



**ANALYSIS AND MEASUREMENT OF OCCUPATIONAL  
EXPOSURE TO NATURALLY OCCURRING  
RADIOACTIVE MATERIALS**

***A Thesis Submitted  
to  
Department of Physics  
Faculty of Science, Ain Shams University  
For  
The Degree of Ph.D. in Physics  
By***

***KHALED ABD EL-BAR AHMED SALMAN***

**B. Sc. in Physics 1991**

**M. Sc. in Physics 1999**

**Radiation Protection Department, Nuclear Research Center, Cairo**

**Supervised by**

**Prof. Dr. M. E. Abdel - Mohsen**

Professor of Nuclear Physics  
Faculty of Science,  
Ain Shams University

**Prof. Dr. M. Ahmed Gomaa**

Professor of Radiation Physics  
Atomic Energy Authority

**Prof. Dr. B. Ahmed Gad El-Rab**

Professor of Radiation Physics  
Atomic Energy Authority

**Dr. S. Mustafa Kamal**

Ass. Prof. of Radiation Physics  
Atomic Energy Authority

**Cairo, Egypt  
2005**

## ***ACKNOWLEDGMENTS***

All gratitude is due to ALLAH who guided and aided me to bring forth to light this thesis.

I would like to express my deep thanks to the family of physics Department, Faculty of Science, Ain Shams University, for their sincere help and support during this work.

- My utmost appreciation to ***Professor Dr. M. A. Gomaa***. Professor of Radiation Physics, Atomic Energy Authority, for suggesting the topic of research, his assistance to overcome all the problems that I found during research, great encouragement to get much knowledge and experience, fruitful discussion and valuable supervision of this work.
- I would like to express my deep thanks and utmost appreciation to ***Dr. M. Elmorcy Abd-Elmohsen***. Professor of Nuclear Physics, Faculty of Science, Ain Shams University. And I hope also to continue cooperation with him in the future
- I am much obliged to ***Professor Dr. Bassuny Ahmed Gad Elrab Henaish***. Professor of Radiation Physics, Atomic Energy Authority, for his supervision, giving a lot of time and attention during the theoretical part and in the preparation of the thesis to final form.
- I would like also to convey my thanks to ***Dr. Salah Mostafa Kamal*** Ass. Professor of Radiation Physics, Atomic Energy Authority,

# ***ACKNOWLEDGMENTS***

## **ABSTRACT**

One of the most important topics in recent years in the field of radiation protection is the naturally occurring radioactive materials (NORM) and technologically enhanced naturally occurring radioactive materials (TE-NORM). Both International Atomic Energy Agency and European Commission in general and oil producing countries are taking active part in it. Recently two impartial documents were issued by the IAEA, namely (Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological options for Mitigation) and (Application of the concepts of exclusion, exemption and clearance) in 2004.

NORM comprises radionuclides associated with the  $^{238}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  decay chains as well as  $^{40}\text{K}$ . These radionuclides are very long lived and have some progenies that are long lived, such as  $^{226}\text{Ra}$ , in oil industry.

Ceramic floor or wall tiles, commonly used in domestic decoration such as sitting rooms, bath rooms and kitchen, get their sanitary white appearance and guard against corrosion from zircon sand ( $\text{ZrSiO}_4$ ) added to the glaze as an emulsifier. Zircon contains some natural radionuclides whose industrial exposure should be regarded as occupational.

In the present work attention was referred to (Analysis and Measurement of occupational Exposure to Naturally Occurring Radioactive Materials) which are produced at several sites in Egypt.

U-238 and its series, and Th-232 and its series as well as K-40 are the most important radionuclides among TE-NORM. Different techniques such as (high-purity germanium HPGe, CR-39 track detectors, survey meters, thermoluminescence TLD)

dosimeters and theoretical approach were used for activity and dose estimation.

## **Part I: Petroleum Samples**

### **1- Elemental Analysis Results.**

Elemental measurements were performed by using ICP-MS device of Joel plasmaxy type. Trace elements of the samples were resolved by Neubliz technique. The data showed the presence of stable and unstable elements with low and high intensity.

### **2- Measurements by Different Instruments**

The ambient dose equivalent rate in  $\mu$  Sv/h from contaminated piles and pipes at petroleum field was measured by using gamma ray survey meter at various distances from these piles and pipes. Other measurements in laboratory by contamination monitor, in addition to relative reading by inspector and  $\gamma$ -ray survey meter were done to measure the ambient dose equivalent rate of samples taken from petroleum field

Different aluminum and lead filters were used for estimating beta-range in aluminum and effective energy for the investigated TE-NORM of oil samples respectively.

### **3- Measurements by Gamma Spectroscopy**

The average activity concentrations (Bq/kg) of the natural occurring radionuclides of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  in oil samples were estimated using gamma spectrometer.

### **4- Measurements by Track Detectors**

CR-39 track detectors were used to estimate the Track density, Exhalation rate, mass of exhalation rate and the effective radium content for TE-NORM of petroleum samples.

## **5- Measurements by TLD**

TLD-100 & TLD-700 commercial dosimeters were being used as personnel dosimetry of petroleum field workers of the petroleum industry in Egypt, during the period 1999-2003. 37 personal TL-badges were regularly distributed in addition to other badges as required for certain operations. This investigation indicated no violation of the occupational annual limit.

## **6- Estimation of Dose Rate and Annual Effective Dose**

It is found that the total absorbed dose rate arising from sludge sample was about  $3.699 \mu\text{Gy/h}$ . The total absorbed dose rates in air outdoors calculated for scales and soils samples ranged from (0.118 to  $8.788 \mu\text{Gy/h}$ ) with a mean value of  $2.54 \mu\text{Gy/h}$  and from (1.383 to  $1.667 \mu\text{Gy/h}$ ) with a mean value of  $1.525 \mu\text{Gy/h}$  respectively.

The total Annual Effective dose outdoors estimated for petroleum samples such as sludge was about 5.177 mSv and for scales and soils from (0.164 to 12.30) mSv with a mean value of 3.55 mSv and from (1.936 to 2.333) mSv with a mean value of 2.134 mSv, respectively

## **Part II: Zircon for Ceramic Industry and Consumer Product**

### **1- Measurements by Different Instruments**

Measurements in laboratory by contamination monitor, in addition to relative reading by inspector and  $\gamma$ -ray survey meter were done to measure the ambient dose equivalent rate of samples taken from ceramic industry and consumer product.

### **2- Measurement by Gamma Spectroscopy**

The average activity concentrations (Bq/kg) of the naturally occurring radionuclides of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  in zirconium and

consumer product samples were estimated by using HPGe gamma spectrometer.

### **3- Measurements by track detectors**

CR-39 track detectors were used to estimate the Track density, Exhalation rate, mass of exhalation rate and the effective radium content for NORM of zirconium and consumer product samples respectively.

### **4- Estimation of Dose Rate and Annual Effective Dose**

The total absorbed dose rates as well as the total annual effective dose exposure were estimated arising from ceramic industry and consumer products.

## **Part III: Theoretical Approach**

### **1- Man Exposure in Field**

The absorbed dose at 1m above-contaminated soils with NORM is theoretically estimated for 20 m x 20 m site. These estimations were performed by deriving several formulas for various specific mass densities of soil and different expected important radionuclides e. g.  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$ . Successful attempt was done to derive 56 numerical formulas with approximate mathematical treatment of specific dose rate at site containing pile and/or pipe of NORM. Usually they are computed by the aid of complex Monte Carlo computer codes; such as MCNP of Los Alamos, GENT of CERN and Monte Carlo of Nuclear Technology Lab., Aristotle University. Thereafter, three computer programs were constructed, tested and developed to solve those aforementioned formulas.





## الملخص العربي

إحدى أهم المواضيع في تَسَنُّاء من سَنَوَاتٍ في حقل حماية الإشعاع الطبيعيون الذين يَجِدُونَ موادَّ مُشعَّةً طبيعية وحَسَّنُوا يَجِدُونَ موادَّ مُشعَّةً تقنياً طبيعياً (معياري تي إي). كلتا الوكالة الدولية للطاقة الذرية والمفوضية الأوروبية عموماً ودول منتجة للنفط تأخذ جزءاً نشيطاً فيه. مؤخراً وثيقتان نزيهتان أصدرتا من قبل الوكالة الدولية للطاقة الذرية. يعني (مدى التلوث البيئي من قبل طبيعياً حَدَّثَ مادَّةً مُشعَّةً (معياري) وخيارات تقنية للتخفيف) وتطبيق مفاهيم الاستثناء وإستثناء وترخيص في 2004.

يَشْمَلُ المعيارُ radionuclides إرتبط بـ 238 يو و 232 انحطاط Th يُقَدَّرُ بالإضافة إلى 40 كَي. هذه radionuclides يَعيشُ لمدة طويلة جداً و عِنْدَهُ بَعْضُ السُّلالاتِ تلكَ لمدة طويلة مَعيشة، مثل 226 Ra، في صناعة النفط.

الأرضية الخزفية أو بلاط الحائط، مستعمل عموماً في الزينة المحلية مثل غرف الجلوس وحمامات ومطبخ، يَحْصَلُ على ظهورهم الأبيض الصحي ويُحاذَرُ مِنَ التَّكَلُّلِ مِنَ رَمْلِ الزَّرْقُونِ (4 ZrSiO) أَضَافَ إلى الصَّغِيرِ كَمِستحلب. يَحتوي الزَّرْقُونُ بَعْضُ radionuclides الطبيعي الذي تَعَرَّضَها الصناعي يَجِبُ أَنْ يُعْتَبَرَ مهني.

في إنتباه العمل الحالي أَشِيرَ إليه (تحليل ومقياس التَعَرَّضِ المهني لإيجاد المواد المُشعَّةَ طبيعياً) الذي أَنتَجَ في عِدَّةِ مواقع في مصر.

يو -238 وسلسلته، و 232-Th وسلسلته بالإضافة إلى كَي 40- radionuclides الأكثر أهمية بين المعيار تي إي. التقنية المختلفة مثل (نقاوة عالية germanium إتش بي جي إي، كاشفات مسار سي آر -39، أمتار مسح ، thermoluminescence تي إل دي) dosimeters ونظرة نظرية إستعمالاً لتقدير الجرعة والنشاط. .

جزء (1) عينات نفط

1 - نتائج تحليل عنصرية.

المقاييس العنصرية أَدَبَتْ بِإستعمال أي سي بي الأنسة أداة نوع جويل plasmaxy. عناصر أثر العينات حُلَّتْ بتقنية Neubliz. شوَفَتْ البياناتُ حضورَ العناصرِ الرسمية المستقرة والغير مستقرة بكثافة الإرتفاع والمستوى الواطئ.

2 - مقاييس بالآلات المختلفة

نسبة مكافئ الجرعة البيئية في Sv/h مِنَ الأكوام والأنابيب الملوثة في حقل النفط كَانَ مُقاس بإستعمال متر مسح شعاع الغاما في المسافات المُخْتَلَفَةِ مِنَ هذه الأكوام والأنابيب. المقاييس الأخرى في المختبر مِنَ قَبْلِ مراقب التلوث، بالإضافة إلى قراءة نسبية مِنَ قَبْلِ المفتش ومتر مسح الشعاع عُملاً لقياس نسبة الجرعة البيئية المكافئة للعينات أَخَذَتْ مِنَ حقل النفط

الألمنيوم المختلف والمرشحات الرئيسية إستعمالاً لتَحْمِينِ مدى البيتا في الألمنيوم والطاقة الفعالة لَتَحْرِيَا معيار تي إي مِنَ النفط يَحْتَبِرَانِ على التوالي.

3 - مقاييس بالغاما Spectroscopy

تجمعات النشاط المتوسطة (Bq / كيلو غرام) الحدّ الطبيعي radionuclides 238 يو، 232 Th و 40 كُي في عينات النفط تخمين الذي يستعمل Ge صافي جداً. غاما كاشف spectrometer.

4 - مقاييس بكاشفات المسار  
كاشفات مسار سي آر -39 كانت تُستعمل لتخمين كثافة المسار، نسبة تبخر، كتلة نسبة التبخر ومحتوى الراديوم الفعّال للمعيار تي إي من عينات النفط.

5 - مقاييس من قبل تي إل دي  
تي إل دي -100 و تي إل دي -700 تجاري dosimeters كانت مستعمل للموظفي dosimetry لعمّال حقل نفط الصناعة النفطية (النسبة الثابتة) في مصر. أثناء الفترة 1999-2003 37 شارات شخصية تي إل و زعت بانتظام بالإضافة إلى شارات أخرى كما هو مطلوب لبعض العمليات. هذا التحقيق ما أشار إلى أي إنتهاك الحدّ السنوي المهني.

6 - تقدير نسبة الجرعة والجرعة الفعّالة السنوية  
نسبة الجرعة المنعّمة الكلية بالإضافة إلى تعرّض الجرعة الفعّال السنوي الكلي خُمن منشأ عن حقل النفط خُمن.

جزء (2) zirconium للصناعة الخزفية والمنتج الإستهلاكي

1 - مقاييس بالآلات المختلفة  
مقاييس في المختبر من قبل مراقب التلوّث، بالإضافة إلى قراءة نسبية من قبل المفتش ومتر مسح الشعاع عملاً لقياس نسبة الجرعة البيئية المكافئة للعينات أخذت من الصناعة الخزفية والمنتج الإستهلاكي.

2 - مقياس بالغاما Spectroscopy  
تجمعات النشاط المتوسطة (Bq / كيلو غرام) الحدّ الطبيعي radionuclides 238 يو، 232 Th و 40 كُي في zirconium وعينات منتج إستهلاكي خُمن بإستعمال غاما إتش بي جي إي spectrometer.

3 - مقاييس بكاشفات المسار  
كاشفات مسار سي آر -39 لاستعملت تخمين كثافة المسار، نسبة تبخر، كتلة نسبة التبخر ومحتوى الراديوم الفعّال لمعيار zirconium ومنتج إستهلاكي يختبران على التوالي.

4 - تقدير نسبة الجرعة والجرعة الفعّالة السنوية  
نسبة الجرعة المنعّمة الكلية بالإضافة إلى تعرّض الجرعة الفعّال السنوي الكلي خُمن منشأ عن الصناعة الخزفية والمنتج الإستهلاكي خُمن على التوالي.

1 - نظرة نظرية  
إن الجرعة المنعّمة في 1 m فوق التراب الملوثة بالمعيار يُخمن نظرياً ل 20 m x 20 m موقع. هذه التقديرات شكّلت بقيادة سيارة عدّة صيغ للكثافات الجماعية المعيّنة المُختلفة من التربة و radionuclides مهمة متوقعة مختلفة. Ra 226، g. 232 Th، 40 كُي و Cs 137. المحاولة الناجحة عملت لقيادة 58 صيغة عديدة بالمعالجة الرياضية المتطورة التقريبية بدقّة من نسبة الجرعة المعيّنة في الموقع تحتوي كومة و/ أو إنبوب المعيار. حسب عادة بمساعدة رموز حاسوب مونتني كارلو المعقدة؛ مثل إم سي إن بي من Los Alamos، سيد سي إي آر إن

ومونتي كارلو من مختبر التقنية النووي. ، جامعة أرسطو. فيما بعد، برامج حاسوب ثلاثة بُنيت،  
إختبرَ وطوّرَ لحلّ تلك الصيغ المذكورة أعلاه.

# ABSTRACT

# *CONTENTS*

## CONTENTS

### Page

<b>Acknowledgments .....</b>	<b>]</b>
<b>Contents .....</b>	<b>]</b>
<b>List of Tables .....</b>	<b>II</b>
<b>List of Figures .....</b>	<b>VI</b>
<b>Abstract</b>	

### *Chapter (1)*

#### **Introduction and Aim of the Work**

1.1	General introduction -----	1
1.2	Definitions -----	2
1.2.1	Activity -----	2
1.2.2	Specific Activity -----	2
1.2.3	Unit of Exposure (ICRU-60) -----	3
1.2.3.1	Exposure rate -----	3
1.2.4	KERMA, K -----	4
1.2.4.1	KERMA Rate -----	4
1.2.5	Dose -----	4
1.2.5.1	Absorbed Dose. -----	5
I	Absorbed dose rate -----	5
II	Organ Absorbed Dose -----	5
1.2.5.2	The Equivalent Dose ( $H_T$ ) -----	6
1.2.5.3	Ambient Dose Equivalent -----	7
1.2.5.3	Effective Dose (E) -----	7
1.2.6	Dose Limits -----	7
1.3	Sources of Radiation Exposure -----	9
1.3.1	Natural Radioactivity -----	9
1.3.1.1	Extraterrestrial Radiation (Cosmic Radiation) -----	9
1.3.1.2	Terrestrial radionuclides -----	9
1.3.2	Man Made radiation -----	11
1.4	Exposure -----	11
1.4.1	Occupational exposure -----	11
1.4.2	Medical Exposure -----	11
1.4.3	Public Exposure -----	12
1.4.3.1	Exposures From Natural Background Radiation Sources --	12
1.4.2.2	High Levels of NORM -----	12

1.5	Exclusion, Exemption and Clearance Mechanisms for Radiation Exposure -----	14
1.5.1	Radiological Basis For Exemption -----	15
1.5.2	Exemption Levels From Safety Series -----	16
<b>Part I:</b>	<b>Oil Industry</b>	
1.6	Hazard From NORM and TE-NORM -----	17
1.6.1	Formation of (TE-NORM) -----	18
1.6.1.1	Scale in Oil Industry-----	20
	I Scale formation -----	21
	II Scale Hazards -----	22
1.6.1.2	Sludge in oil -----	23
1.7	Residues -----	26
1.7.1	Residue Management Technologies -----	26
1.8	The Radiation Protection Requirement for Handling of TE-NORM in the Petroleum Industries.-----	27
1.8.1	Classification of Working Conditions:-----	28
1.8.2	NORM Waste-----	29
1.8.3	Liquid Waste-----	30
1.8.4	Solid Waste -----	30
1.8.5	Contaminated Equipment-----	30
<b>Part II:</b>	<b>Zircon in ceramic tiles industry</b>	
1.9	Radionuclide in Ceramic and Consumer Product-----	31
1.9.1	The Radiological Limits of Color-Glazed Tiles-----	31
<b>Part III:</b>	<b>Consumer Products</b>	
1.10	Identification of Zone Location -----	33
1.11	Detection of NORM and TE-NORM -----	33
1.11.1	Detection of Radiation in site -----	33
1.11.2	Laboratory detection -----	34
1.11.2.1	Germanium Gamma-ray Detector. -----	34
1.11.2.2	Luminescence Technique -----	35
	I TL-Materials -----	35
1.11.3	Solid State Nuclear Track -----	37
1.12	General Review of Literature -----	38
1.12.1	Measurement by Gamma Spectroscopy -----	38
1.12.2	Measurement by Track Detector -----	46
1.12.3	Theoretical Study -----	47

1.13	The Aims of The Work -----	49
	<b>Chapter (2)</b>	
	<b>Physical Consideration &amp; Experimental Set-Up</b>	
2	General Introduction -----	50
2.1	Samples Collection Preparation for Gamma ray Measurement Using MCA.-----	50
Part I:	<b>Petroleum Samples</b>	
2.2	Samples Collection From Different Sites for Petroleum Industry -----	51
2.2.1	Scale and Sludge in Pipe and Piles West -----	51
2.2.2	Elemental Analysis of petroleum Samples by Using the Inductive Coupled Plasma Mass Spectrometer -----	54
2.3	Arrangements for Radiation Measurement by Contamination Monitor, and $\gamma$ - ray survey meter-----	57
2.3.1	Arrangements for Contamination Measurements-----	59
2.3.1.1	Estimation of Range of Beta Particle-----	59
2.3.1.2	Photons Attenuation Coefficients -----	60
2.4	Radiation Detection by Thermoluminescence Technique--	61
2.4.1	TLD 500 (Aluminum Oxide $Al_2O_3$ )-----	61
2.4.2	Factors Affecting TL Performance-----	63
2.4.2.1	Dose Response-----	63
2.4.2.2	Sensitivity -----	63
2.4.2.3	Fading -----	63
2.4.2.4	Energy Response -----	65
2.5	High-Purity Germanium (HPGe)-----	65
2.5.1	Gamma Spectroscopy - -----	65
2.5.2	Pulse Height Analyzer -----	66
2.5.3	Calibration of Measuring Equipment -----.	68
2.5.3.1	Calibration Sources -----	68
2.5.3.2	Energy Scale Calibration -----	69
2.5.4	Detection Efficiency -----	71
2.5.4.1	Efficiency of Hyper Pure Germanium Detector -----	72
2.5.5	The Statistical Error of Radiation Measurements-----	74
2.5.5.1	The Standard Error of Counting Rates -----	74
2.5.5.2	Errors in Spectra Evaluations	75