

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

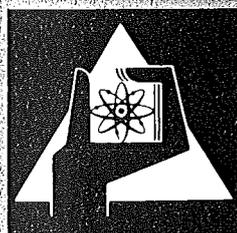
November 1976

KFK 2350

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

**Die Messung von ^{131}J in der Umgebungsluft
kerntechnischer Anlagen**

H. Schüttelkopf, H. Fessler



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
ABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT

KFK - 2350

DIE MESSUNG VON ^{131}J IN DER UMGEBUNGSLUFT
KERNTECHNISCHER ANLAGEN

H. Schüttelkopf, H. Fessler

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.,
Karlsruhe

Zusammenfassung

Eine optimale Probenahme von ^{131}J in Luft wird erreicht, wenn das Aktivkohlevolumen zwar groß genug ist, um das elementare $^{131}\text{J}_2$ zurückzuhalten, aber gleichzeitig nicht so groß ist, daß der zur Messung verwendete Ge(Li)-Detektor einen zu niedrigen Zählerwirkungsgrad hat.

Es wird als Ergebnis einer solchen Optimierung folgendes Probenahmesystem empfohlen: Zur Abtrennung der ^{131}J -Aerosole dient ein vorgeschaltetes Aerosolfilter. Dieses und zwei in Serie geschaltete 200 ml-Aktivkohlefilter werden mit $7,2 \text{ m}^3$ Luft/h gespült. Die Aktivkohle ist TEDA-imprägniert. Die γ -Spektrometrie der Aktivkohle des 1. Bettes und des Aerosolfilters erfolgt in einer 1000 min-Messung gemeinsam.

Die Rückhaltung des $^{131}\text{J}_2$ erfolgt mindestens zu 95 % am 1. Filter bei ungünstigsten Bedingungen (100 % relative Luftfeuchte). Dabei wird die Messung einer Luftkonzentration von ^{131}J möglich, welche der Hälfte der jährlich maximal erlaubten Schilddrüsendosis von Kleinkindern entspricht.

Das $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ wird zu mindestens 50 % zurückgehalten. Da $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ eine um den Faktor 100 niedrigere Radiotoxizität als $^{131}\text{J}_2$ hat und die Beurteilung des ^{131}J am Aktivkohlefilter als $^{131}\text{J}_2$ erfolgt, liegt man bei einer Dosisberechnung mit der Rückhaltung von mindestens 50 % bei jedem $\text{CH}_3^{131}\text{J}/^{131}\text{J}_2$ -Verhältnis auf der sicheren Seite.

Measurement of ^{131}I in the Environmental Air of Nuclear Facilities

Summary

^{131}I sampling in air is optimum if the activated charcoal volume is so high as to retain elementary $^{131}\text{I}_2$, although not too high so as to result in too low a counting efficiency of the Ge(Li) detector used in the measurement.

The following sampling system is recommended as a result of optimization: A preceding aerosol filter serves to separate the ^{131}I aerosols. This filter as well as two series connected 200 ml activated charcoal filters are flushed with 7.2 m^3 of air per hour. The activated charcoal has been impregnated by TEDA. Gamma spectrometry of the activated charcoal of the first bed and of the absolute filter is carried out simultaneously within a 1000 min measurement.

Under most adverse conditions at least 95% of ^{131}I are retained at the first filter (100% relative air humidity). This allows measurement of the concentration of ^{131}I in air, which corresponds to half the value of the maximum permissible thyroid dose for infants.

At least 50% of $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ are retained. Since the radiotoxicity of $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ is lower by at least the factor 100 than that of $^{131}\text{I}_2$ and ^{131}I at the activated charcoal filter is evaluated as $^{131}\text{I}_2$, a dose calculation based on a retention of at least 50% means that one is on the safe side for each $\text{CH}_3^{131}\text{I}/^{131}\text{I}_2$ ratio.

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
1. Einleitung	1
2. Die maximal zulässige Luftkonzentration von ^{131}J	2
3. Die Berechnung der mittleren Luftkonzentration aus der adsorbierten ^{131}J -Aktivität	4
4. Die Berechnung der Nachweisgrenze des Ge(Li)-Detektors	6
5. Die Berechnung des optimalen Adsorbervolumens	7
6. Die Abhängigkeit des Probendurchflusses vom Adsorbervolumen und dem geforderten Abscheidegrad	8
7. Die Abhängigkeit des Zählerwirkungsgrades vom Adsorbervolumen	10
8. Die Bestimmung der Untergrundrate R_u	10
9. Die Berechnung der optimalen Adsorbervolumina für verschiedene Arbeitsbedingungen	12
10. Die Messung anderer Jodaktivitäten	13
11. Die gleichzeitige Messung der Aktivkohle und des Aerosolfilters	14
12. Die Rückhaltung von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ unter den beschriebenen Bedingungen der Rückhaltung von elementarem ^{131}J	15
13. Literatur	16

1. Einleitung

In der *Umwelt* Nr. 35 vom 10.10.1974 wurden Richtlinien für Maßnahmen zur Überwachung der Umgebung von Kernkraftwerken mit leichtwasser-gekühlten Reaktoren veröffentlicht [1]. Unter dem Punkt "Routinemeßprogramm" wird für die Überwachung von ^{131}J in der Umgebungsluft die kontinuierliche Sammlung von Radiojod auf einer Aktivkohlepatrone an zwei Meßstationen im Hauptbeaufschlagungsgebiet der Abluftfahne entsprechend der mittleren, lokalen Windrichtungsverteilung vorgeschlagen. Eine 14tägliche Probenahme wird empfohlen.

Außer dieser Messung von gasförmigem Jod, wird zur γ -Spektrometrie der Aerosole, und damit letztlich zur Messung der Aerosolkonzentration von ^{131}J , eine 14tägliche Probenahme aber nur eine vierteljährliche γ -spektrometrische Messung vorgeschlagen. Da zur Zeit die Verteilung des aus Reaktoren emittierten ^{131}J zwischen Aerosolen und gasförmigem Jod nicht genügend bekannt ist, verstehen die Verfasser diese Empfehlung dahingehend, daß gleichzeitig mit dem gasförmigen Jod auf der Aktivkohlepatrone die Radiojod-Aerosole mit einem vorgeschalteten Aerosolfilter gesammelt und gemessen werden sollen.

Bei der praktischen Durchführung der Probenahme und der Messung können grundsätzlich folgende Fehler gemacht werden: Entweder die Probenahme erfolgt mit einem zu kleinen Verhältnis von Adsorbervolumen zu Durchfluß; dann wird das Radiojod nicht quantitativ zurückgehalten und es werden zu niedrige Luftkonzentrationen gemessen. Die zweite Fehlermöglichkeit besteht darin, daß das Verhältnis Adsorbervolumen zu Durchfluß zu groß ist und wegen der Größe des Adsorbervolumens die Zählausbeute am Ge(Li)-Detektor sehr niedrig wird; die gerade noch messbaren Luftkonzentrationen von ^{131}J liegen dann evtl. wesentlich über dem Wert, der strahlenschutztechnisch von Interesse ist.

In dem oben zitierten Bericht werden ergänzende Meßvorschriften zu den Richtlinien angekündigt. Der folgende Artikel versteht sich als ein Beitrag zu diesen Meßvorschriften. In ihm wird eine Methode der Luftprobenahme und Messung von ^{131}J beschrieben, in der

das Verhältnis Adsorber zu Probendurchfluß vom Standpunkt des Abscheidegrades und des Wirkungsgrades eines Ge(Li)-Detektors optimiert wurde.

2. Die maximal zulässige Luftkonzentration von ^{131}J

Die Schilddrüsenbelastung durch Inhalation von ^{131}J durch die Bevölkerung der Umgebung einer kerntechnischen Anlage ist für alle Altersgruppen vernachlässigbar klein verglichen mit der u.U. möglichen Belastung durch die Ingestion von Milch. Daher muß sich eine sinnvolle Messung der Luftkonzentration von ^{131}J an der durch die über den Weide-Kuh-Milch-Pfad verursachte Dosisbelastung orientieren. Für die kritische Bevölkerungsgruppe - die Kleinkinder unter einem Jahr - sind maximal 90 mrem/a zulässig. Mit den in [2] empfohlenen Dosisfaktoren für elementares $^{131}\text{J}_2$, $g_{\text{J}_2} = 880\,000 \frac{\text{rem}\cdot\text{m}^3}{\text{s}\cdot\text{Ci}}$, für ^{131}J -Aerosole, $g_{\text{Ae}} = 88\,000 \frac{\text{rem}\cdot\text{m}^3}{\text{s}\cdot\text{Ci}}$, und für organisch gebundenes ^{131}J , $g_{\text{org}} = 8\,800 \frac{\text{rem}\cdot\text{m}^3}{\text{s}\cdot\text{Ci}}$, errechnet man die Luftkonzentration, welche die maximal erlaubte Schilddrüsendosis verursacht, wie folgt:

$$D = g_{\text{J}_2} \cdot C_{\text{J}_2} \cdot t_I + g_{\text{Ae}} \cdot C_{\text{Ae}} \cdot t_I + g_{\text{org}} \cdot C_{\text{org}} \cdot t_I \quad (1)$$

D	Maximal zulässige Schilddrüsendosis für Kleinkinder in rem
t_I	Zeitdauer der Ingestion in s
$g_{\text{J}_2}, g_{\text{Ae}}, g_{\text{org}}$	Dosisfaktoren in $\frac{\text{rem}\cdot\text{m}^3}{\text{s}\cdot\text{Ci}}$ (^{131}J in verschiedenen chemischen Formen)
$C_{\text{J}_2}, C_{\text{Ae}}, C_{\text{org}}$	Aktivitätskonzentrationen von ^{131}J in der Umgebungsluft in Ci/m^3 (^{131}J in verschiedenen chemischen Formen)

$$C_L = C_{J_2} + \frac{C_{Ae}}{10} + \frac{C_{org}}{100} = \frac{D}{g_{J_2} \cdot t_I} \quad (2)$$

C_L ist hier eine nach der unterschiedlichen Radiotoxizität der ^{131}J -Komponenten gewichtete Luftkonzentration. Die Wichtungsfaktoren $\frac{1}{10}$ und $\frac{1}{100}$ basieren auf den relativ zum elementaren Jod niedrigeren Depositionsgeschwindigkeiten von Aerosolen und organisch gebundenem Jod. Die Zahl 100 als Verhältnis der Depositionsgeschwindigkeiten von elementarem Jod und organischen Jodverbindungen ist sehr niedrig; mit Faktoren von 100 bis zu 1000 für dieses Verhältnis, welche in der Literatur beschrieben werden [3], wird der Term mit C_{org} erst von Bedeutung, wenn 99 % des ^{131}J als organisch gebundenes Radiojod vorliegen. Dann werden, mit 1 % elementarem Jod, 50 % der Schilddrüsendosis durch organisch gebundenes ^{131}J verursacht. Da dieser Anteil von organisch gebundenem ^{131}J am Gesamtjod mehr als unwahrscheinlich ist, darf der dritte Term in (2) vernachlässigt werden.

$$C_L = C_{J_2} + \frac{C_{Ae}}{10} \quad (3)$$

Setzt man $\frac{C_{J_2}}{C_{Ae}} = f_1$, dann gilt für (2) unter Berücksichtigung der Vernachlässigung des C_{org} -Terms:

$$C_L = C_{J_2} \left(1 + \frac{1}{f_1 \cdot 10}\right) \quad (4)$$

Da die Aerosolanteile zwischen 0,18 % und 30 % von $^{131}\text{J}_2$ im Durchschnitt liegen [4, 5], erhält f_1 den Wert zwischen 556 und 3,3 und daher wird $1 + \frac{1}{f_1 \cdot 10}$ gleich 1,00 bis 1,03. Da diese kleine Korrektur für die folgende Betrachtung bedeutungslos ist, setzt man vereinfachend für $C_L = C_{J_2}$.

Diese Luftkonzentration führt zu einer Dosis D , wenn Milch aus dem kontaminierten Bereich über die Zeit t_I aufgenommen wird. Will man mindestens den Bruchteil f_2 von D erfassen können, muß folgende Luftkonzentration von ^{131}J meßbar sein:

$$C_L = \frac{f_2 \cdot D}{g_{J_2} \cdot t_I} \quad (5)$$

Unter der Annahme, daß alles ^{131}J elementar ist, mit $f_2 = 0,1$, $D = 0,090$, $g_{J_2} = 880\ 000$ und $t_I = 1/2 a = 1,58 \cdot 10^7 \text{s}$ beträgt die mindestens noch

$$C_L = 6 \cdot 10^{-16} \frac{\text{Ci}}{\text{m}^3} \quad (6)$$

Die einer maximal erlaubten Jahresdosis entsprechende Luftkonzentration bzw. die der mindestens noch erfaßbaren Dosis entsprechende Luftkonzentration wird aus der auf dem Filtermaterial adsorbierten ^{131}J -Aktivität bzw. deren Nachweisgrenze berechnet.

3. Die Berechnung der mittleren Luftkonzentration aus der adsorbierten ^{131}J -Aktivität

Da die ^{131}J -Aerosolaktivität wegen der Geometrie der Probenahme-geräte immer empfindlicher gemessen werden kann, als die auf Aktivkohle adsorbierte ^{131}J -Aktivität wird die folgende Betrachtung nur für den adsorbierten Anteil durchgeführt.

Bei der Berechnung der Luftkonzentration von ^{131}J aus der am Aktivkohlebett adsorbierten ^{131}J -Aktivität wird eine mittlere Luftkonzentration während des gesamten Probenahmezeitraumes vorausgesetzt. Bei 14täglicher Probenahme erscheint diese Voraussetzung zwar als fragwürdig, sie soll aber an dieser Stelle nicht weiter diskutiert werden. Die Änderung der Aktivität am Aktivkohlefilter mit der Zeit ergibt sich aus der Differenz der pro Zeiteinheit antransportierten ^{131}J -Aktivität und der in der gleichen Zeit zerfallenen ^{131}J -Aktivität. Es gilt

$$\frac{dA(t)}{dt} = AG \cdot C_{J_2} \cdot D_L - A(t) \cdot \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \quad (7)$$

$A(t)$	^{131}J -Aktivität am Aktivkohlefilter zur Zeit t in Ci
AG	Abscheidegrad des Adsorbers für J_2 in Anteilen
C_{J_2}	mittlere Luftkonzentration von $^{131}\text{J}_2$
D_L	Durchfluß an Probeluft in m^3/s
$t_{\frac{1}{2}}$	$8,05 \text{ d} = 6,96 \cdot 10^5 \text{ s}$ Halbwertszeit von ^{131}J

Aus dieser Differentialgleichung erhält man mit der Annahme, daß keine Vorbeladung mit ^{131}J vorliegt, den folgenden Zusammenhang zwischen der Aktivität am Filter und der mittleren Luftkonzentration von ^{131}J :

$$A(t_e) = \frac{t_{\frac{1}{2}} \cdot C_{\text{J}_2} \cdot D_L \cdot AG}{\ln 2} \left[1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \cdot t_e} \right] \quad (8)$$

t_e Probenahmedauer in s

Der größte Fehler, welcher bei Verwendung der Formel (7) bei der Beurteilung der ^{131}J -Luftkonzentration oder der ^{131}J -Aktivität am Filter gemacht werden kann, liegt bei 14tägiger Probenahme zwischen -48 % und +72 % (9). Bei anderer Probenahmedauer läßt sich die Fehleinschätzung der gesammelten Aktivität mit (9) eingrenzen:

$$\frac{\frac{\ln 2 \cdot t_e}{t_{\frac{1}{2}}}}{e^{\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \cdot t_e} - 1} A(t_e, C_{\text{J}_2} = \text{const}) \leq A(t_{e, \text{meßbar}}) \leq \frac{\frac{\ln 2 \cdot t_e}{t_{\frac{1}{2}}}}{1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \cdot t_e}} \cdot A(t_e, C_{\text{J}_2} = \text{const}) \quad (9)$$

Dabei ist $A(t_e)_{\text{real}}$ die wirkliche Aktivität, welche auf das Filter gebracht wurde, der linke Term ist die am Beaufschlagungs-ende zu messende ^{131}J -Aktivität, wenn die Adsorption der ganzen

Aktivität im ersten Augenblick der Probenahme erfolgte und der rechte Term die Aktivität, wenn die Adsorption der ganzen Aktivität im letzten Augenblick der Probenahme erfolgte.

Setzt man die Gleichung (4) in Gleichung (8) ein, dann erhält man

$$N_A = \frac{t_{\frac{1}{2}} \cdot D_L \cdot AG \cdot f_2 \cdot D}{\ln 2 \cdot g_{J_2} \cdot t_I} \cdot \left[1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \cdot t_e} \right] \text{ in Ci} \quad (10)$$

N_A stellt dabei jene Aktivität dar, die am Aktivkohleabsorber mindestens vorhanden sein muß, oder anders ausgedrückt, N_A ist die Nachweisgrenze der ^{131}J -Aktivität auf der Aktivkohle, wenn die geforderte Luftkonzentration $C_L = C_{J_2}$ von ^{131}J gerade noch meßbar sein soll. Diese Nachweisgrenze der Aktivität am Aktivkohleabsorber muß mindestens gleich der Nachweisgrenze des γ -Spektrometers mit dem Ge(Li)-Detektor sein.

4. Die Berechnung der Nachweisgrenze des Ge(Li)-Detektors

Bei der Auswertung eines γ -Spektrums nach der in Abb.1 schematisch dargestellten Methode ergibt sich für die Nettoimpulszahl I_N die Gleichung:

$$I_N = \sum_{i=b}^c I_i - \frac{m}{2n} \left[\sum_{i=a}^d I_i - \sum_{i=b}^c I_i \right] = I_B - \frac{m}{2n} I_U \quad (11)$$

I_i Impulse pro Kanal

Wendet man auf diesen Ausdruck für I_N das Fehlerfortpflanzungsgesetz an, erhält man als Fehler der Nettoimpulse σ :

$$\sigma = \pm \sqrt{I_B + \left(\frac{m}{2n}\right)^2 \cdot I_U} \quad (12)$$

Setzt man für die Nachweisgrenze den $k \cdot \sigma$ -Fehler der Nettoimpulse an, wenn die Impulse $I_B = \frac{m}{2n} I_U$ sind, dann erhält man als Nachweisgrenze für die 364 keV-Impulse des ^{131}J :

$$N_{I_N} = k \cdot \sqrt{\left[\left(\frac{m}{2n}\right) + \left(\frac{m}{2n}\right)^2\right]} \cdot I_U \quad (13)$$

Mit dem Wirkungsgrad η_{ph} , definiert als gemessene Impulse geteilt durch γ -Emissionen, der Häufigkeit der 364 keV γ -Linie des ^{131}J , $H = 0,82$, und der Meßzeit t_M in min erhält man als Nachweisgrenze der ^{131}J -Aktivität einer Probe am γ -Spektrometer:

$$N_A = \frac{k \cdot \sqrt{\left[\left(\frac{m}{2n}\right) + \left(\frac{m}{2n}\right)^2\right]} \cdot I_U \cdot 10^{-12}}{2,22 \cdot \eta_{ph} \cdot H \cdot t_M} \quad \text{in Ci} \quad (14)$$

Diese Nachweisgrenze der ^{131}J -Aktivität muß mindestens der in (10) angegebenen Nachweisgrenze gleich sein, wenn das γ -Spektrometer für die Messung der Luftkonzentration $C_L = C_{J_2}$ verwendet werden soll.

5. Die Berechnung des optimalen Adsorbervolumens

Setzt man die niedrigste noch messbare Aktivität auf dem Aktivkohlefilter aus Gleichung (10) gleich der in Gleichung (14) beschriebenen Nachweisgrenze des γ -Spektrometers erhält man:

$$\frac{t_{\frac{1}{2}} \cdot D \cdot 2,22 \cdot H}{\ln 2 \cdot g_{J_2} \cdot t_I \cdot k \cdot \sqrt{\left(\frac{m}{2n}\right) + \left(\frac{m}{2n}\right)^2} \cdot 10^{-12}} \cdot AG \cdot f_2 \cdot \sqrt{t_M} \cdot \left[1 - e^{-\frac{\ln 2}{t_{\frac{1}{2}}} \cdot t_e}\right] \cdot \frac{\eta_{ph} \cdot D_L}{\sqrt{R_u}} = 1 \quad (15)$$

R_u Untergrundrate in ipm

Diese Gleichung besteht aus 3 Termen. Der 1. Term enthält die physikalischen, gesetzlichen oder meßtechnischen Bedingungen. Der 2. Term enthält die festgelegten Probenahmefaktoren.

Das ist: der geforderte Abscheidegrad, der Bruchteil der maximal erlaubten Dosis der gerade noch erfaßbar sein soll, die Meßzeit und die Probenahmezeit. Der 3. Term besteht aus der Untergrundrate R_u , dem physikalischen Wirkungsgrad η_{ph} und dem Luftdurchfluß durch das Aktivkohlefilter D_L . Alle drei Werte sind abhängig vom Adsorbervolumen. Setzt man

für sie die Funktionen des Adsorbervolumens V_{ads} ein, kann das optimale Volumen aus (15) berechnet werden.

6. Die Abhängigkeit des Probendurchflusses vom Adsorbervolumen und dem geforderten Abscheidegrad

Die Abnahme der Konzentration von $^{131}\text{J}_2$ mit der Filterbettiefe während des Durchflusses folgt einem exponentiellen Gesetz [6]. Dieses wird vereinfacht dargestellt durch

$$C_{\text{J}_2}(x) = C_{\text{J}_2}(0) \cdot e^{-\frac{K \cdot x}{V_{lin}}} \quad (16)$$

$C_{\text{J}_2}(0), C_{\text{J}_2}(x)$	$^{131}\text{J}_2$ -Luftkonzentration in Ci/m^3 bei der Bettiefe 0 und x cm
V_{lin}	Lineare Durchflußgeschwindigkeit in cm/s
K	Konstante in s^{-1}

Mit der Anströmfläche F des Aktivkohlefilters in cm^2 erhält man

$$\begin{aligned} X \cdot F &= V_{ads}(X) \text{ in } \text{cm}^3 \\ V_{lin} \cdot F &= D_L \text{ in } \frac{\text{cm}^3}{\text{s}} \\ D_L \cdot 10^{-6} &= D_L \text{ in } \frac{\text{m}^3}{\text{s}} \end{aligned} \quad (17)$$

Mit der Bettiefe x_e des Gesamtfilters erhält man das Adsorbervolumen $V_{ads} = V_{ads}(X_e) = X_e \cdot F$. Da der Abscheidegrad des gesamten Filters sich ergibt aus

$$AG = 1 - \frac{C_{\text{J}_2}(X_e)}{C_{\text{J}_2}(0)} \quad (18)$$

gilt für den Durchfluß D_L nach (16), (17) und (18):

$$D_L = \frac{K}{10^6 \cdot \ln\left(\frac{1}{1-AG}\right)} \cdot V_{ads} \quad (19)$$

(19) wird in (15) eingesetzt. Zur unten durchgeführten Berechnung von V_{ads} ist die Kenntnis von K notwendig. Die weitgehende Unabhängigkeit der Konstanten K von der Temperatur wurde von F. Billard, et al. für den Temperaturbereich 25°C bis 70°C demonstriert [7]. Für die während der Grünfütterzeit interessierenden Temperaturen zwischen 10°C und 40°C soll dieses Ergebnis ebenfalls als gültig angesehen werden. K ist im hohen Maße abhängig von der relativen Luftfeuchte der Umgebungsluft. Die in der Literatur gefundenen Messungen der Abscheidegrade an Aktivkohlen gegenüber elementarem Jod unter Angabe des Adsorbervolumens, des Durchflusses und der relativen Luftfeuchte, wurden zur Berechnung von K nach (19) verwendet [7, 8]. Die Ergebnisse sind in Tab. 1 und in Abb. 2 wiedergegeben.

Tab. 1: Experimentelle Bedingungen für die Versuche, aus denen K berechnet wurde.

rel. Luftfeuchte in %	Bereich der lin. Luftgeschwindigkeit in cm/s	Bettiefe in cm	Temperatur in °C	Konstante K in s ⁻¹ + mittlerer Fehler des Mittelwertes/Zahl der Meßwerte und /Literaturangabe
58	30	1,5	45	86 ± 10 / 7 / [7]
60-62	30	1,5	25-70	81 ± 8 / 3 / [7]
70-76	30-40	1,5-5,0	45-70	79 ± 10 / 3 / [7, 8]
89-93	30	1,5	25-70	73 ± 5 / 3 / [7]
96	20	5,0	25	33 ± 5 / 3 / [8]
98	20	5,0	25	32 ± 1 / 13 / [8]
100	20-59	5,0	20-51	30 ± 2 / 9 / [8]

7. Die Abhängigkeit des Zählerwirkungsgrades vom Adsorbervolumen

Mit bekannter Aktivität kontaminierte Aktivkohleproben von 20, 50, 100, 200 und 500 ml Volumen wurden jeweils in 3-5 verschiedenen zylindrischen Gefäßen auf einem Ge(Li)-Detektor ausgemessen. Aus den Impulsen der 364 keV γ -Linie des ^{131}J wurde der Wirkungsgrad, definiert als gezählte Quanten zur Gesamtzahl der emittierten Quanten, berechnet. Diese Wirkungsgrade wurden als Funktion des Verhältnisses Durchmesser zu Höhe der einzelnen Aktivkohleproben in den zylindrischen Gefäßen in Abb.3 aufgetragen. Die mit den verschiedenen Probenvolumina maximal erreichbaren Wirkungsgrade in Abhängigkeit vom Durchmesser des Gefäßes wurden mit einer strichpunktierten Linie verbunden. Diese maximalen Wirkungsgrade wurden als Funktion des Probenvolumens in Abb.4 eingetragen und werden dargestellt durch die Funktion

$$\eta_{\text{ph}} = 0,190 \frac{1}{\sqrt{V_{\text{ads}}}} \quad (20)$$

(20) kann nun wie (19) in Gleichung (15) eingesetzt werden. Die Abhängigkeit der Untergrundrate vom Adsorbervolumen ist die einzige Unbekannte, die noch bestimmt werden muß, um das optimale Adsorbervolumen berechnen zu können.

8. Die Bestimmung der Untergrundrate R_u

Die Untergrundrate setzt sich zusammen aus dem Nulleffekt des γ -Spektrometers, den im Bereich der 364 keV-Linie gemessenen γ -Quanten der langlebigen Aktivität in der Aktivkohle und dem Anteil der bedingt wird, durch aus der Umgebungsluft adsorbiertes Radon.

Im Probengefäß mit maximalem Wirkungsgrad wurden 500 ml 14 Tage lang mit Umgebungsluft durchspülte Aktivkohle 1000 min gemessen; ebenso wurde dieselbe Aktivkohle nach einer Abklingzeit von ca. 4 1/2 Wochen gemessen und ein 3 500 min-Nulleffekt des γ -Spektrometers aufgenommen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb.5 dargestellt.

Da die Untergrundanteile der langlebigen aktiven Substanzen in der Aktivkohle und des Radons abhängig sind vom Zählerwirkungsgrad und damit vom Probenvolumen, setzt sich der Gesamtuntergrund als Funktion des Aktivkohlevolumens zusammen aus:

$$R_u = R_{o, Det} + (R_{o, AK, 500ml} + R_{o, Rn, 500ml}) \frac{V_{ads} \cdot \eta_{ph}(V_{ads})}{500 \cdot \eta_{ph}(500)} \quad (21)$$

R_u	Gesamte Untergrundrate in ipm
$R_{o, Det}$	Untergrundrate des Detektors in ipm
$R_{o, Rn}$	Untergrundrate bedingt durch adsorbiertes Rn in ipm
$R_{o, AK}$	Untergrundrate bedingt durch Aktivität in der Aktivkohle in ipm

Die Untergrundrate des Detektors beträgt $0,98 \pm 0,02$ ipm für sechs Kanäle und die 364 keV-Linie. Der Detektor und die 4 1/2 Wochen abgeklungene Aktivkohle bringen einen Untergrund von $1,11 \pm 0,03$ ipm und der Detektor plus Aktivkohle mit dem frisch adsorbierten Rn bringen einen Untergrund von $1,42 \pm 0,04$ ipm, wenn die 500 ml-Proben in dem Probengefäß gemessen werden, in dem der maximale Wirkungsgrad erreicht wird. Die durch die Aktivkohle und das Rn bedingten $0,44 \pm 0,05$ ipm stellen ca. 30 % der Untergrundrate bedingt durch Detektor, Aktivkohle und Rn dar. Da der Wert für

$$\frac{V_{ads} \cdot \eta_{ph}(V_{ads})}{500 \cdot \eta_{ph}(500)}$$

für den Bereich des Adsorbervolumens von 20 ml bis 500 ml die Werte 0,19 - 1,00 annimmt, liegt die tatsächliche Schwankung des Untergrundes bedingt durch Rn-kontaminierte Aktivkohleproben zwischen 1,06 und 1,42 ipm. Da dieser Wert unter der Quadratwurzel in die Rechnung eingeht, wird auf eine detaillierte Berücksichtigung der Abhängigkeit der Untergrundrate vom Adsorber-

volumen verzichtet und der höchste Wert, 1,42 ipm, der Rechnung zugrunde gelegt. In Gleichung (15) können nun die folgenden Werte eingesetzt werden:

$$\begin{array}{ll} D & = 0,090 \text{ rem} \\ H & = 0,82 \\ g_{J_2} & = 880\,000 \frac{\text{rem} \cdot \text{m}^3}{\text{s} \cdot \text{Ci}} \\ k & = 2 \\ m & = 2n \end{array} \quad \begin{array}{ll} t_{\frac{1}{2}} & = 6,96 \cdot 10^5 \text{ s} \\ t_I & = 1,58 \cdot 10^7 \text{ s} \\ R_u & = 1,42 \text{ ipm} \\ K & = 30 \text{ s}^{-1} \\ t_e & = 14 \text{ d} = 1,21 \cdot 10^6 \text{ s} \end{array} \quad (22)$$

9. Die Berechnung der optimalen Adsorbervolumina für verschiedene Arbeitsbedingungen

Setzt man die unter (22) angegebenen Zahlen und die Gleichungen (19) und (20) in (15) ein, erhält man für das optimale Adsorbervolumen

$$V_{\text{ads}} = 0,505 \cdot 10^4 \left[\frac{\ln\left(\frac{1}{1-AG}\right)}{AG \cdot f_2 \cdot \sqrt{t_M}} \right]^2 \quad (23)$$

Mit $AG = 0,90, 0,95$ und $0,99$ und $f_2 = 0,5$ und $1,0$ erhält man für V_{ads} als Funktion der Meßzeit die in Abb.6 wiedergegebenen Kurven. Für die Abscheidegrade $AG = 0,90, 0,95$ bzw. $0,99$ wurden die den Adsorbervolumina V_{ads} entsprechenden Luftdurchsätze D_L in Abb. 7 dargestellt.

Wie aus Abb.6 hervorgeht, sind für kurze Meßzeiten im Bereich von 100-200 min die benötigten Aktivkohlevolumina sehr groß. Bei Messungen von Proben über mehrere 1000 min treten häufiger Fehlmessungen als Folge von Betriebsstörungen auf, so daß es am günstigsten erscheint, die erhaltenen Aktivkohleproben in einer Messung mit ca. 1000 min Meßdauer zu verarbeiten. Will man als Nachweisgrenze diejenige Luftkonzentration messen können, welche der Hälfte der maximal erlaubten Jahresdosis von 90 mrem entspricht, muß das Filterbett ca. 200 ml betragen; der garantierte Abscheidegrad beträgt 0,95 für den ungünstigsten Fall (relative Luftfeuchte = 100 %). Diesem Filterbettvolumen und Abscheidegrad

entspricht einem Luftdurchsatz von $7,2 \text{ m}^3/\text{h}$.

Die Verfasser schlagen daher als Routinemethode der Messung von ^{131}J in der Umgebungsluft die Verwendung eines Aerosolfilters und eines Aktivkohlevolumens von 200 ml und einen Luftdurchsatz von $7,2 \text{ m}^3/\text{h}$ vor. Dabei wird unter ungünstigsten Bedingungen der Filterwirkungsgrad auf 95 % sinken. Ein zweites gleiches Aktivkohlefilterbett soll in Serie geschaltet werden. Werden auf dem ersten Filter und dem Aerosolfilter ^{131}J -Aktivitäten gemessen, soll das zweite Filter ebenfalls zur Messung gelangen. Das Probenahmegerät wird in Abb.8 dargestellt.

10. Die Messung anderer Jodaktivitäten

Die kurzlebigen Spaltjodnuklide ^{132}J , ^{133}J und ^{135}J weisen eine wesentlich geringere Radiotoxizität als ^{131}J auf. Zu ihrer Messung reicht die Empfindlichkeit des Probenahme- und Meßsystems bestenfalls für das langlebigste, ^{133}J mit $t_{1/2} = 0,87 \text{ d}$, aus. Die kurzlebigeren Nuklide treten aber einerseits weder bei der Emission aus Kernkraftwerken in wesentlichen Anteilen auf, noch haben sie für den hier betrachteten Weide-Kuh-Milch-Pfad Bedeutung.

Die langlebigen Radiojodnuklide, verglichen mit ^{131}J , sind ^{125}J , ^{126}J und ^{129}J . ^{125}J und ^{126}J werden während der Kernspaltung in untergeordnetem Maße gebildet ($^{127}\text{J} (n, 3n) \rightarrow ^{125}\text{J}$ und $^{125}\text{J} (n, \gamma) \rightarrow ^{126}\text{J}$). Als Radiojodemissionen aus Kernkraftwerken können alle drei Nuklide, als Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen ^{125}J und ^{126}J unberücksichtigt bleiben. Die Verwendung von ^{125}J zu diagnostischen und therapeutischen Zwecken in Krankenhäuser führt im allgemeinen nicht zu gasförmigen Emissionen.

Die ^{129}J -Emissionen aus Wiederaufarbeitungsanlagen müssen ähnlich überwacht werden wie die ^{131}J -Emissionen aus Kernkraftwerken. Die Radiotoxizität von ^{129}J ist ca. um den Faktor 3 höher als die des ^{131}J . ^{129}J weist nur eine γ -Energie von 0,04 MeV auf und diese hat eine Emissionshäufigkeit von 7,5 %. Eine direkte Messung von ^{129}J ist wegen der hohen Selbstabsorption dieser Strahlung ausgeschlossen. Die verwendeten 200 ml Aktivkohle stellen aber

für die chemische Aufarbeitung ein nicht zu großes Probenvolumen dar. Die nach der chemischen Abtrennung der Jodfraktion erreichbaren Nachweisgrenzen für ^{129}J durch Neutronenaktivierung oder Röntgenspektrometrie genügen allen Forderungen der Überwachung.

11. Die gleichzeitige Messung der Aktivkohle und des Aerosolfilters

Der Meßzeitaufwand für die ^{131}J -kontaminierte Aktivkohle ist sehr hoch. Da das aerosolförmige ^{131}J nach (3) nur mit 1/10 des Gewichtes von elementarem ^{131}J eingeht,

$$C_L = C_{J_2} + \frac{1}{10} C_{Ae}$$

kann eine gleichzeitige, gewichtete Messung von Aktivkohle und Aerosolfilter durch geeignete Wahl des Filterabstandes vom Detektor erreicht werden. Diese gleichzeitige Messung erscheint sinnvoll, wenn relativ niedrige Aerosolaktivitäten vorliegen und ein Zeitdruck bei der Messung für mehrere Reaktoren in einem Zentrallabor vorliegt.

Zur Bestimmung der geeigneten Anordnung wurden 200 ml Aktivkohle mit einer bekannten ^{131}J -Aktivität kontaminiert, getrocknet und sorgfältig gemischt. Mit der gleichen Aktivität wurde ein Aerosolfilter kontaminiert und wie folgt gemessen: die 200 ml Aktivkohle wurden in einem Probengefäß maximalen Wirkungsgrades am beschriebenen Ge(Li)-Detektor spektrometriert. Das kontaminierte Aerosolfilter wurde in verschiedene Abstände vom Detektor so lange verschoben, bis die zusätzlich gemessene Impulszahl genau 1/10 der von der Aktivkohle erhaltenen Impulszahl entsprach. Eine in Abb.9 wiedergegebene Meßanordnung erlaubt die gleichzeitige und entsprechend (3) gewichtete Messung des elementaren ^{131}J und der ^{131}J -Aerosole.

12. Die Rückhaltung von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ unter den beschriebenen Bedingungen der Rückhaltung von elementarem ^{131}J

Bei 99-100 % relativer Luftfeuchte, 25-50 cm/s linearer Durchflußgeschwindigkeit von 30-31°C werden in [8] verschiedene Durchlässigkeiten von 5 cm-Aktivkohlebetten für $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ angegeben. Die schlechteste Rückhaltung zeigten die in [9] angegebenen Experimente mit Norit RCX; $K_{\text{CH}_3\text{J}}$ errechnet man aus diesen Experimenten mit $7,1 \pm 0,5 \text{ s}^{-1}$.

Dies bedeutet, daß ca. 51 % des in der Probeluft vorhandenen (100 % rel. Luftfeuchte) $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ im 200 ml-Aktivkohlebett selbst bei ungünstigsten Bedingungen rückgehalten werden. Selbst unter der unwahrscheinlichen Annahme, daß die Anteile von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ zu $^{131}\text{J}_2$ sich wie 99:1 verhalten, werden durch den Verlust von 49 % $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ nur ca. 25 % der Schilddrüsenedosis, hervorgerufen durch organisches und elementares Jod, nicht erfaßt. Eine Unterscheidung von $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ und $^{131}\text{J}_2$ im 1. Filterbett ist nicht möglich. Beurteilt man alles adsorbierte Jod als $^{131}\text{J}_2$, dann werden die mindestens adsorbierten 51 % des $\text{CH}_3^{131}\text{J}$ um den Faktor 100 zu hoch eingeschätzt. Eine derartige Beurteilung der Schilddrüsenedosis liegt daher immer auf der sicheren Seite.

13. Literatur

- [1] "Richtlinien für Maßnahmen zur Überwachung der Umgebung von Kernkraftwerken mit Leichtwassergekühltem Reaktor", Umwelt, Nr. 35, 10.10.1974, S. 8-14
- [2] Notiz von Dr. Matting, BMI, Referat RS II 4-517033/2
Betr.: Sitzung des Länderausschusses für Atomkernenergie - Strahlenschutz - am 9. und 10. Dez. 1975;
hier: TOP 21 'Überarbeitung des Heftes 6'
Emissionsquellstärke von Kernkraftwerken der Schriftenreihe Kernforschung. Unveröffentlicht.
- [3] Pelletier, C.A., J.D. Zimbrick, "Kinetics of environmental radioiodine transport through the milk-food chain", Environmental Surveillance in the Vicinity of Nuclear Facilities (Edited by W.C. Reinig) Charles C. Thomas (1970)
- [4] Radioactivity Measurement at BWRs, Interim Report and Results of Independent Measurements of Radioactivity in Process Systems and Effluents at Boiling Water Reactors, May 1973, C.A. Pelletier (Science Applications Incorporated, Nuclear Environmental Service Division), 78 p.
- [5] B.H. Weiss, e.a., "Detailed Measurement of ^{131}I in Air, Vegetation and Milk around three operating Reactor Sites", NUREG-75/021, March 1975
- [6] I.E. Nakhutin, N.M. Smirnova, G.A. Laushkina, G.A. Loshakov, "Adsorption of Radioactive Iodine Vapor from Air", Atomnaya Energiya, Vol. 26, No.4, pp. 390-391, April 1969
- [7] F. Billard, J. Caron, G. Chevalier, J. van der Meersch, "The Influence of Physical Parameters on the Adsorption of Iodine 131 by Activated Charcoals", CONF-650407
- [8] R.D. Rivers, M. Pasha, W.H. Buckler, "Correlation of Radioiodine Efficiencies resulting from a standardized Test Program for Activated Carbons", 12th Air Cleaning Conference p. 445, 1972.

- [9] Adams, R.E., Ackley, R.D., Combs, Zell, Hensley, F.V.,
"Characterization, Control and Simulation of Accident-
Released Fission Products", ORNL-TM-1913, ORNL Nuclear
Safety, RD Progress Bimonthly Report for May-June 1967, p.9
- [10] Sicherheitskriterien für Kernkraftwerke
Länderausschuß für Atomkernenergie, 25.6.1974,
Herausgeber: Der Bundesminister des Inneren

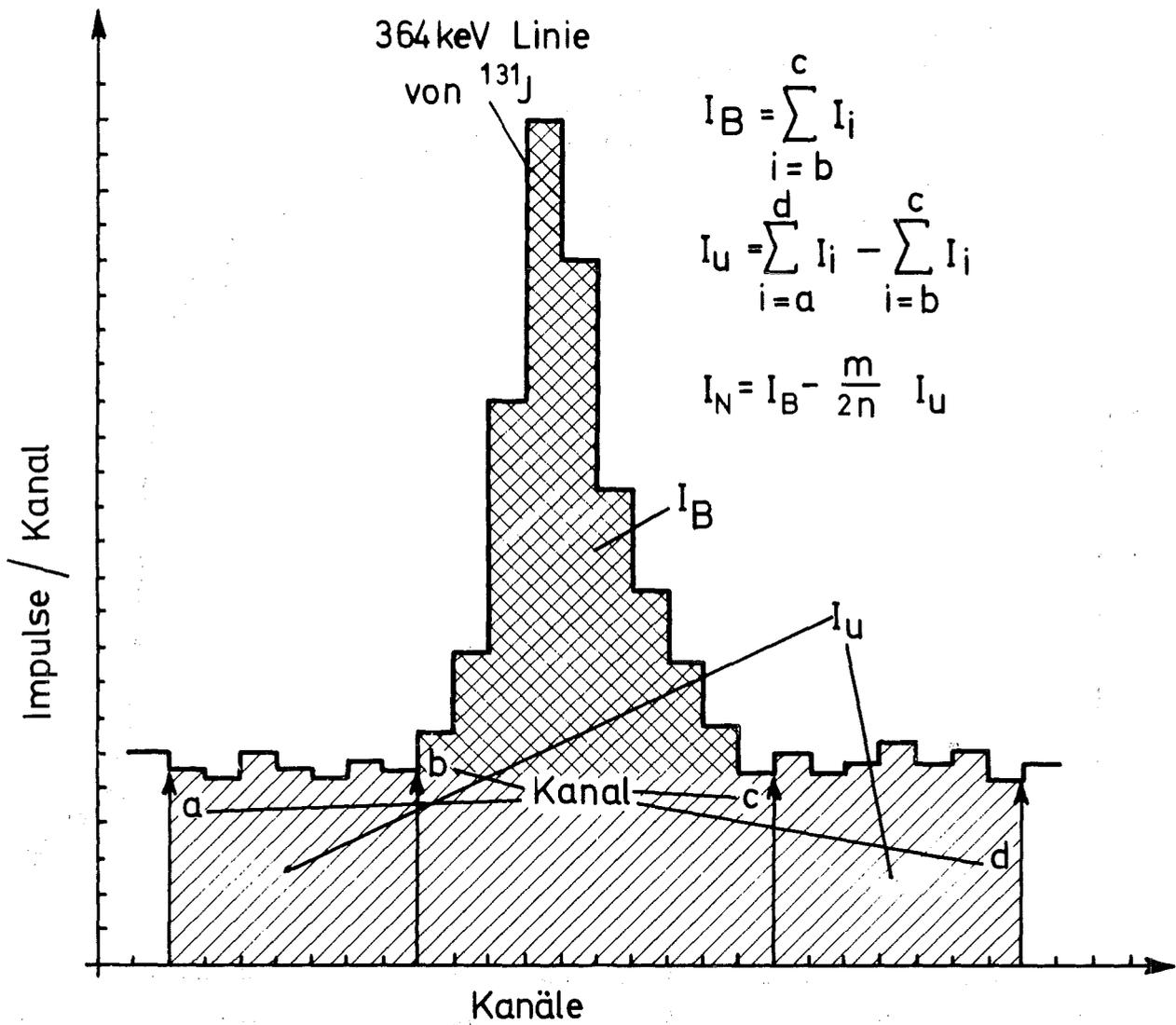


Abb.1: Schematische Darstellung der Auswertung von γ -Spektren.

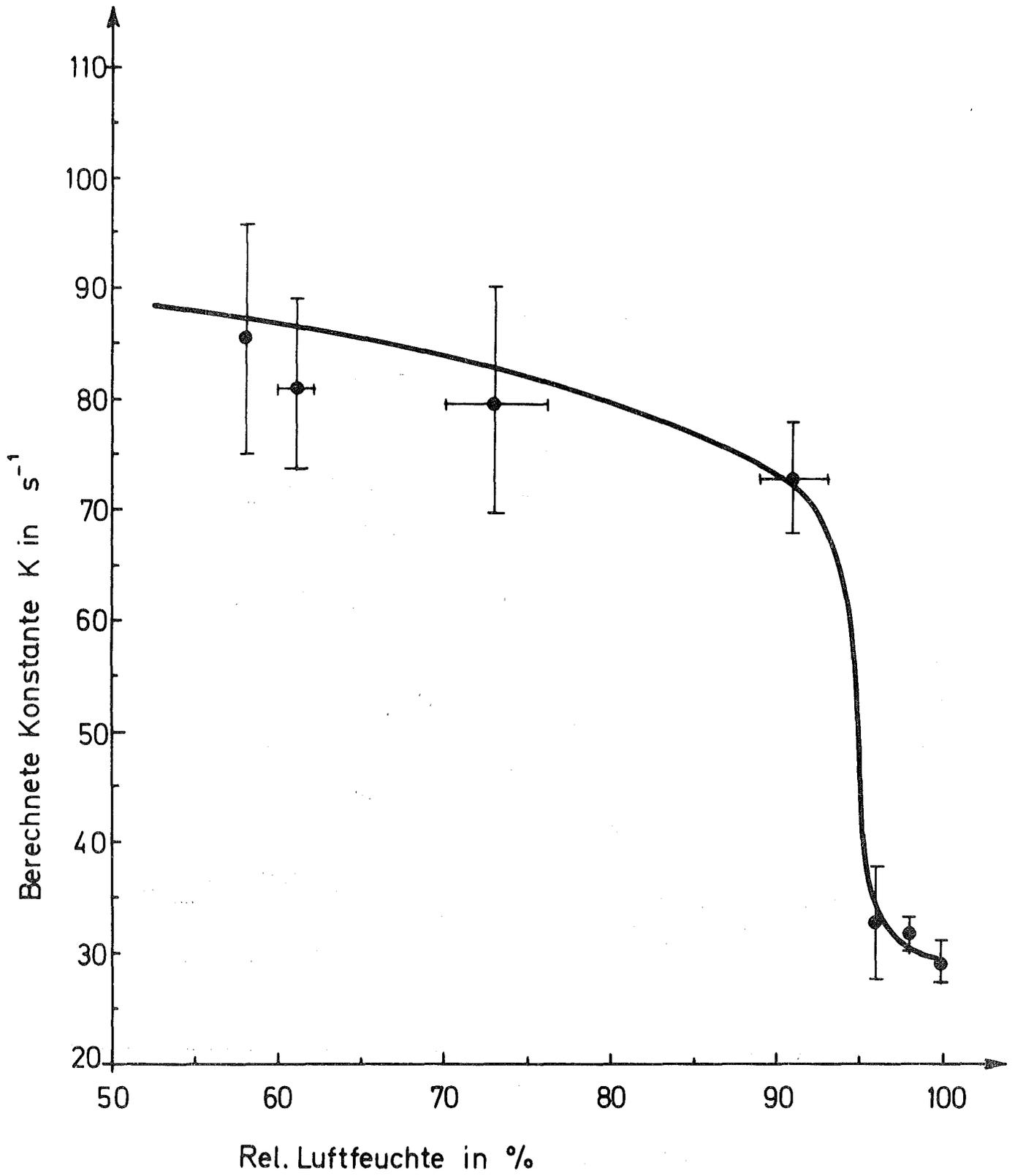


Abb.2: Die Abhängigkeit der Konstanten K von der relativen Luftfeuchte (siehe Tabelle 1) \longleftarrow Bereich der relativen Luftfeuchte.
 [Mittleren Fehler der Mittelwerte von K

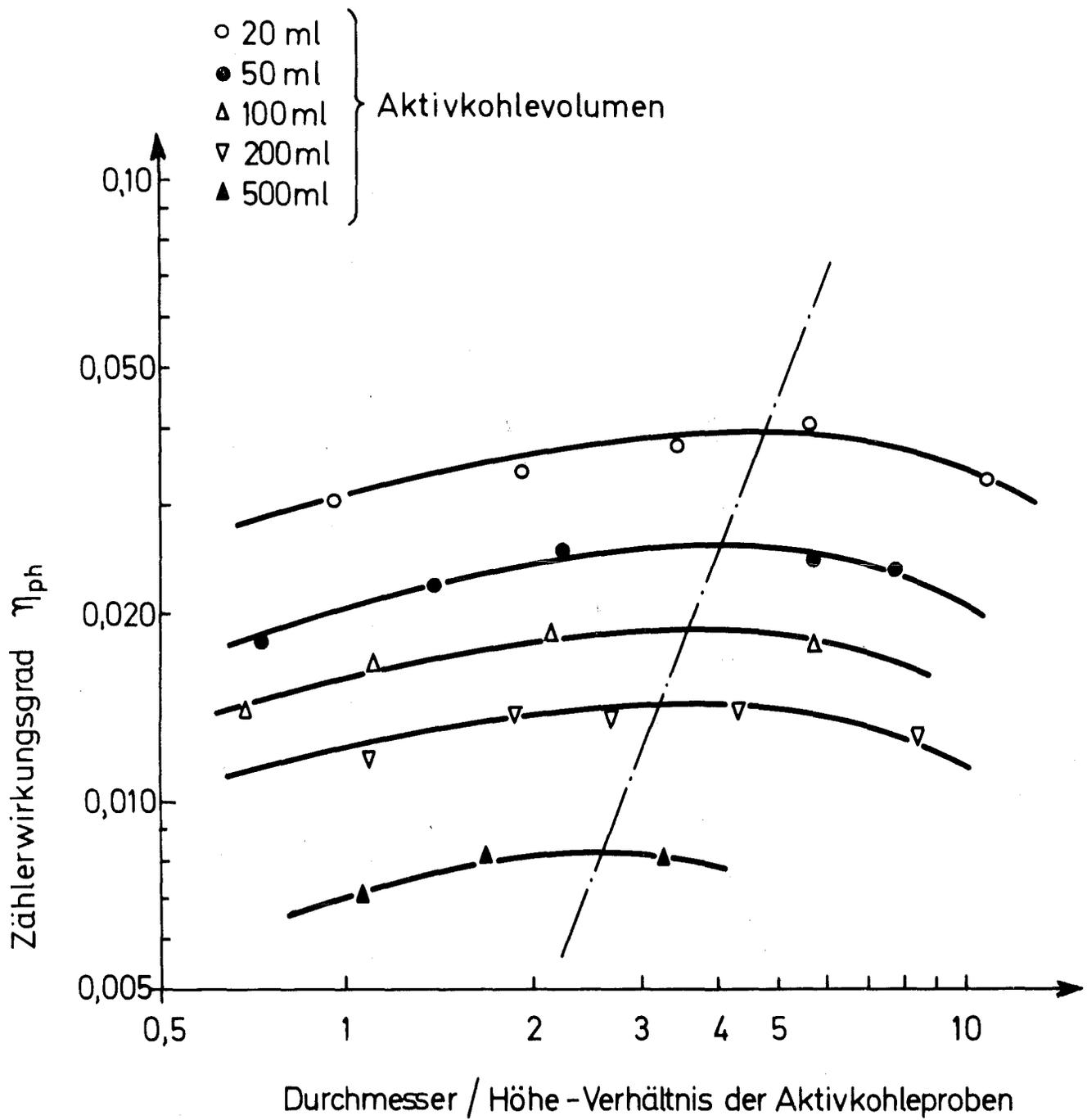


Abb.3: Abhängigkeit des Zählerwirkungsgrades η_{ph} des Ge(Li)-Detektors vom Durchmesser / Höhe - Verhältnis von 20, 50, 100, 200 und 500 ml - Aktivkohleproben in zylindrischen Probenbehältern

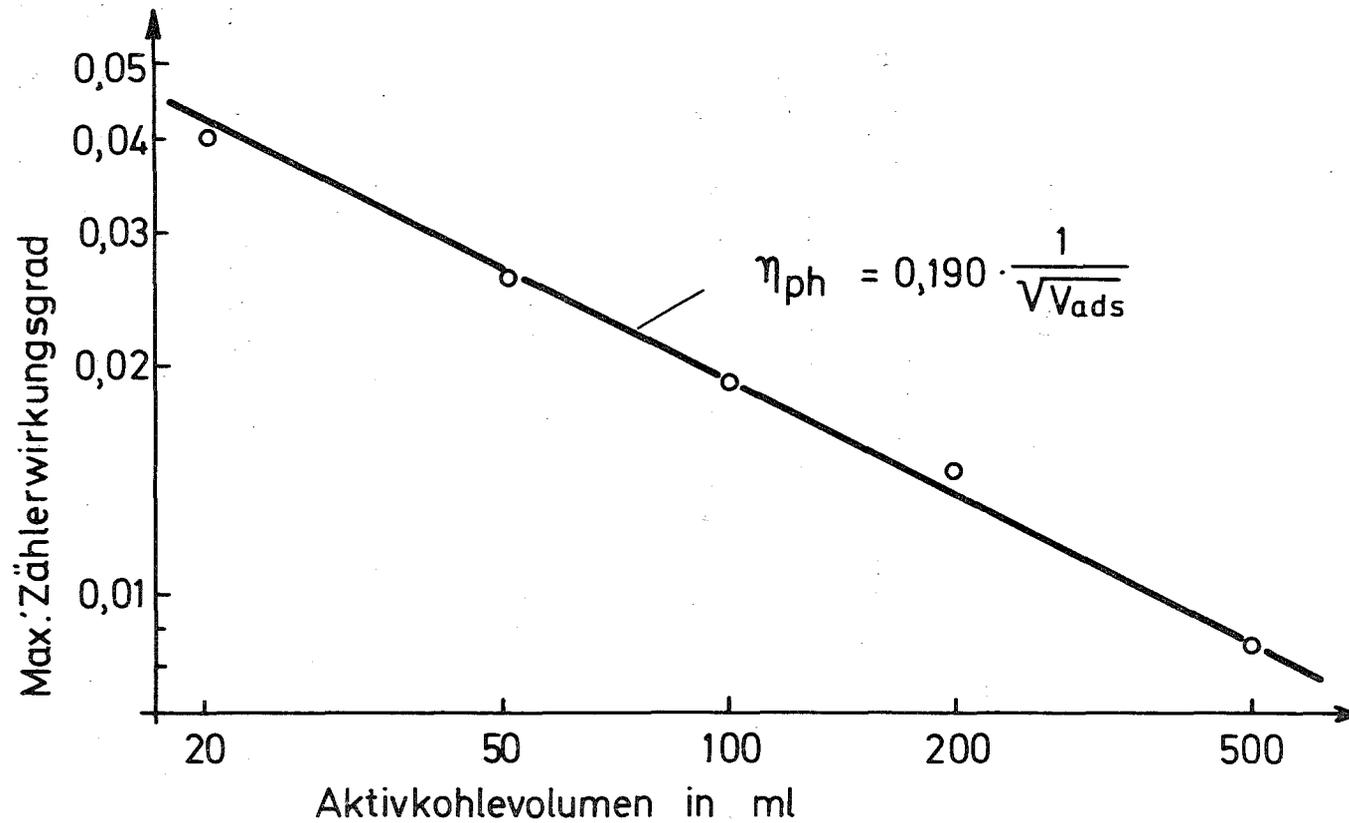


Abb.4: Abhängigkeit des maximalen Zählerwirkungsgrades vom Aktivkohlevolumen

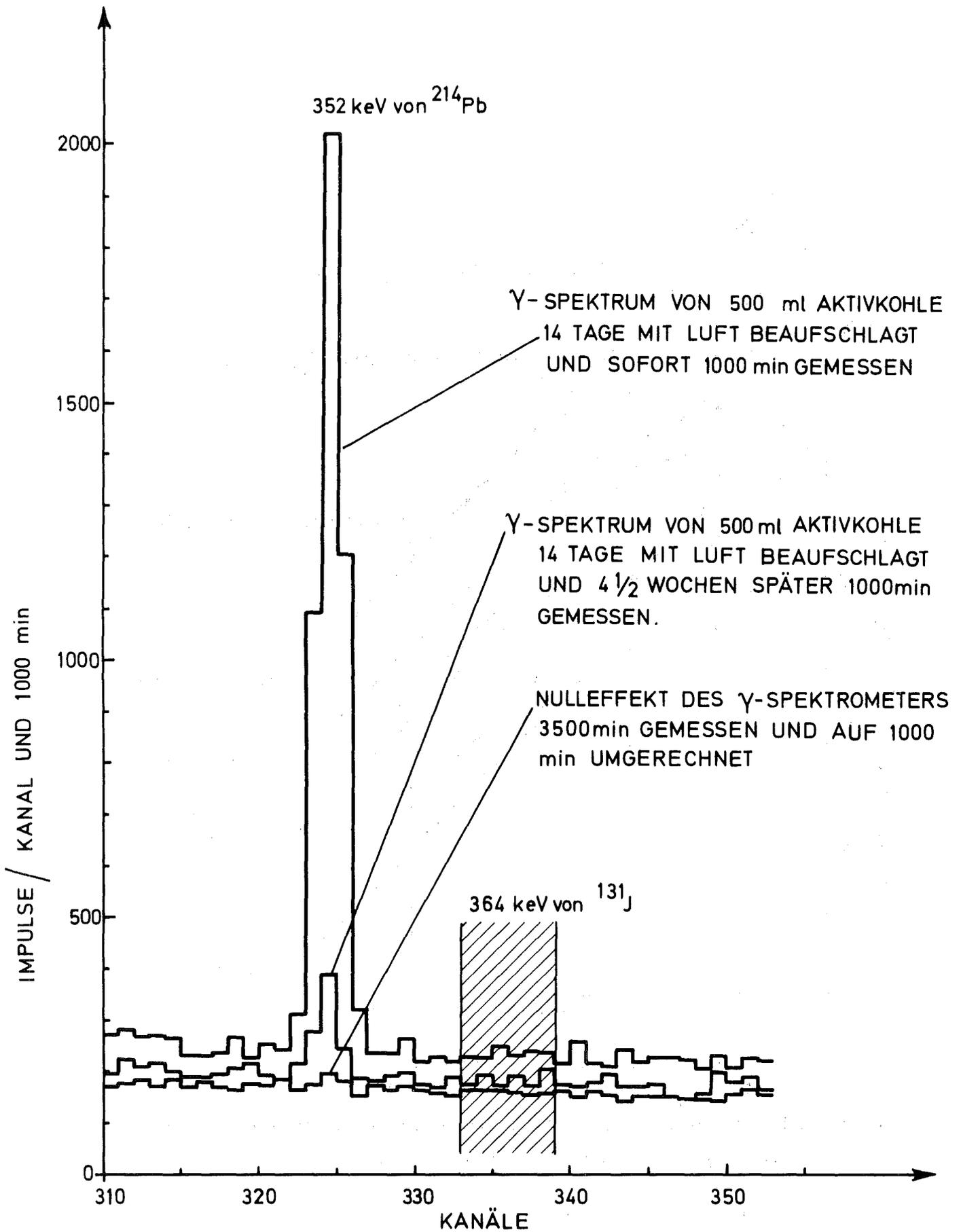


Abb. 5 : γ -SPEKTREN ZUR BESTIMMUNG VON R_U

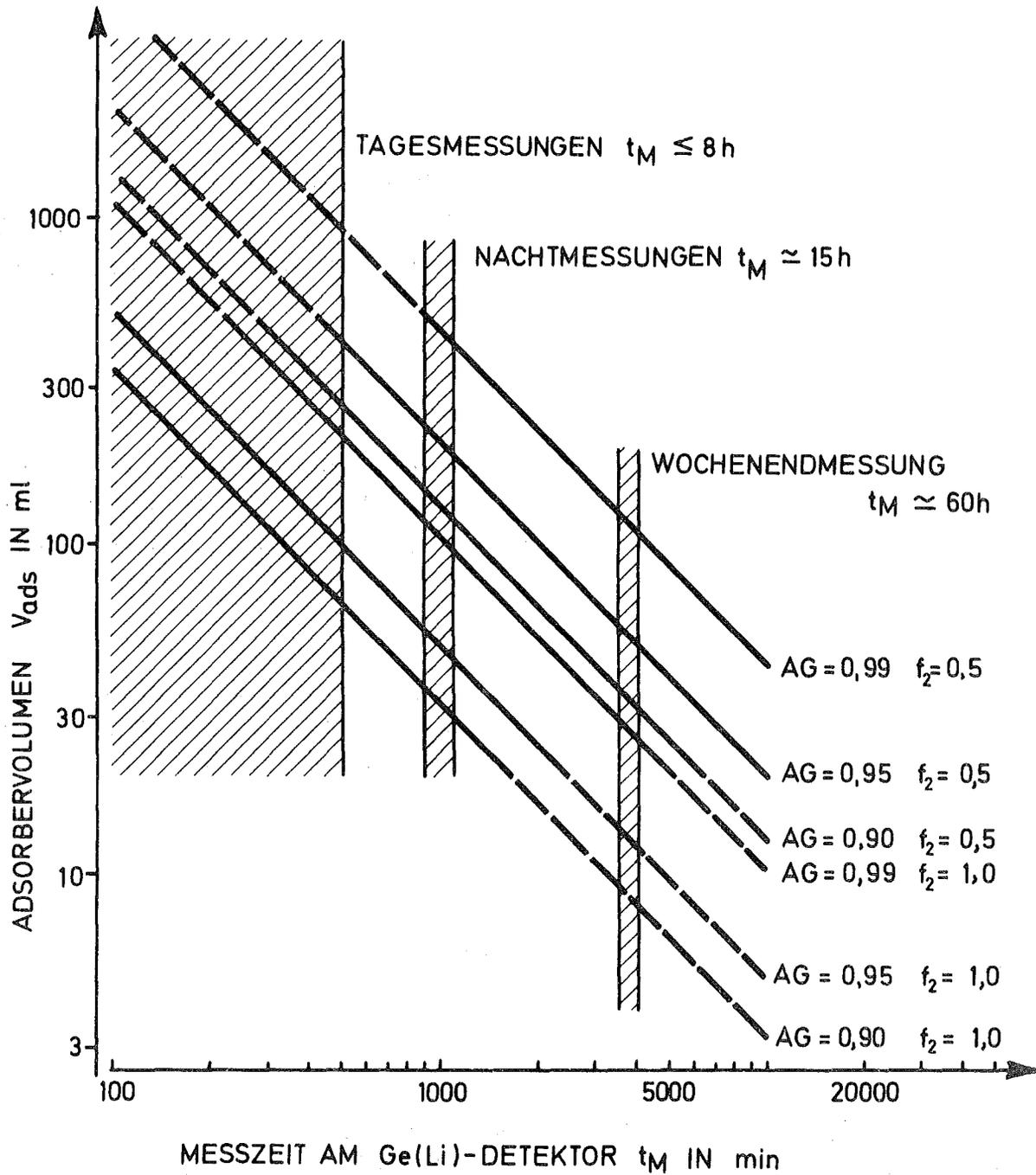


Abb. 6: DIE ABHÄNGIGKEIT VOM OPTIMALEN ADSORBERVOLUMEN VON DER MESSZEIT t_M , DEN AG UND f_2

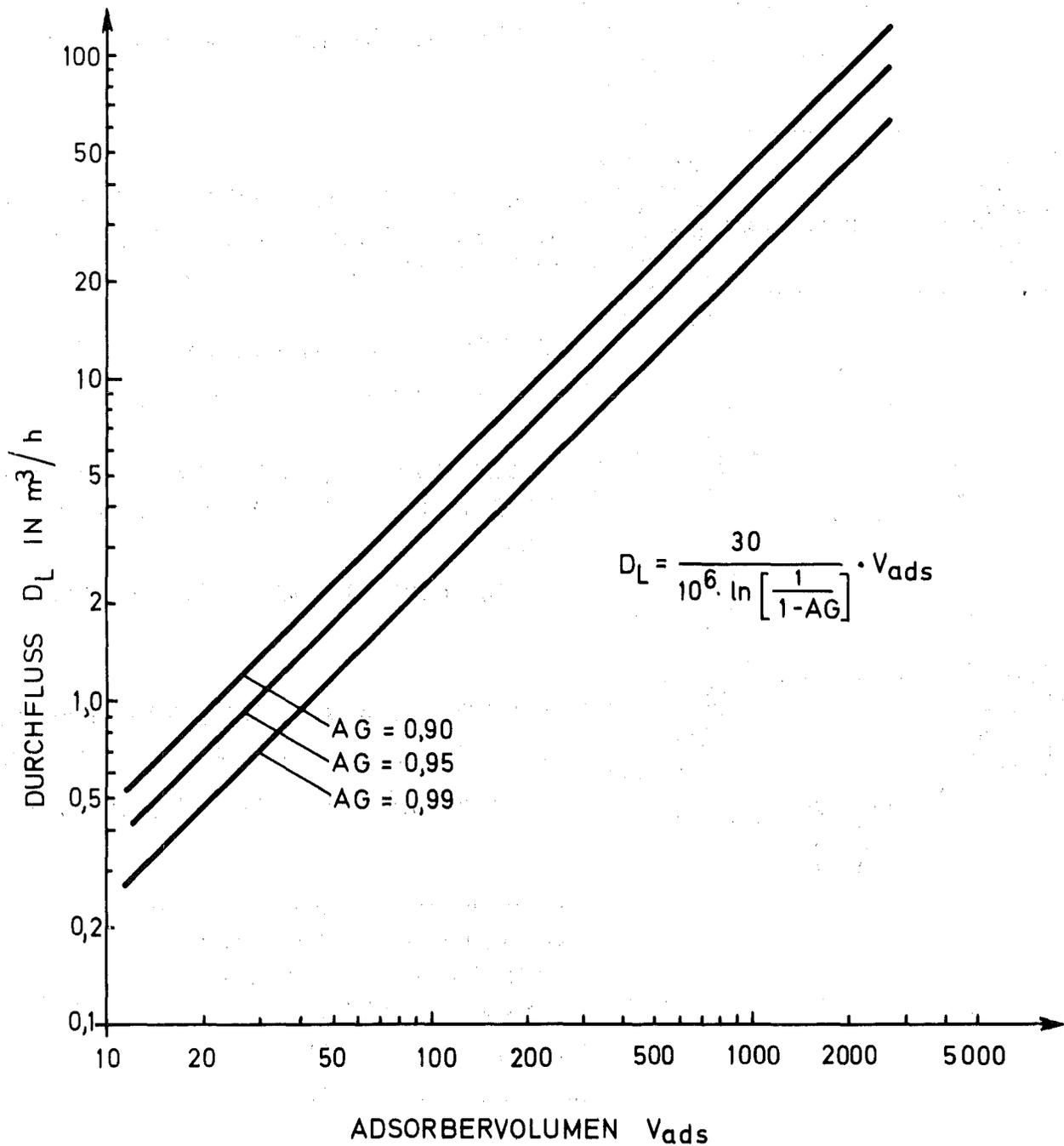


Abb. 7 ABHÄNGIGKEIT DES DURCHFLUSSES VOM OPTIMALEN ADSORBERVOLUMEN FÜR VERSCHIEDENE GEFORDERTE ABSCHIEDEGRADE AG.

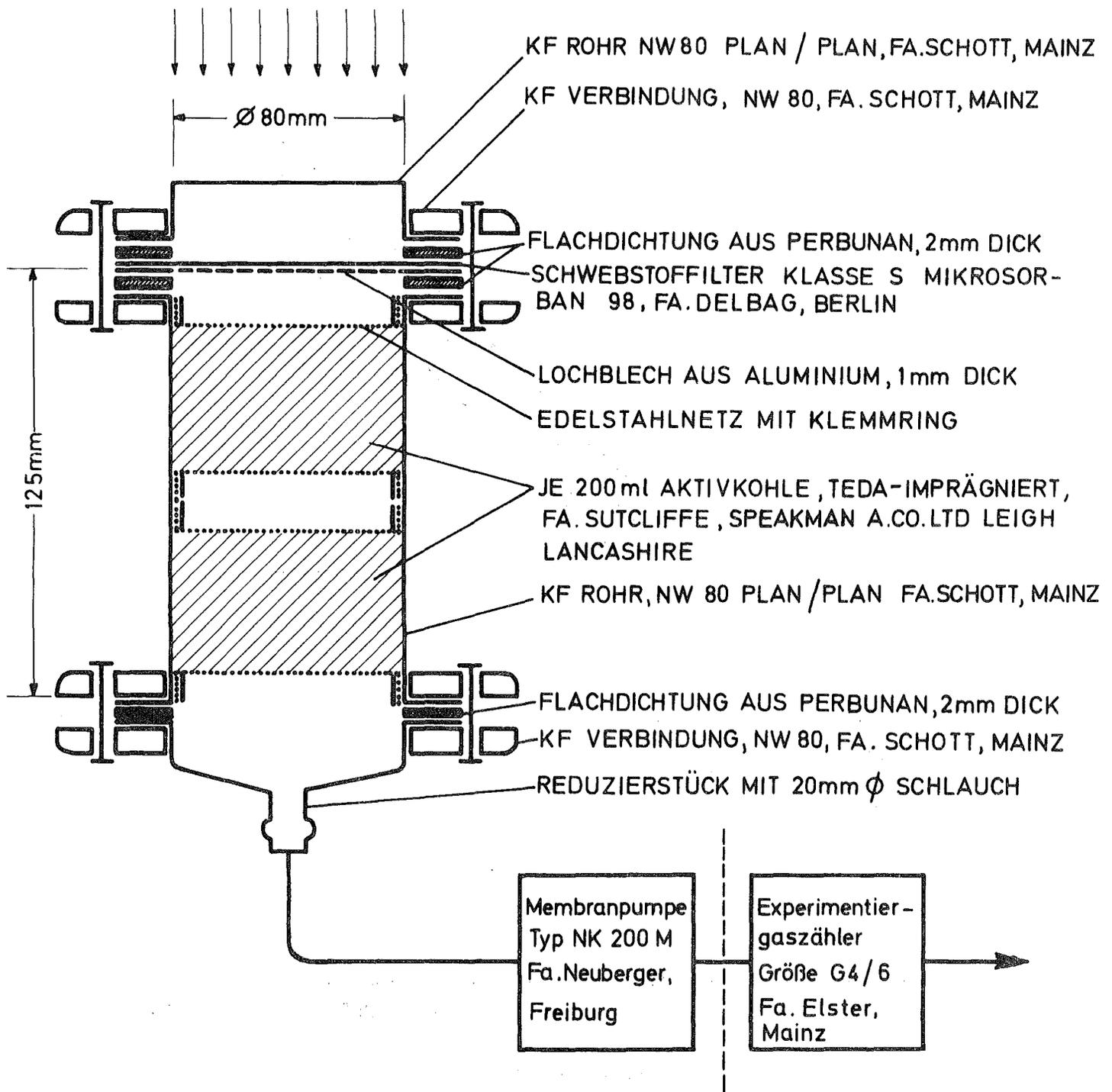


Abb. 8 : SCHEMATISCHE DARSTELLUNG DES PROBENAHMESYSTEMS. DIE GASUHR DIENT ZUR GELEGENTLICHEN PRÜFUNG DES DURCHFLUSSES.

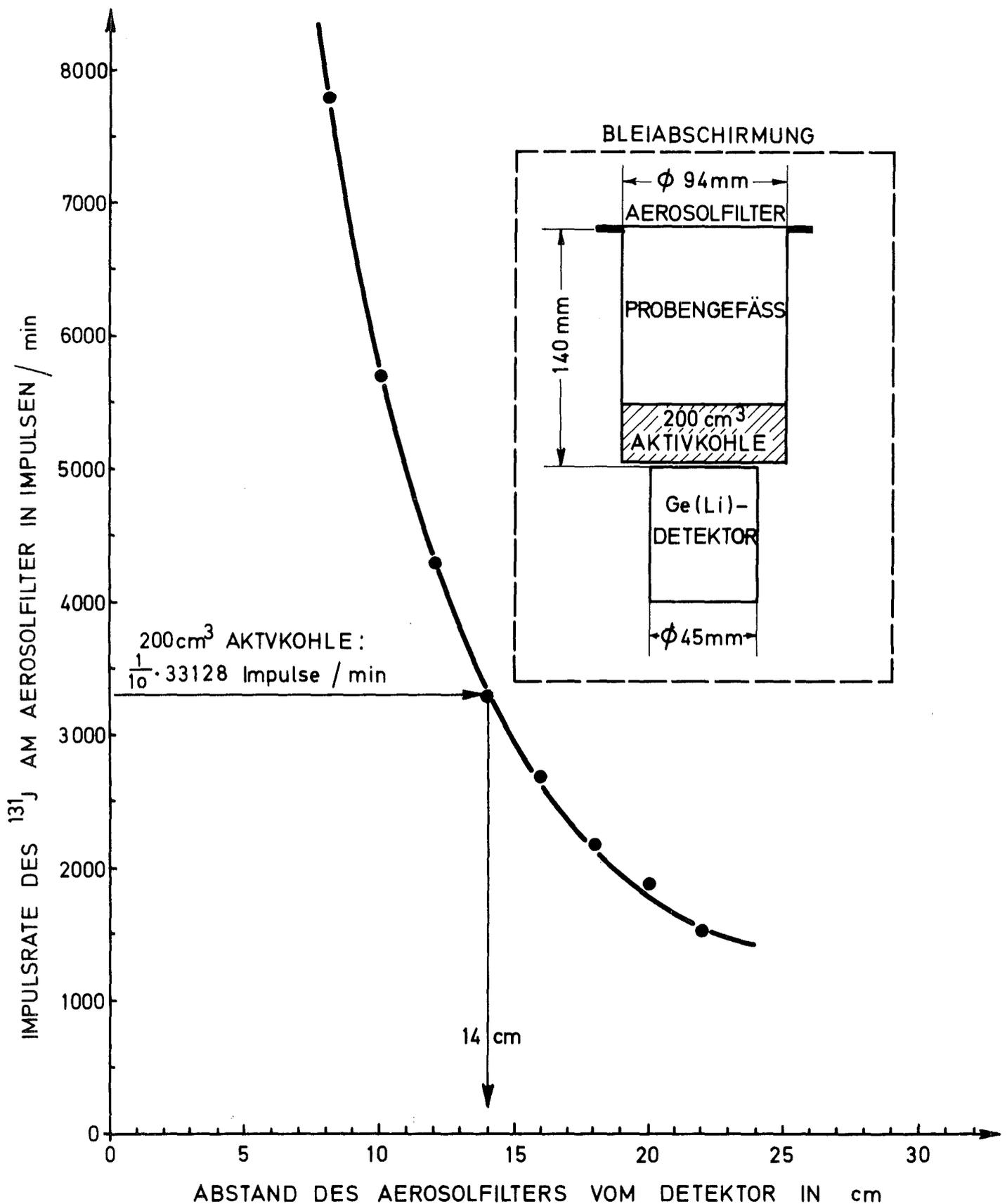


Abb. 9: ABHÄNGIGKEIT DER IMPULSRATE VON ^{131}J AM AEROSOLFILTER VOM ABSTAND VOM Ge(Li)-DETEKTOR. MIT 200 cm³ AKTIVKOHLE DIE MIT DER GLEICHEN ^{131}J AKTIVITÄT KONTAMINIERT WURDE, WURDE IM GEFÄSS MIT MAXIMALEM ZÄHLERWIRKUNGSGRAD 33128 IMP / min GEMESSEN. RECHTS OBEN: MESSANORDNUNG FÜR DIE GEWICHTETE GEMEINSAME MESSUNG VON AKTIVKOHLE UND AEROSOLFILTER