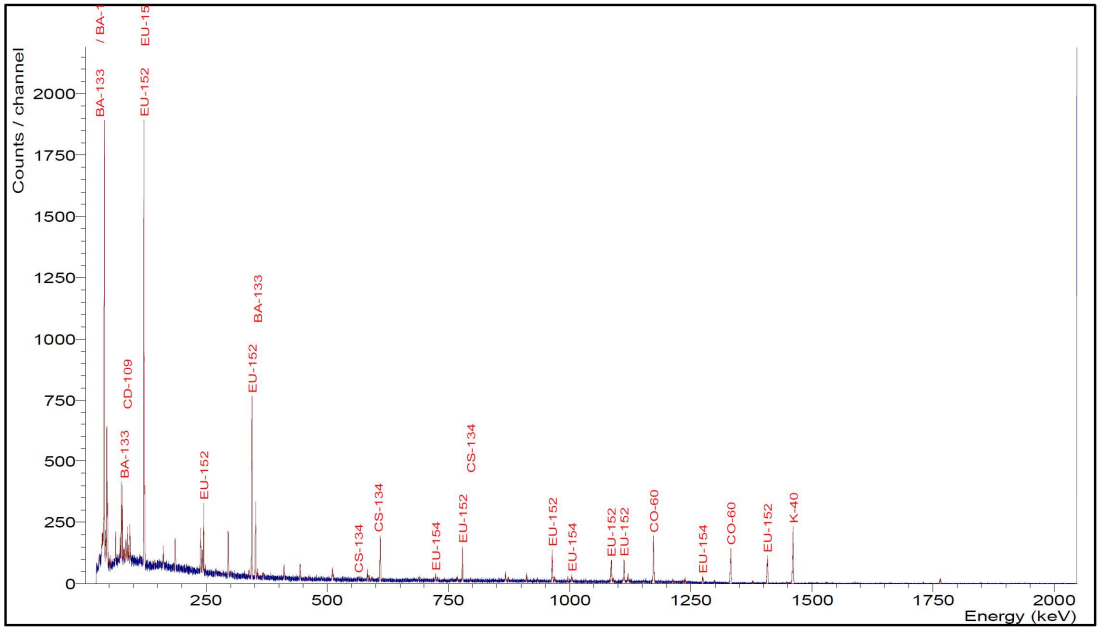
Decommissioning

Prof. Massimo Oddone

Dipartimento di Chimica Univerità di Pavia

CAMPIONI CONTENENTI CALCESTRUZZO

PRODOTTI DALLA TRAPANATURA

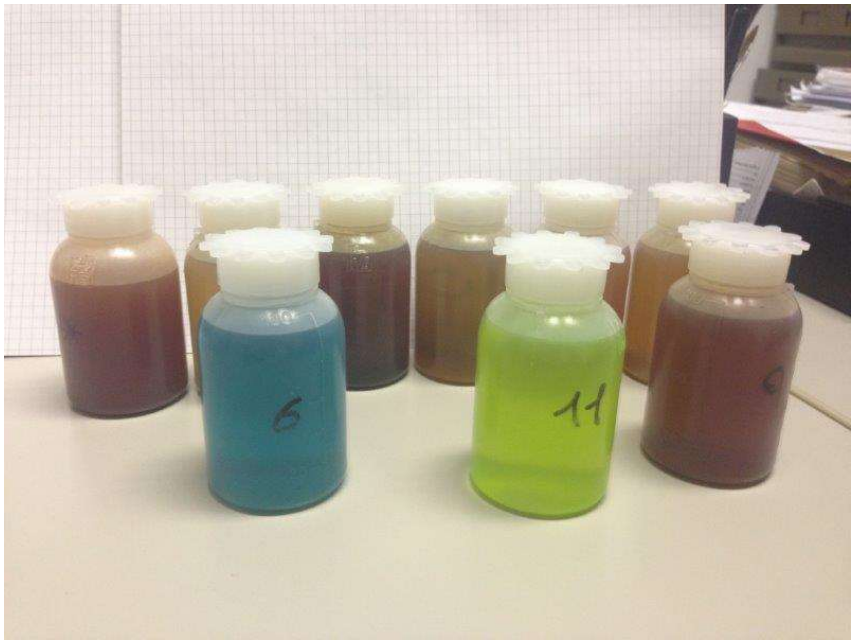


Radionuclide	Concentrazione (Bq/g)	Incertezza(Bq/g)	MAR (Bq/g)
^{60}Co	1.97E-02	1.00E-03	5.52E-04
^{152}Eu	7,03E-02	4,75E-03	3,55E-04
^{154}Eu	8,07E-03	6,30E-03	4,76E-04
^{134}Cs	3,57E-04	1.60E-04	2,52E-04

Decommissioning

Prof. Massimo Oddone

Dipartimento di Chimica Univerità di Pavia



In un Becker da 400 ml un'aliquota di campione viene attaccata con 10 ml di HNO_3 14M, ad eccezione dell'alluminio per il quale è ottimale utilizzare HCL 12M.

Con l'aggiunta di acqua distillata, tutti i campioni vengono portati ad un volume finale pari a 100 ml.

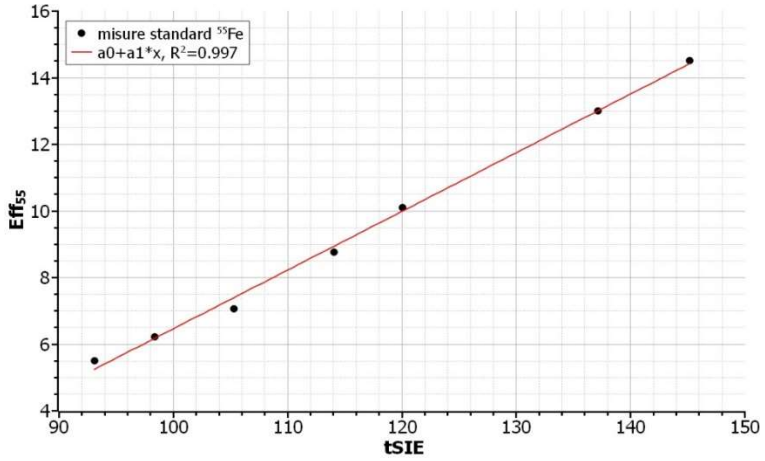
La separazione del ferro avviene utilizzando una resina di tipo TRU (Eichrom), mentre il nickel non viene trattenuto e rimane in soluzione. L'eluato viene estratto dalla resina con HNO_3 3M e viene prodotta una vial da 20 ml contenente il ferro.

Il nickel è separato utilizzando una resina NI (Eichrom). L'eluato viene estratto ccon una soluzione di HNO_3 3M e raccolto in una vial 20 ml contenente il nickel.

Decommissioning

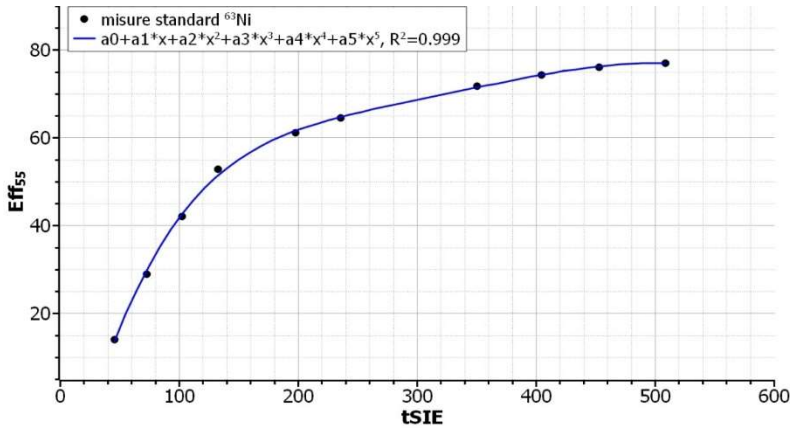
Prof. Massimo Oddone

Dipartimento di Chimica Univerità di Pavia

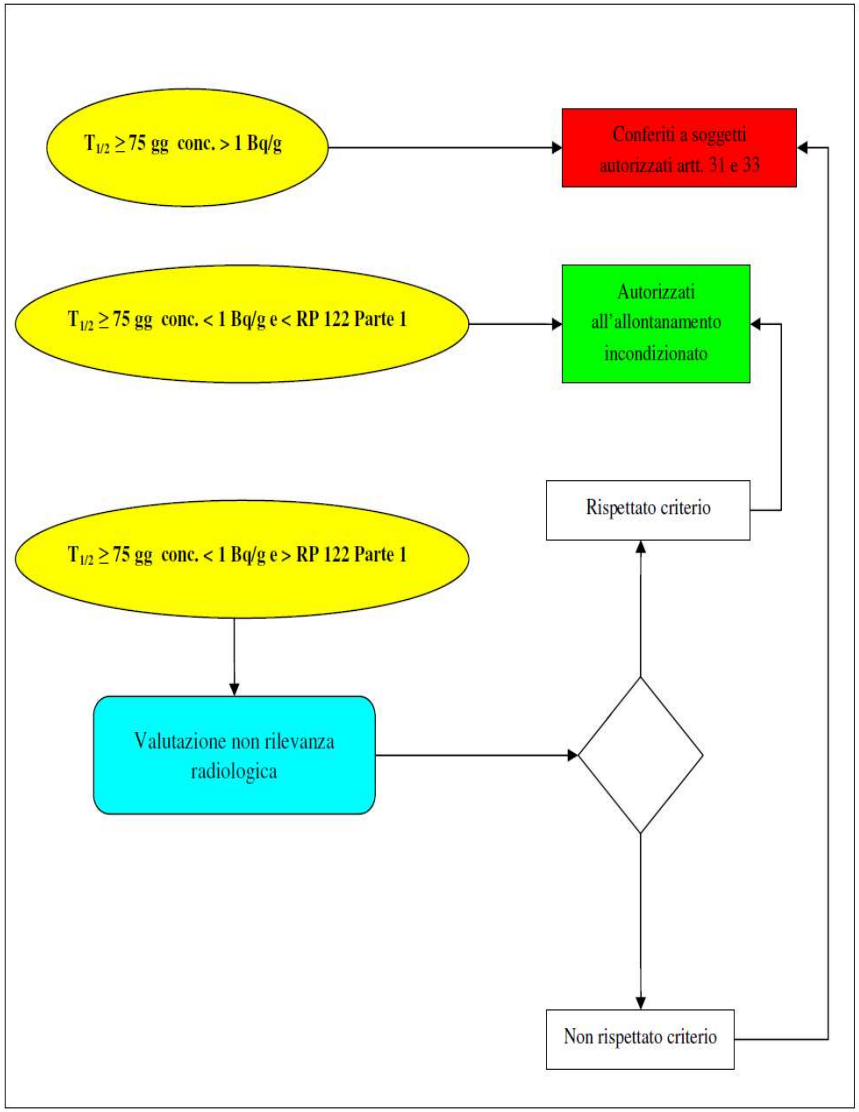


Isotopo	ID Campione	Concentrazione [Bq/kg]	Isotopo	ID Campione	Concentrazione [Bq/kg]
^{55}Fe MAR=83 Bq/kg	C-1	<MAR	^{63}Ni MAR=15 Bq/kg	C-1	<MAR
	C-4	<MAR		C-4	<MAR
	C-5	<MAR		C-5	59,7 ± 2,1
	C-6	<MAR		C-6	42,9 ± 1,4
	C-8	<MAR		C-8	22,5 ± 5,8
	C-9	<MAR		C-9	81,4 ± 1,6
	C-10	<MAR		C-10	57,0 ± 2,2
	C-11	<MAR		C-11	46,9 ± 1,3

CURVA DI QUENCHING



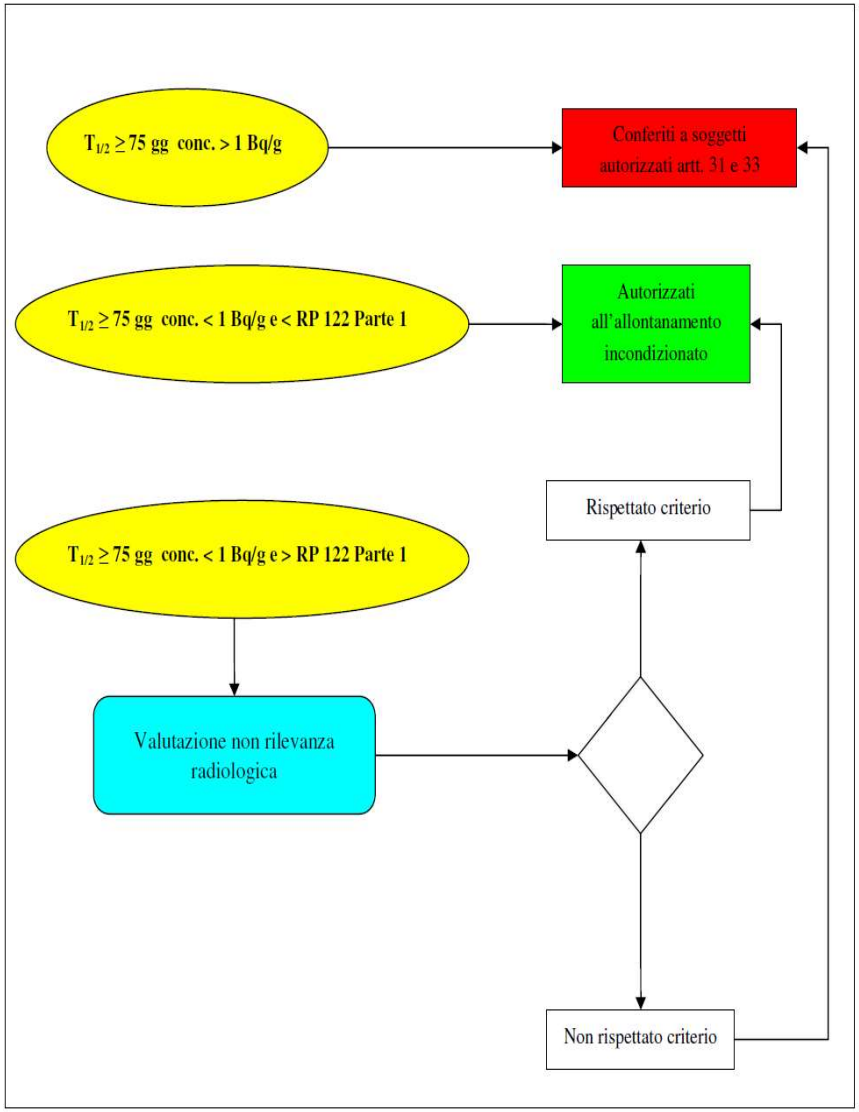
Scenari possibili per l'allontanamento dei rifiuti o materiali radioattivi - 1/2



1) I rifiuti o materiali radioattivi con $T_{1/2} \geq 75$ gg e in concentrazioni superiori a 1 Bq/g devono essere conferiti ad un soggetto in possesso delle autorizzazioni alla raccolta e deposito degli stessi, ai sensi degli artt. 31 e 33 D.Lgs 230/95 e s.m.i.; in tal caso l'esercente deve comunque ottemperare agli obblighi di registrazione e scarico di cui all'art. 22, comma 3, del decreto.

2) I rifiuti radioattivi con $T_{1/2} \geq 75$ gg e in concentrazioni inferiori a 1 Bq/g ed inferiori ai valori riportati nella RP 122 parte 1, possono essere conferiti ad installazioni o ambienti cui non si applichino i disposti del decreto; in tal caso lo smaltimento è disciplinato come segue:
   - se la pratica è soggetta alla sola comunicazione preventiva di cui all'art. 22, lo smaltimento deve avvenire ai sensi dell'art. 30 (autorizzazione);
   - se la pratica è soggetta a regime autorizzativo ai sensi dell'art. 27, il relativo nulla osta contiene anche le prescrizioni relative ai rifiuti radioattivi prodotti e le conseguenti modalità di allontanamento (All. IX p.to 5.3 lett. C, prescrizioni tecniche relative allo smaltimento di materie radioattive nell'ambiente, nel rispetto dei criteri stabiliti con i decreti di cui all'art. 1 comma 2 attualmente in attesa di emanazione).

Scenari possibili per l'allontanamento dei rifiuti o materiali radioattivi - 2/2



3) Per i rifiuti o materiali radioattivi con $T_{1/2}$>75 gg e in concentrazioni inferiori a 1 Bq/g, ma superiori ai valori riportati nella RP 122 parte 1, deve essere predisposta una valutazione di non rilevanza radiologica. Nel caso sia rispettato tale criterio i rifiuti possono essere allontanati come descritto al precedente punto 2; nel caso non sia rispettato il criterio di non rilevanza radiologica i rifiuti devono essere allontanati come indicato al punto 1.

4) I rifiuti o materiali radioattivi con $T_{1/2}$<75 gg e in concentrazioni inferiori a 1 Bq/g possono essere smaltiti in ambiente, conferiti a terzi ai fini dello smaltimento o destinati al riciclo o alla riutilizzazione (art.154 D.Lgs 230/95 e s.m.i.), sempre che lo smaltimento avvenga nel rispetto delle disposizioni del D.Lgs. 152/2006 e s.m.i.

5) I rifiuti o materiali radioattivi con $T_{1/2}$<75 gg e in concentrazioni superiori a 1 Bq/g non possono essere allontanati con le modalità di cui al punto 4 sino a quando la concentrazione non è scesa al di sotto del Bq/g.
Nel frattempo la detenzione deve avvenire come prescritto dalla "**Guida tecnica 26" ENEA**. Possono comunque essere smaltiti avvalendosi di ditta autorizzata ai sensi degli artt. 31 e 33 D.Lgs 230/95 e s.m.i..

Valutazioni sulla Nuova Classificazione

<table>
<tr><th>CLASS D.M. 7_8_2015</th><th>CLASS GT n. 26</th><th>Categoria</th><th colspan="2">Condizioni e/o Concentrazioni di attività</th><th>Destinazione finale</th></tr>
<tr><td>EW</td><td rowspan="3">Prima Categoria</td><td>Esenti</td><td colspan="2">▪ Art. 154 comma 2 del D.Lgs n. 230/1995
▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-bis del D.Lgs n. 230/1995</td><td>Rispetto delle disposizioni del D.Lgs. n. 152/2006</td></tr>
<tr><td>VSLW</td><td>A vita media molto breve</td><td colspan="2">▪ $T_{1/2}$ < 100 giorni
Raggiungimento in 5 anni delle condizioni:
▪ Art. 154 comma 2 del D.Lgs n. 230/1995
▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-bis del D.Lgs n. 230/1995</td><td rowspan="2">Stoccaggio temporaneo (art.33 D.Lgs n. 230/1995) e smaltimento nel rispetto delle disposizioni del D.Lgs. n. 152/2006</td></tr>
<tr><td>VLLW</td><td>Attività molto bassa</td><td>▪ ≤ 100 Bq/g (di cui alfa ≤10 Bq/g)</td><td>Raggiungimento in T ≤10 anni della condizione:
▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-bis del D.Lgs n. 230/1995</td></tr>
<tr><td>LLW</td><td rowspan="3">Seconda Categoria</td><td>Bassa attività</td><td colspan="2">▪ Radionuclidi a vita breve ≤ 5 MBq/g
▪ Ni59-Ni63 ≤ 40 kBq/g
▪ Radionuclidi a lunga vita ≤ 400 Bq/g</td><td rowspan="2">Impianti di smaltimento superficiali, o a piccola profondità, con barriere ingegneristiche (Deposito Nazionale D.Lgs n. 31/2010)</td></tr>
<tr><td>ILW</td><td rowspan="2">Media attività</td><td>▪ Radionuclidi a vita breve ≤ 5 MBq/g
▪ Radionuclidi a lunga vita >400 Bq/g
▪ Ni59-Ni63 > 40 kBq/g
▪ No produzione di calore</td><td>Radionuclidi alfa emettitori ≤400 Bq/g e beta-gamma emettitori in concentrazioni tali da rispettare gli obiettivi di radioprotezione stabiliti per l'impianto di smaltimento superficiale.</td></tr>
<tr><td>HLW</td><td>Terza Categoria</td><td>Radionuclidi in concentrazioni tali da non rispettare gli obiettivi di radioprotezione stabiliti per l'impianto di smaltimento superficiale.</td><td>Impianto di immagazzinamento temporaneo del Deposito Nazionale (D.Lgs n.31/2010) in attesa di smaltimento in formazione geologica</td></tr>
<tr><td></td><td></td><td>Alta attività</td><td colspan="2">Produzione di calore o di elevate concentrazioni di radionuclidi a lunga vita, o di entrambe tali caratteristiche.</td><td></td></tr>
</table>

Valutazioni sulla Nuova Classificazione

CLASS D.M. 7_8_2015	Condizioni e/o Concentrazioni di attività	
EW	▪ Art. 154 comma 2 del D.Lgs n. 230/1995 ▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-*bis* del D.Lgs n. 230/1995	
VSLW	▪ $T_{1/2}$ < 100 giorni Raggiungimento in 5 anni delle condizioni: ▪ Art. 154 comma 2 del D.Lgs n. 230/1995 ▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-*bis* del D.Lgs n. 230/1995	
VLLW	▪ ≤ 100 Bq/g (di cui alfa ≤10 Bq/g)	Raggiungimento in T ≤10 anni della condizione: ▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-bis del D.Lgs n. 230/1995
		Non raggiungimento in T ≤10 anni della condizione: ▪ Art. 30 o art. 154 comma 3-bis del D.Lgs n. 230/1995
LLW	▪ Radionuclidi a vita breve ≤ 5 MBq/g ▪ Ni59-Ni63 ≤ 40 kBq/g ▪ Radionuclidi a lunga vita ≤ 400 Bq/g	
ILW	▪ Radionuclidi a vita breve ≤ 5 MBq/g ▪ Radionuclidi a lunga vita >400 Bq/g ▪ Ni59-Ni63 > 40 kBq/g ▪ No produzione di calore	Radionuclidi alfa emettitori ≤400 Bq/g e beta-gamma emettitori in concentrazioni tali da rispettare gli obiettivi di radioprotezione stabiliti per l'impianto di smaltimento superficiale.
		Radionuclidi in concentrazioni tali da non rispettare gli obiettivi di radioprotezione stabiliti per l'impianto di smaltimento superficiale.
HLW	Produzione di calore o di elevate concentrazioni di radionuclidi a lunga vita, o di entrambe tali caratteristiche.	

Molte parti dei ciclotroni medicali potranno essere smaltite tramite fusione dopo alcuni anni di stoccaggio in depositi autorizzati ex art. 33

Avviati al Deposito Nazionale i target ed alcuni componenti posti nelle vicinanze dell'estrazione ed alcune parti delle schermature

CAMPOVERDE

Grazie per l’attenzione

www.campoverde-group.com