FACHVERBAND FÜR STRAHLENSCHUTZ E.V.

Mitgliedsgesellschaft der International Radiation Protection Association (IRPA)

Arbeitskreis „Arbeitsplatzüberwachung"

Raum- und Abluftüberwachung auf Radioaktivität

Kolloquium am 15. und 16. November 1973 in Karlsruhe

Redaktion: L. A. König

Sekretariat des FS: H. Brunner, Abt. SU, EIR, CH-5303 Würenlingen

FS-2

Zusammenfassung

Am 15. und 16. November 1973 fand im Kernforschungszentrum Karlsruhe ein Kolloquium über "Raum- und Abluftüberwachung auf Radioaktivität" statt, das vom Arbeitskreis "Arbeitsplatzüberwachung" des Fachverbandes für Strahlenschutz vorbereitet worden war. Ziel dieser Veranstaltung war, für das genannte Gebiet einen Überblick über Grundlagen, Meßtechnik und Erfahrungen zu geben und aktuelle Fragen zu diskutieren.

Der vorliegende Bericht umfaßt die für diese Veranstaltung ausgearbeiteten Beiträge sowie die nach der Tonbandaufzeichnung niedergeschriebenen Diskussionen zu den Vorträgen.

Meeting on Monitoring Room and Exhaust Air for Radioactivity

Summary

A meeting on Monitoring Room and Exhaust Air for Radioactivity prepared by the task group "Radiation Monitoring at the Work Place" of the Fachverband für Strahlenschutz was held at the Karlsruhe Nuclear Research Center on November 15 and 16, 1973. The aim pursued at the meeting was to review the fundamentals, measuring technique and experience in this field and to discuss topical questions.

This report includes the contributions prepared for the meeting and the resulting discussions transcribed from the tape.

INHALTSVERZEICHNIS

EINFÜHRUNG

L.A. König 3

GRUNDLAGEN

1. Das zukünftige ICRP-Konzept zur Ableitung von Grenzwerten für die Inhalation radioaktiver Aerosole 7
   W. Jacobi

2. Anforderungen an die Überwachung der Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken aus der Sicht der Strahlenbelastung und der Notfallvorsorge 23
   J. Schwibach

MESSTECHNIK

3. Messung radioaktiver Aerosole 39
   H. Gebauer

4. Überwachung auf radioaktive Gase, insbesondere Tritium 47
   R. Maushart

5. Jod-Überwachung 71
   J. Wilhelm

6. Teilchengrößenbestimmung 85
   J.P. Vaane

7. Die ISO-Norm "Empfehlung für die Probenahme von in der Luft enthaltenen radioaktiven Stoffen" 99
   H.-U. Berger

ERFAHRUNGEN

8. Experience in Room and Exhaust Air Monitoring at High Energy Accelerators 107
   J. Baarli

9. Erfahrungen bei der Raum- und Abluftüberwachung an niederenergetischen Teilchenbeschleunigern 129
   P.F. Sauermann

ABSCHLUSSDISKUSSION DES 1. TAGES 141

10. Raum- und Abluftüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen oder sonstigen großtechnischen Anlagen 147
L. Finsterwalder

11. Raum- und Abluftüberwachung am Kernkraftwerk Obrigheim 153
W. Stephan

12. Abluftüberwachung an Forschungsreaktoren 163
H. Jahn

13. Raum- und Abluftüberwachung in einem Industrielaboratorium 173
G. Schulze-Pillot

14. Raumluftüberwachung in den Laboratorien der Kernforschungsanlage Jülich 177
H. Jacobs

15. Gegenüberstellung der Ergebnisse der Raumluftüberwachung und der Inkorporationsüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe 183
L.A. König, E. Piesch, H. Schieferdecker

DISKUSSION ZU DEN VORTRÄGEN NR. 10 BIS 15 191

ABSCHLUSSDISKUSSION 195

TEILNEHMERVERZEICHNIS 203

E I N F Ø H R U N G

EINFOHRUNG

L.A. KÖNIG

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE,
ABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT

Eine wichtige Aufgabe der Strahlenschutzüberwachung ist es, Inkorporationsgefahren zu erkennen, um dadurch Inkorporationen verhindern zu können. Als möglicher Inkorporationsweg spielt dabei die Atemluft eine besondere Rolle, nicht zuletzt auch, weil die anwendbaren Atemschutzmaßnahmen das persönliche Wohlbefinden erheblich beeinträchtigen und daher Unbeteiligten auf keinen Fall zugemutet werden dürfen. Aber auch beruflich Strahlenexponierte sollten auf keinen Fall durch unnötige Schutzmaßnahmen belastet werden, während andererseits natürlich keine notwendige Schutzmaßnahme unterbleiben darf. Hieraus ergeben sich erhebliche Anforderungen an Zuverlässigkeit und Schnelligkeit von Luftüberwachungsmessungen. Diesen grundsätzlichen Forderungen stehen erhebliche meßtechnische Probleme bzw. Probleme bei speziellen Radionukliden gegenüber.

Ein nicht minder interessanter Aspekt der Luftüberwachung ist der ökonomische. Der Einzugsbereich der Probenahme ist begrenzt, Z.B. liegt in 1 m Abstand von einer Ansaugöffnung, in die 60 m^3/h Luft gesaugt werden, die Strömungsgeschwindigkeit infolge dieses Saugens in der Größenordnung mm/sec, also erheblich unter der durch die Zwangsbelüftung verursachten. Die Luftprobenahme innerhalb eines Raumes erfaßt also nicht den ganzen Raum. Dagegen liefert die Probenahme in der Raumabluft nur einen räumlichen Mittelwert, der weit unter dem an einem Arbeitsplatz vorliegenden Maximalwert liegen kann. Die Mehrfachbestückung eines Raumes mit Luftüberwachungsanlagen erfordert aber einen erheblichen finanziellen Aufwand.

Die Raumluftüberwachung stellt also eine komplexe Optimalisierungsaufgabe im Rahmen der Arbeitsplatzüberwachung dar, so daß es nicht überraschen darf, daß sich der Arbeitskreis "Arbeitsplatzüberwachung" des Fachverbandes für Strahlenschutz dieses Themas angenommen hat. Da die Abluftüberwachung vielfach mit den gleichen Geräten und von den gleichen Personen wie die Raumluftüberwachung durchgeführt wird, lag es nahe, diese nicht getrennt zu betrachten, obgleich ihre Zielsetzung eine andere, nämlich Umweltschutz, ist.

Das Kolloquium "Raum- und Abluftüberwachung auf Radioaktivität" möchte versuchen, einen Überblick über das gesamte angesprochene Gebiet zu geben sowie Erfahrungsaustausch und weitere Diskussionen anzuregen. Wirtschaftliche Fragen sollen dabei keineswegs ausgeklammert werden. Der Arbeitskreis "Arbeitsplatzüberwachung" des Fachverbandes für Strahlenschutz hat eine Gliederung in Teilgebiete vorgenommen. Für jedes Teilgebiet hat sich dankenswerterweise ein Spezialist bereit erklärt, ein Obersichtsreferat zu übernehmen. Wir sind uns bewußt, daß manches Teilgebiet selbst Stoff für ein einwöchiges Symposium liefern könnte. Insofern darf von diesem Kolloquium keine erschöpfende Behandlung des Themenkreises erwartet werden.

Einen breiten Raum sollen Diskussionen einnehmen. Sie sollen nicht auf die unmittelbaren Vortragsthemen beschränkt bleiben, sondern es sollen auch - soweit es die Zeit zuläßt - von den Teilnehmern gestellte, in diesen Rahmen passende Fragen aufgegriffen werden.

I. GRUNDLAGEN

1. SITZUNG

VORSITZENDER: J. BAARLI

DAS ZUKONFTIGE ICRP-KONZEPT ZUR ABLEITUNG VON GRENZWERTEN FOR DIE INHALATION RADIOAKTIVER AEROSOLE

W. JACOBI

GESELLSCHAFT FÜR STRAHLEN- UND UMWELTFORSCHUNG MBH., INSTITUT FÜR STRAHLENSCHUTZ, MÜNCHEN-NEUHERBERG

Zusammenfassung

Es wird das von einer Arbeitsgruppe der ICRP entwickelte Modell für die Deposition und Retention radioaktiver Teilchen im Atemtrakt beschrieben und es werden die Konsequenzen dieses Modells für die Verteilung inhalierter radioaktiver Stoffe im menschlichen Körper diskutiert.
Der Begriff der spezifischen, effektiven Energie und das "Dose Commitment"-Konzept werden erläutert. Abschliessend wird das neue System von Grenzwerten für die Inkorporation radioaktiver Stoffe behandelt. Dieses System sieht nicht mehr eine Begrenzung der Aktivitätskonzentration in Luft und Wasser vor, sondern eine Begrenzung der integralen Aktivität, die dem Körper pro Jahr durch Inhalation oder orale Aufnahme zugeführt werden darf.

Abstract

THE FUTURE ICRP-CONCEPT FOR THE DERIVATION OF LIMITS FOR THE INHALATION OF RADIOACTIVE AEROSOLS

The ICRP-task group model for the deposition and retention of radioactive particles in the respiratory tract is described and its consequences for the distribution of inhaled radioactive material within the human body are discussed. The evaluation of the specific effective energy and the dose commitment-concept are explained. Finally the new system of limits for the incorporation of radioactive material is outlined. Instead of limiting the activity concentration in air and water this new system provides a limitation of the integral annual activity intake into the human body by inhalation or oral ingestion.

EINLEITUNG

Die zur Zeit gültigen, maximal zulässigen Konzentrationen radioaktiver Stoffe in Luft und Wasser basieren auf den Empfehlungen der INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION (ICRP) von 1959 /1/. Trotz der Einfachheit des damals angewandten Konzepts haben sich die daraus abgeleiteten Grenzwerte in der Vergangenheit im großen und ganzen bewährt. Seit dieser Zeit sind jedoch viele neue Erkenntnisse über die Verteilung radioaktiver Stoffe im menschlichen Körper gesammelt worden. Außerdem sind einige Änderungen in den grundlegenden Empfehlungen der ICRP vorgenommen worden. Aus diesen Gründen wird zur Zeit von der Kommission 2 der ICRP ein neues "Handbook on the Dosimetry of Radionuclides within the Body" erarbeitet.

Da diese Arbeiten noch nicht abgeschlossen sind, können an dieser Stelle noch keine Angaben über die Höhe der Grenzwerte in den zukünftigen Empfehlungen der ICRP zur internen Belastung gemacht werden. Im Folgenden sollen vielmehr die Art dieser Grenzwerte bzw. maximal zulässigen Werte sowie einige neue Begriffe, Modelle und Konzepte erläutert werden, die bei der Ableitung der Grenzwerte angewandt werden.

DAS SCHEMA ZUR BERECHNUNG VON ORGANDOSEN

In Figur 1 ist schematisch das generelle Verfahren dargestellt, das bei der Berechnung der Aktivitäts- und Dosisverteilung im Körper bei Inhalation radioaktiver Aerosole zugrundegelegt wird.

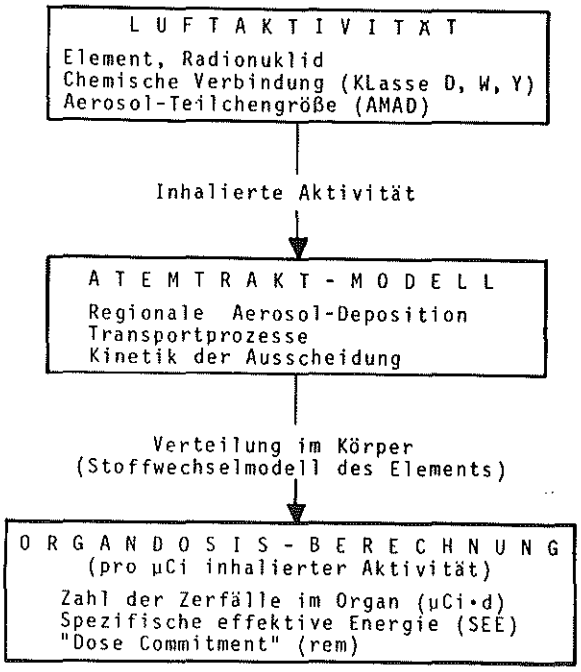


Fig. 1: Konzept zur Berechnung von Organdosen aus der inhalierten Aktivität

Ausgangsparameter der Berechnung sind außer der inhalierten Aktivität das inhalierte Element und Radionuklid, seine chemische Verbindung sowie der "Activity Median Aerodynamic Diameter (AMAD)" der Teilchengrößenverteilung des inhalierten, radioaktiven Aerosols. Das Aufnahmeorgan für dieses Aerosol ist der Atemtrakt. Zur Ermittlung der Deposition und Retention des Aerosols im Atemtrakt wird ein "Atemtrakt-Modell" zugrundegelegt, das sich von dem bisher von der ICRP angewandten Modell wesentlich unterscheidet. Dieses Modell liefert den Anteil der inhalierten Aktivität, der im Atemtrakt selbst zerfällt sowie die Anteile, die in das Blut und den Magen-Darm-Trakt überführt werden.

Für die nachfolgende Aufnahme des radioaktiven Stoffes aus dem Blut in die verschiedenen Organe bzw. Gewebe wird ein Stoffwechselmodell angewandt, das für das inhalierte Element spezifisch ist und die Retentionsfunktion für die wichtigsten Aufnahmeorgane dieses Elements angibt. Aus der aufgenommenen Aktivität und der Retentionsfunktion kann dann das Zeitintegral der Organaktivität, d.h. die Zahl der zu erwartenden Zerfälle des Radionuklids in dem Organ ermittelt werden. Aus diesen Zerfallszahlen für die einzelnen Organe wird dann die sogenannte "Specific Effective Energy (SEE)" berechnet. Im letzten Rechenschritt wird aus dem Zeitintegral der Organaktivität durch Multiplikation mit der spezifischen, effektiven Energie das sogenannte "Dose Commitment" in den einzelnen Organen für das betrachtete Radionuklid abgeleitet. Ein sinngemäßes, deutsches Wort für diesen Begriff "Dose Commitment" ist schwer zu finden; im Folgenden wird hierfür das Wort "Erwartungsdosis" verwendet, ohne damit einer offiziellen Übersetzung vorgreifen zu wollen.

In diesem, in Figur 1 dargestellten Ableitungsverfahren treten einige neue Begriffe auf und es werden verbesserte Modelle für die Verteilung und Dosimetrie der inkorporierten Radionuklide angewandt, u.a. für den Atemtrakt, den Magen-Darm-Trakt, den Knochen und das Knochenmark sowie auch für die Berechnung der Immersionsdosis bei Edelgasen. Eine Behandlung aller dieser neuen Elemente in den zukünftigen Empfehlungen ist im Rahmen dieses Vortrages nicht möglich. Ich möchte mich daher im Folgenden auf die Erläuterungen des neuen Atemtrakt-Modells, die Berechnung der spezifischen, effektiven Energie und auf das "Dose Commitment"-Konzept beschränken. Daran anknüpfend werde ich auf das System der zukünftigen Grenzwerte bzw. maximal zulässigen Werte für die Inkorporation radioaktiver Stoffe eingehen.

DAS ATEMTRAKT-MODELL

Dieses neue dosimetrische Modell des Atemtrakts lehnt sich eng an das Modell für die Deposition und Retention inhalierter Teilchen an, das vor wenigen Jahren von einer Arbeitsgruppe der ICRP entwickelt wurde /2/. Es ist ein Bestandteil des gesamten, in Figur 2 dargestellten Compartment-Modells des menschlichen Körpers, das bei der Berechnung der Aktivitätsverteilung im Körper infolge Inhalation radioaktiver Stoffe zugrundegelegt wird.

Daraus geht hervor, daß der Atemtrakt in drei Bereiche unterteilt wird, die sich hinsichtlich ihrer anatomischen und funktionellen Eigenschaften unterscheiden:

(1) Den nasalen bzw. naseopharyngealen Bereich (N-P), der sich vom Nasen-Rachen-Raum bis zum Kehlkopf erstreckt;

(2) Den tracheobronchialen Bereich (T-B), bestehend aus der Trachea und dem konduktiven, mit einem Ciliarepithel versehenen Teil des Bronchialbaums;

(3) Den pulmonären Bereich (P), der die respiratorischen Bronchioli und die gesamte Alveolarregion umfasst; d.h. denjenigen Bereich des Atemtrakts, in dem der O_2-CO_2-Austausch zwischen der Lungenluft und dem Blut erfolgt.

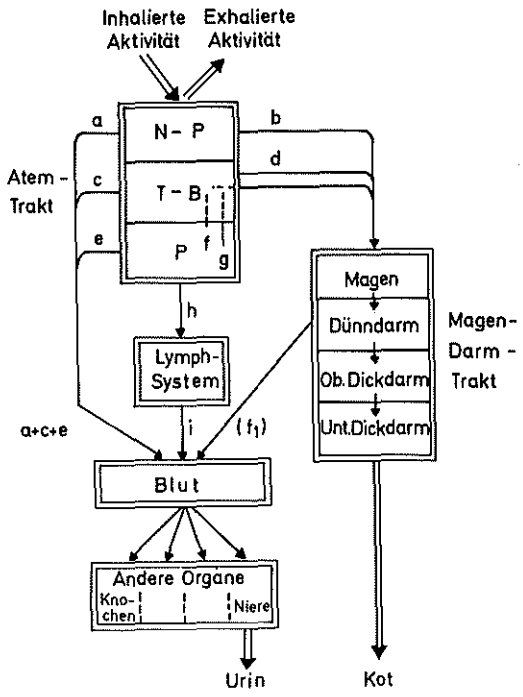


Fig. 2: Das Compartment-Modell des menschlichen Körpers für die Verteilung inhalierter radioaktiver Stoffe

Bei der Inhalation eines Aerosols müssen zwei, aufeinanderfolgende Transportprozesse im Atemtrakt berücksichtigt werden: Zunächst die Deposition der Teilchen an den Wänden der Atemwege und anschliessend der Transport des abgeschiedenen Materials im Atemtrakt bis zur Ausscheidung und Überführung in das Blut, das lymphatische System und den Magen-Darm-Trakt (s. Fig. 2). Dementsprechend muß ein dosimetrisches Modell des Atemtrakts aus zwei Teilen bestehen: Einem Modell für die Deposition in den drei Compartments des Atemtrakts N-P, T-B- und P und einem Modell für die Retention bzw. Clearance in diesen Compartments des Atemtrakts.

Das Depositionsmodell

Im Gegensatz zu dem bislang von der ICRP verwendeten Modell /1/ wird in dem neuen Modell die Abhängigkeit der Deposition von der Teilchengröße des inhalierten Aerosols berücksichtigt. In Anlehnung an die praktischen Erfahrungen wird dabei vorausgesetzt, daß dieses Aerosol eine log-normale Teilchengrößenverteilung aufweist. Die Kenngröße dieser Verteilung sind der "Activity Median Aerodynamic Diameter (AMAD)" und die geometische Standardabweichung (σ_g).

Die Depositionswahrscheinlichkeit in den 3 Compartments des Atemtrakts wurde in Anlehnung an das Modell von FINDEISEN berechnet, wobei jedoch neuere experimentelle und theoretische Ergebnisse in dieses Modell eingearbeitet wurden (vgl. /2/). Figur 3 zeigt die resultierenden Werte der Depositionswahrscheinlichkeit bei Nasenatmung von 20 l/min (Referenz-Mensch) in Abhängigkeit vom AMAD des radioaktiven Aerosols. Bei der angenommenen log-normalen Größenverteilung sind die deponierten Aktivitätsanteile nur wenig abhängig von dem Atemvolumen und der geometrischen Standardabweichung σ_g.

In der gewählten Skala (Abszisse: logarithmisch; Ordinate: Wahrscheinlichkeitsnetz) ergeben sich im AMAD-Bereich von 0,2 - 10 µm in erster Näherung Geraden. Für die weitere Berechnung der Organdosen und für die Festlegung von Grenzwerten werden daher die ausgezogenen Kurven in Figur 3 verwendet, die für Nasenatmung von radioaktiven Aerosolen mit einem AMAD von 0,2 - 10 µm und einem $\sigma_g < 4,5$ angewendet werden sollen.

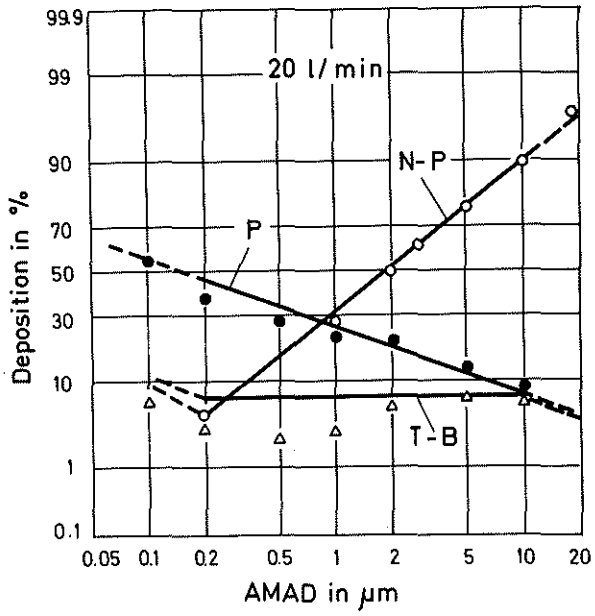


Fig. 3: Depositionsmodell der ICRP: Deponierter Aktivitätsanteil in den 3 Bereichen des Atemtrakts bei Inhalation radioaktiver Aerosole mit log-normaler Teilchengrössenverteilung ($\sigma_g < 4,5$)

Für den Bronchialbaum (T-B) wird somit eine konstante Depositionswahrscheinlichkeit von 8% angesetzt. Die Deposition im nasalen Bereich (N-P) steigt mit zunehmendem AMAD monoton an, während sie im pulmonären Bereich (P) infolge der Vorfilterung im nasalen und bronchialen Bereich monoton mit zunehmendem AMAD abnimmt.

Das Retentionsmodell für den Atemtrakt

In diesem Modell werden die in Figur 2 dargestellten Ausscheidungswege a-i aus den 3 Atemtrakt-Bereichen in den Magen-Darm-Trakt, das lymphatische System und in das Blut berücksichtigt. Die Wege a, c, e kennzeichnen die direkte Absorption in den Blutkreislauf. Ein wesentlicher Teil des im nasalen und bronchialen Bereich abgeschiedenen Materials wird durch den Ciliartransport und Verschlucken in den Magen-Darm-Trakt überführt (Wege b,d). Auch aus dem pulmonären Bereich erfolgt über den Bronchialbaum eine Ausscheidung in den Magen-Darm-Trakt. Es handelt sich dabei in erster Linie um den biologischen Transport durch Endocytose, d.h. den Einschluß von Teilchen in Zellen (Alveolarmakrophagen), die auf dem Alveolarepithel zu den unteren Bronchien wandern (Wege f,g); dort werden sie vom Ciliartransport erfasst und gelangen nach Passage des Bronchialbaums durch Verschlucken in den Magen-Darm-Trakt. Ferner erfolgt aus dem pulmonären Bereich eine Überführung in das lymphatische System (Weg h); dabei werden unlösliche Stoffe vor allem in den Lymphknoten angereichert. Aus dem lymphatischen System wird wiederum ein Teil in das Blut überführt (Weg i).

Bei der Kinetik der Ausscheidung wird, wie bereits erwähnt, auch die chemische Verbindung des inhalierten, radioaktiven Materials berücksichtigt, da hiervon die Art, die Richtung und die Geschwindigkeit der Ausscheidungsprozesse entscheidend abhängen. In einer Tabelle der zukünftigen Empfehlungen werden die häufigsten Verbindungen der Elemente in drei Klassen eingeordnet, die sich hinsichtlich ihrer Retention im Atemtrakt unterscheiden:

(1) Klasse D für gut lungenlösliche Verbindungen, die durch Lösungsdiffusion schnell aus dem Atemtrakt ausgeschieden werden;

(2) Klasse W für Verbindungen, die nur mäßig absorbiert werden und aus dem pulmonären Bereich in einem Zeitraum von mehreren Wochen ausgeschieden werden;

(3) Klasse Y für schwer lungenlösliche Verbindungen, die praktisch nur durch Endocytose und Ciliartransport ausgeschieden werden und deren Ausscheidungshalbwertszeit aus dem pulmonären Bereich daher im Bereich weniger Jahre liegt.

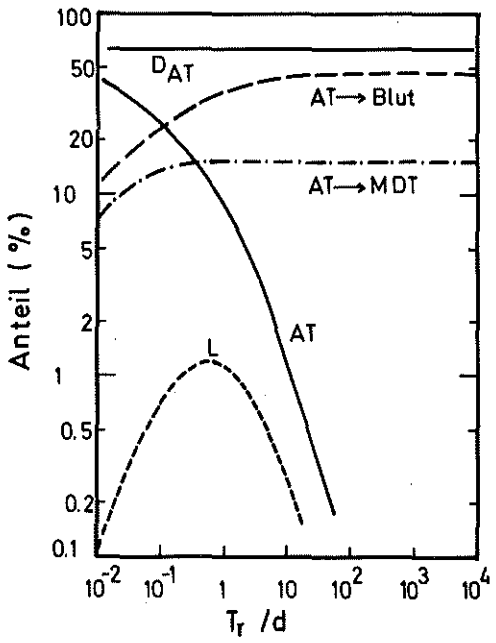
Für jede dieser Klassen wird den einzelnen Ausscheidungswegen a-i eine exponentielle Ausscheidungsfunktion zugeordnet, die bestimmt ist durch die Ausscheidungshalbwertszeit T und den auf dem betrachteten Weg ausgeschiedenen Aktivitätsanteil F. Entsprechend den drei Retentionsklassen D, W und Y werden jedem Ausscheidungsweg 3 Wertepaare (T, F) zugeordnet. Für jedes Radionuklid ergeben sich somit auch drei verschiedene, auf diese Retentionsklassen bezogene Grenzwerte der inhalierten Aktivität.

Folgerungen aus dem Atemtrakt-Modell

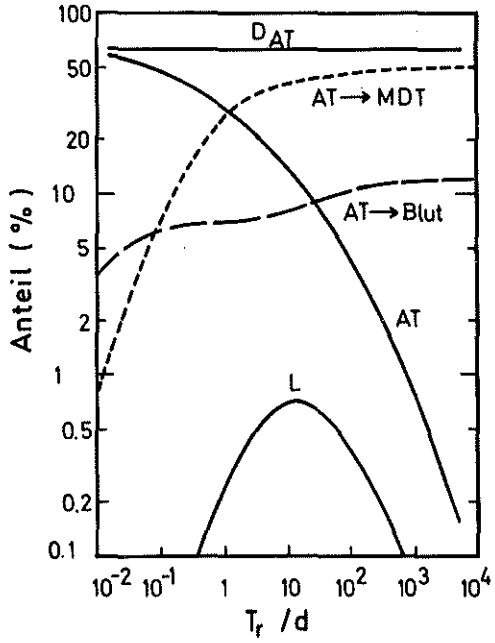
Um die Funktionsweise dieses Modells aufzuzeigen, möchte ich auf einige wichtige Folgerungen aus diesem Modell eingehen.
Die Figuren 4 a - c zeigen - bezogen auf einen AMAD = 1 µm - für die drei Retentionsklassen D, W und Y in Abhängigkeit von der radioaktiven Halbwertszeit des inhalierten Radionuklids den relativen Anteil der inhalierten Aktivität, der im Atemtrakt deponiert wird (Kurve D_{AT}), der im Atemtrakt (Kurve AT) bzw. im lymphatischen System (Kurve L) zerfällt, und der aus dem Atemtrakt in das Blut (Kurve AT $\longrightarrow$ Blut) bzw. den Magen-Darm-Trakt (Kurve AT $\longrightarrow$ MDT) überführt wird.

Bei Inhalation von Aerosolen der Klasse D (Fig. 4a) nimmt der im Atemtrakt zerfallende Anteil mit zunehmender Halbwertszeit sehr schnell ab; entsprechend steigt der Anteil an, der in das Blut und den Magen-Darm-Trakt überführt wird, wobei ersterer überwiegt. Bei dieser Klasse wird daher nur bei sehr kurzlebigen Radionukliden, wie z.B. den kurzlebigen Zerfallsprodukten des Rn-222, die Lunge das kritische Organ sein.

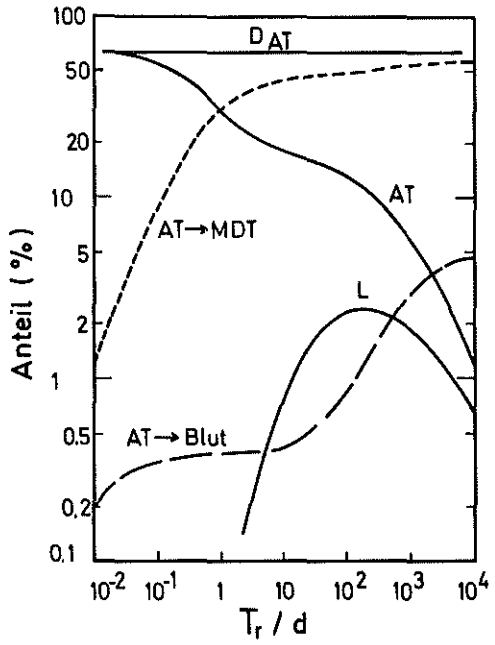
Je geringer die Absorbierbarkeit in der Lunge ist, desto größer ist der Anteil der inhalierten Aktivität, der im Atemtrakt vor der Ausscheidung zerfällt. Bei längerlebigen Nukliden überwiegt dann aber stets der Anteil, der in den Magen-Darm-Trakt überführt wird (Fig. 4 b, c) und anschliessend zum größten Teil im Kot ausgeschieden wird. Umgekehrt ist bei schwer absorbierbaren Stoffen der in das Blut überführte Aktivitätsanteil gering; dementsprechend wird dann nur ein geringer Anteil der inhalierten Aktivität aus dem Blut in die anderen Organe aufgenommen.



(a) Retentionsklasse D



(b) Retentionsklasse W



(c) Retentionsklasse Y

Fig. 4 a - c:

Verteilung von inhaliertem Material der Retentionsklasse D, W und Y in Abhängigkeit von der radioaktiven Halbwertszeit des Radionuklids (AMAD = 1 µm).

Aus diesem Grund kann man nicht die generelle Folgerung ziehen, daß der Grenzwert für die inhalierte Aktivität um so niedriger liegen muss je geringer die Löslichkeit bzw. Absorbierbarkeit des Materials in der Lunge ist. Bei extrem unlöslichen, langlebigen radioaktiven Stoffen der Klasse Y, wie z.B. Pu-239-oxid, zerfällt auch ein nicht unerheblicher Anteil im lymphatischen System und bewirkt dort vor allem eine Bestrahlung der Lymphknoten.

Bei der Anwendung dieses Atemtrakt-Modells der ICRP muß man berücksichtigen, daß die außerordentlich komplexen Vorgänge, die sich bei der Retention inhalierter Spurenstoffe im Atemtrakt abspielen, nur schwer in ein relativ einfaches, starres Modell abbilden lassen. Das neue Modell stellt aber zweifellos eine erhebliche Verbesserung gegenüber dem bisherigen ICRP-Modell dar und liefert wesentlich realistischere Werte für den Anteil der inhalierten Aktivität, der in der Lunge zerfällt bzw. aus der Lunge in das Blut überführt wird.

BERECHNUNG DER SPEZIFISCHEN EFFEKTIVEN ENERGIE

Mit Hilfe des Atemtrakt-Modells und des elementspezifischen Stoffwechsel-Modells kann aus der inhalierten Aktivität die zeitliche Aktivitätsverteilung im Körper und somit das Zeitintegral der Aktivität bzw. die Zahl der Zerfälle in den einzelnen, wichtigen Organen abgeschätzt werden (s. Fig. 1). Bei der anschliessenden Berechnung der zugehörigen Organdosis wird - im Gegensatz zu dem bisher von der ICRP angewandten Verfahren - nicht nur die Aktivität in diesem Organ sondern auch die Absorption der von anderen Organen emittierten Strahlung in diesem Target-Organ berücksichtigt.

Sei z.B. Z_i die Zahl der Zerfälle in einem Organ i ("source organ"), so ist die hierdurch bewirkte Äquivalentdosis $D_{i\to j}$ in dem Targetorgan j proportional Z_i:

$$D_{i\to j} = SEE_{i\to j}\, Z_i \tag{1}$$

Der Proportionalitätsfaktor $SEE_{i\to j}$ wird als spezifische, effektive Energie im Organ j durch die Strahlung des Organs i bezeichnet. Die SEE gibt somit die Äquivalentdosis im Targetorgan j pro Zerfall im ("source"-)Organ i an.

Die gesamte Äquivalentdosis D_j in dem Targetorgan j ergibt sich durch Summierung über alle Organe i, einschließlich des Targetorgans selbst:

$$D_j = \sum_i SEE_{i\to j}\, Z_i \tag{2}$$

Die SEE folgt aus der Gleichung

$$SEE_{i\to j} = \frac{1}{M_j} \sum_k Y_k\, E_k\, (AF)^k_{i\to j}\, Q^k_j\, N^k_j \tag{3}$$

wobei Y_k die Emissionsausbeute (pro Zerfall) der Strahlenart k (Teilchen bzw. Photonen),

E_k die mittlere Emissionsenergie dieser Strahlenart,

$(AF)^k_{i\to j}$ der Anteil der im Organ i emittierten Energie der Strahlenart k ist, der im Targetorgan j absorbiert wird ("Absorbed Fraction"),

Q^k_j bzw. N^k_j der Qualitätsfaktor bzw. "Modifying Factor" der Strahlenart k im Targetorgan, und

M_j die Masse des Targetorgans j

ist. Für die absorbierten Anteile AF der einzelnen Organe werden dabei die Werte eingesetzt, die von SNYDER et al. mit Hilfe der Monte-Carlo-Methode für den Referenzmenschen berechnet worden sind /3, 4/. Die Daten dieses Referenzmenschen von 70 kg Körpergewicht, früher Standardmensch genannt, basieren auf den neuen Empfehlungen einer Arbeitsgruppe der ICRP /4/.

In dem zukünftigen ICRP-Handbuch zur internen Dosimetrie werden für jedes Radionuklid die SEE-Werte der wichtigsten Organpaare (i, j) angegeben. Es ist klar, daß für die meisten Organe eine vollständige Absorption der α- und β-Strahlung im "source"-Organ selbst angenommen werden kann, d.h. $SEE_{i\to j} = 0$ für $i \neq j$ bei α- und β-Strahlung ist. Für $i \neq j$ ist bei der Berechnung der SEE somit meistens nur die Photonenkomponente zu berücksichtigen.

DER BEGRIFF "DOSE COMMITMENT"

Bei der Zuordnung der internen Dosis in den einzelnen Organen zu der dem Körper zugeführten Aktivität muss man sich darüber im klaren sein, daß der zeitliche Verlauf der Aktivitätszufuhr und der Bestrahlung der Organe nicht übereinstimmen. Letztere verteilt sich über einen mehr oder weniger langen Zeitraum nach der Aktivitätsaufnahme. Dieser Zeitraum der Bestrahlung ist um so länger je langlebiger das Radionuklid ist und je langsamer es aus dem betrachteten Organ ausgeschieden wird (s. Figur 5).

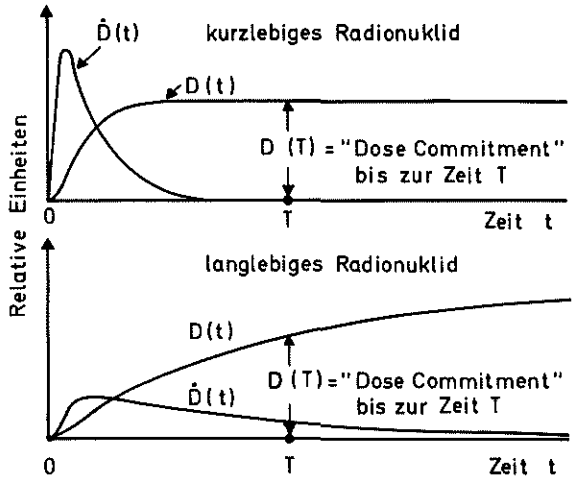


Fig. 5:

Erwarteter zeitlicher Verlauf der Äquivalentdosis D bzw. der Dosisleistung $\dot{D}$ in einem Organ nach kurzzeitiger Aktivitätszufuhr zum Körper z.Zt. t = 0

So bewirkt z.B. eine kurzzeitige Aufnahme von Pu-239 in den Körper eine langzeitige Bestrahlung des Knochens über einen Zeitraum von mehreren Jahrzehnten. Dieser Sachverhalt ist bei der Festlegung der maximal zulässigen Aktivitätszufuhr zum Körper und bei der Überlagerung einer externen Bestrahlung und einer Inkorporation radioaktiver Stoffe zu berücksichtigen.

Generell kann man einer dem Körper zugeführten Aktivität nur einen Erwartungswert der Dosis in den einzelnen Organen zuordnen. Dieser Erwartungswert wird als "Dose Commitment" bezeichnet und im folgenden Erwartungsdosis genannt. Bei kurzzeitiger Zufuhr radioaktiver Stoffe zum Körper zur Zeit $t = 0$ beträgt nach Figur 5 die Erwartungsdosis zur Zeit T in einem Organ

$$D(T) = \int_0^T \dot{D}(t)dt \tag{4}$$

wobei $\dot{D}(t)$ die Dosisleistung in dem Organ ist. Wegen der begrenzten Lebensdauer des Menschen ist es sinnvoll die Integrationsdauer T zu begrenzen. In den zukünftigen ICRP-Empfehlungen wird für berufliche Exposition die Erwartungsdosis für $T = 50$ a zugrundegelegt. Dabei ist klar, daß diese Zeitbegrenzung nur bei relativ langlebigen Radionukliden von Bedeutung ist.

In diesen Empfehlungen werden für jedes Radionuklid die Werte der Erwartungsdosis in den wichtigsten Organen angegeben, bezogen auf eine dem Körper zugeführte Aktivität $Z = 1$ µCi. Im Falle der Inhalation gibt Z die inhalierte Aktivität und nicht die im Atemtrakt deponierte Aktivität an. Es sei angemerkt, daß die durch Gl. (4) definierte Erwartungsdosis unabhängig von der zeitlichen Verteilung der Aktivitätszufuhr zum Körper ist.

ART UND ABLEITUNG DER NEUEN GRENZWERTE FÜR DIE INTERNE BELASTUNG DES MENSCHEN

In den bisherigen Empfehlungen der ICRP /1/ wurden die maximal zulässigen Werte der Körperaktivität ("Body Burden") und der Aktivitätskonzentration in Luft und Wasser festgelegt. Die Erfahrung hat gezeigt, daß die Bezeichnung maximal zulässige Konzentration (MZK) irreführend ist und die Ursache für manche falsche Interpretation und Anwendung dieser Werte war. Außerdem steht dieses Konzentrationskonzept für die Aufnahme radioaktiver Stoffe in den Körper nicht in Einklang mit dem Konzept der integralen Jahresdosis, das bei der Begrenzung der externen Strahleneinwirkung auf den Menschen angewandt wird.

Aus diesen Gründen wird in den zukünftigen ICRP-Empfehlungen nicht mehr die Konzentration der radioaktiven Stoffe begrenzt, sondern die integrale, jährlich dem Körper zugeführte Aktivität, sei es durch Inhalation oder durch orale Aufnahme. Diese Größe wird als "Maximum Permissible Annual Intake (MPAI)" bezeichnet und im Folgenden "Maximal zulässige jährliche Zufuhr (MZZ)" genannt. Die maximal zulässige Aktivitätszufuhr in einem Vierteljahr wird auf die Hälfte des Jahreswerts begrenzt. Damit wird das bei externer Bestrahlung angewandte Konzept auch auf die Inkorporation radioaktiver Stoffe übertragen, jedoch nicht auf die interne Dosis bzw. Erwartungsdosis sondern auf die Aktivitätszufuhr zum Körper.

Die Ausgangsbasis für die Ableitung der MZZ-Werte sind die von der ICRP im Jahre 1965 festgelegten "Basic Standards", d.h. die maximal zulässigen Jahresdosen (MZD) in den einzelnen Organen bzw. Geweben /5/. Für den Fall der Inkorporation sind diese MZD-Werte als maximal zulässige Werte der Erwartungsdosis ("Dose Commitment") zu verstehen. Die maximal zulässige jährliche Aktivitätszufuhr (MZZ) zum Körper wird so festgelegt, daß die mit dieser Aktivität verknüpfte Erwartungsdosis im kritischen Organ gleich der maximal zulässigen Jahresdosis in diesem Organ ist.

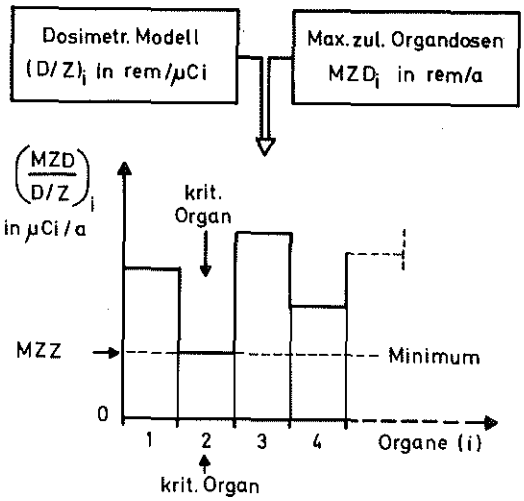


Fig.6: Zur Ableitung der maximal zulässigen, jährlichen Akvitätszufuhr (MZZ) zum Körper

Das aus diesem ICRP-Konzept resultierende Verfahren für die Ableitung der MZZ eines Radionuklids ist schematisch in Figur 6 dargestellt. Das beschriebene dosimetrische Modell liefert die Erwartungsdosis D_i (in rem) in den einzelnen Organen i pro µCi der dem Körper zugeführten Aktivität Z. Dann wird für die einzelnen Organe das Verhältnis $MZD_i/(D/Z)_i$ gebildet. Dasjenige Organ k, für das dieses Verhältnis am kleinsten ist, wird als kritisches Organ für das betrachtete Radionuklid bezeichnet. Dieser Minimalwert des obigen Verhältnisses wird als MZZ des betreffenden Nuklids festgelegt:

$$MZZ\ (\mu Ci/a) = \left[\frac{MZD(rem/a)}{D(rem)/Z(\mu Ci)}\right]_{krit.\ Organ} \qquad (5)$$

In den zukünftigen Empfehlungen werden die MZZ-Werte der Radionuklide sowohl für Inhalation als auch für orale Zufuhr angegeben. Im Falle der Inhalation werden dabei die MZZ-Werte für die drei Retentionsklassen D, W und Y tabelliert, bezogen auf einen AMAD = 1 µm; für die Umrechnung auf andere AMAD-Werte werden Korrekturfaktoren angegeben.

Weiterhin wird als Hilfsgröße für die praktische Luftüberwachung in Arbeitsräumen (berufliche Strahlenexposition) die sogenannte "Derived Air Concentration (DAC)" angegeben, die aus dem Wert der MZZ_{inhal} nach der Gleichung

$$(6) \qquad DAC\ (\mu Ci/m^3) = \frac{MZZ(\mu Ci/a)}{2500\ m^3/a}$$

abgeleitet wird. Der Zahlenwert im Nenner gibt dabei diejenige Luftmenge an, die von dem Referenzmensch (20 l/min) pro Jahr während der maximalen Arbeitszeit von 40 h/Woche x 50 Wochen/a eingeatmet wird. Die DAC entspricht daher der bisherigen MZK_{Luft} für berufliche Exposition; die Umbenennung bringt jedoch klar zum Ausdruck, daß es sich bei diesem Wert nicht um eine maximal zulässige Aktivitätskonzentration in der Raumluft handelt, sondern nur um eine Hilfsgröße für die praktische Luftüberwachung am Arbeitsplatz.

Entscheidend für die Genehmigung einer innerbetrieblichen Tätigkeit oder einer Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kontrollbereichen ist die integrale vierteljährliche bzw. jährliche Exposition des betroffenen Personenkreises, die durch die Werte der maximal zulässigen Aktivitätszufuhr (MZZ) begrenzt wird.

SCHLUSSBEMERKUNG

Zusammenfassend ist festzustellen, daß das zukünftige ICRP-Konzept zur Festlegung der maximal zulässigen Inkorporation radioaktiver Stoffe im Vergleich zu dem bisherigen Konzept wesentliche Verbesserungen und Änderungen enthält. Abgesehen von der Höhe der einzelnen Grenzwerte ist die für die Praxis wichtigste Änderung die Art dieser Grenzwerte selbst. Die Begrenzung der jährlichen Aktivitätszufuhr zum Körper an Stelle der Aktivitätskonzentration in Luft und Wasser ist vom strahlenbiologischen Sachverhalt gerechtfertigt.

Die aus der Abkehr vom Konzentrationskonzept resultierenden Konsequenzen für den praktischen Strahlenschutz bedürfen jedoch sorgfältiger, zukünftiger Überlegungen. Dies gilt vor allem für die Inkorporationsüberwachung beruflich strahlenexponierter Personen. Bei der Bestimmung der Körperaktivität mit Hilfe von Ganzkörper- oder Ausscheidungsmessungen ist zu überlegen, wie man aus der Körperaktivität die jährlich dem Körper zugeführte Aktivität ermittelt, da in den neuen ICRP-Empfehlungen die maximal zulässige Körperaktivität nicht mehr angegeben wird. Vielleicht ist es sinnvoller die Berechnung der zugeführten Aktivität zu umgehen und stattdessen direkt die Organdosen aus solchen Messugen abzuleiten und mit den maximal zulässigen Organdosen vergleichen. Dann taucht jedoch die Frage auf, ob man zum Vergleich die tatsächliche, vom Organ aufgenommene Dosis oder die Erwartungsdosis (Dose Commitment) heranzieht. Bei der Anwendung des Dose Commitment-Konzepts sind auch die sich ergebenden Probleme bei einem Wechsel des Arbeitsplatzes zu berücksichtigen. An die bei der Raumluftüberwachung am Arbeitsplatz einzusetzenden Monitoranlagen ist die Forderung zu stellen, nicht nur die Aktivitätskonzentration anzuzeigen, sondern auch eine einfache Ermittlung desZeitintegrals dieser Konzentration über bestimmte, von der Art der Tätigkeit abhängende Zeitperioden zu ermöglichen.

Hinsichtlich der Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kontrollbereichen eröffnet das zukünftige ICRP-Konzept zweifellos betriebsgerechtere Lösungen als das bisherige Konzept, ohne daß die Strahlenbelastung der benachbarten Bevölkerung erhöht wird. Dem Grenzwert der Aktivitätszufuhr zum Menschen kann eine maximal zulässige,

jährliche Aktivitätsabgabe mit der Abluft bzw. dem Abwasser zugeordnet werden. Diese Regelung wird bereits heute bei der Festlegung der Genehmigungswerte für die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Kernkraftwerken und bei der Bilanzierung der Bevölkerungsbelastung angewandt.

Abschliessend möchte ich auf eine, meines Erachtens unbefriedigende Grundsatzempfehlung der ICRP hinweisen, die auch in die neuen Empfehlungen übernommen wird. Die Festlegung der maximal zulässigen Aktivitätszufuhr zum Körper basiert allein auf der Strahlenexposition des kritischen Organs und berücksichtigt nicht die gleichzeitige Exposition der anderen Organe. Dieses Verfahren steht nicht im Einklang mit dem Konzept des Strahlenrisikos, nach dem die Risiken für die einzelnen Organe zu addieren sind. Eine dahingehende Änderung des bisherigen Ableitungsverfahrens ist jedoch erst dann zu erwarten, wenn die ICRP ein neues, auf dem Risikokonzept basierendes System der Grundnormen entwickelt hat.

LITERATUR

/1/ Recommendations of the ICRP, Publication 2, Pergamon Press (1959)

/2/ Report of the ICRP-Task Group on Lung Dynamics: Health Phys. 12 (1966) 173-207

/3/ W.S. SNYDER et a.: MIRD Pamphlet No. 5, J. Nucl. Med. 10, 5 (1969) Supplement 3

/4/ Report of the ICRP-Task Group on Reference Man: Pergamon Press (im Druck)

/5/ Recommendations of the ICRP, Publication 9, Pergamon Press (1966)

DISKUSSION

BAARLI: Haben die neuen Normen schon Eingang in deutsche Gesetze gefunden?

JACOBI: ICRP hat diese Arbeit noch nicht abgeschlossen. Ich glaube, keiner von Ihnen macht sich eine Vorstellung, was für eine schwierige und mühselige Arbeit es ist, für verschiedene Elemente und Radionuklide die gesammelten Erfahrungen zusammenzufassen und zu versuchen, sie unter einen Hut zu bringen. Deshalb hat sich dieser Bericht verzögert. Er wird hoffentlich nächstes Jahr komplett sein und dann also seinen Eingang in die Strahlenschutzverordnung finden. Dies wird also noch längere Zeit dauern.

JACOBS: In dem Dia, in dem Sie das Gesamtkörpercompartment-Modell gezeigt haben, waren die Transportwege nur als Einbahnstraßen angegeben. Ist das eine Abweichung vom alten Modell oder war das nur eine vereinfachte Darstellung?

JACOBI: Im Falle der Wege vom Atemtrakt zu den übrigen Teilen des Körpers ist es praktisch eine Einbahnstraße, aber natürlich nicht bei der Überführung vom Blut in die Organe.

HERRE: Hat sich die ICRP irgendeine Vorstellung gemacht, wie individuell die aufgenommene Aktivität bestimmt und nachgewiesen werden soll?

JACOBI: Das ist eine sehr gute Frage. Die ICRP fährt ja da immer etwas zweigleisig. Sie macht immer erst ein Konzept und erarbeitet neue Richtwerte und dann beauftragt sie eine Arbeitsgruppe, um die praktischen Konsequenzen dieser Richtwerte zu überdenken, das heißt also, wie kann man in der Praxis feststellen, daß also eine Person diesen Grenzwert nicht erreicht hat. Nun, in einer Beziehung wird dies neue Modell eine Vereinfachung darstellen, daß man eben die gesamte Aktivität, die dem Körper zugeführt wird, nur noch zu erfassen braucht, und das dürfte gerade bei der einmaligen Aufnahme durch externe Messung oder durch Ausscheidungsmessung möglich sein. Allerdings ergibt sich auch ein Nachteil; in dem alten Konzept war ja der Begriff des maximum permissible body burden enthalten, eine Größe, die gerade für Leute, die also Ganzkörpermessungen oder Ausscheidungsmessungen machen, ein sehr nützliches Hilfsmittel war, und das ist jetzt nicht mehr gegeben. Man muß also letzten Endes aus Messungen der Körperaktivität zu verschiedenen Zeiten den Zuwachs der aufgenommenen Aktivität ableiten. Ich glaube aber, daß in der Praxis man später einmal danach verfahren wird, daß ähnlich wie bei externer Bestrahlung, wo man eine Lebensalterdosis hat, hier auch eine Lebenszufuhr anwendet, d.h. also die gesamte, über eine gewisse Lebensdauer maximal zulässige zugeführte Aktivität erfaßt. Und dann kommt man, glaube ich, zu einer praktisch vernünftigen Regelung und ich glaube, das ist auch sinnvoll, denn gerade bei langlebigen Substanzen ist die Strahlenbelastung im Organ nicht kurzzeitig, sondern über einen langen Zeitraum verschmiert und man kann also gar nicht mehr Jahresdosen festlegen.

LENKEIT: Sie haben jetzt hier ein neues Modell für die früheren maximal zulässigen Konzentrationen in Luft vorgestellt. Werden auch solche neuen Modelle für die maximal zulässigen Konzentrationen in Wasser aufgestellt?

JACOBI: Nein, es wird in zukünftigen Empfehlungen keine Angaben über maximale zulässige Konzentrationen in Wasser geben, weil das - wie wir alle wissen, keine vernünftige Größe ist. Entscheidend ist die gesamte Aktivitätszufuhr auf oralem Wege zum Körper, ob es über das Trinkwasser oder über die Nahrung ist, das ist dabei egal.

JACOBS: Das neue Konzept mag sicherlich sauberer im Denken sein, aber für die Praxis sehe ich sehr viele Schwierigkeiten. Ich stelle mir einen Beschäftigten vor, der in einem Abfallager arbeitet und Abfälle konfektioniert. Aufgrund eines Zwischenfalles inhaliert er. Zunächst weiß man nichts über die Aktivität, über Teilchengröße weiß man schon gar nichts. Jetzt wird eine Body Counter-Messung gemacht und dann bekommt man vielleicht eine ziemlich große Anzahl von Nukliden, sagen wir Spaltprodukte, und noch nicht identifizierbare Peaks. Aktivitäten interessieren gar nicht mehr, die könnte man vielleicht gerade noch feststellen; aber jetzt soll man etwas über die Dosis in bestimmten Organen sagen, d.h. man muß diesen Menschen, selbst wenn er nur ein wenig über dem alten, früher zulässigen Wert liegt, über längere Zeit beobachten, um zu sehen, wie wandert die Aktivität von da nach dort. Das halte ich für sehr schwierig.

JACOBI: Ich glaube, da liegt ein Mißverständnis vor. Festgelegt sind ja die Aktivitäten, die zugeführt werden. Sie müssen ja gar nicht Dosiswerte berechnen. Früher hatten Sie eine Konzentration, die im Jahresmittel nicht überschritten werden durfte, und jetzt haben Sie einfach die jährlich zugeführte Aktivität. Ob die nun in einem kurzen Zeitraum im Jahr oder über das Jahr verschmiert zugeführt wird, das ist völlig gleichgültig. Für die Praxis ist nur die Aktivität entscheidend; sie brauchen keine Dosisberechnung zu machen, es sei denn, daß dieser Mann auch externer Bestrahlung ausgesetzt ist, und dann sind wir bei diesem alten schwierigen Problem: wie kombinieren wir externe und interne Bestrahlung?

SCHULZE-PILLOT: Die MZK-Werte werden doch dann jetzt durch die abgeleiteten MZK-Werte ersetzt. Gibt es da für irgendein Nuklid schon einen Vergleichswert?

JACOBI: Es gibt natürlich schon in dem vorläufigen Manuskript, das ausgearbeitet ist, solche Werte. Diese werden sicher noch einmal überarbeitet, sind also noch nicht endgültig und da sie noch nicht publiziert sind, kann man also jetzt offiziell nichts sagen, aber ich meine, wenn Sie die letzte Figur angeschaut haben, dann ist z.B. bei Plutoniumoxid für 1 µm AMAD 0,02 µCi/a. Ich meine, soviel kann man sagen, wenn man die alten MZK-Werte in maximal zulässige jährliche Aufnahme umrechnet, daß der Unterschied bei den meisten Nukliden gar nicht so erheblich ist. Und das zeigt eigentlich, das ist das Verblüffende, daß das früher angewandte, ganz einfache Konzept, gar nicht so schlecht war. Nur bei einigen Nukliden gibt es natürlich auch ganz erhebliche Abweichungen. Ich darf vielleicht noch eine Bemerkung machen. Die Frage der Abhängigkeit von der Teilchengröße wird in der Praxis in den meisten Fällen keine Rolle spielen, weil man sie nicht kennt. Und dann wird von der ICRP eben empfohlen, auf diesen Normwert von 1 µm AMAD zu beziehen.

BOGEN: Sie haben hier im letzten Dia eine Abhängigkeit der kritischen Organe als Funktion der Teilchengröße und dabei ergab sich, daß für ^{239}Pu die Lunge bis zu einer Teilchengröße von 3 µ das kritische Organ ist. Für Teilchen > 3 µ ist das kritische Organ das Skelett. Meine Frage ist: Wie können Teilchen > 3 µ in das Skelett wandern? Und in Erweiterung dieser Frage und das ist, glaube ich, ein wesentlicher Punkt des neuen Konzeptes, das Sie vorgetragen haben, der darin eingeht: wie genau sind solche Ausscheidungsfuntionen oder Abbaufunktionen von Konzentrationen in den einzelnen Organen bekannt, so daß man sie in die Rechnung einsetzen kann?

JACOBI: Nun, zur ersten Frage: Es ist natürlich nicht so, daß das Plutonium in Teilchenform in das Skelett übergeht. Es wird als Teilchen in der Lunge abgeschieden. Ein Teil davon wird gelöst, ein Teil wird in Teilchenform ins lymphatische System und von dort gelöst ins Blut überführt. Und auch die Aufnahme aus dem Magen-Darm-Trakt erfolgt in gelöster Form und der Bruchteil, der gelöst wird, ist natürlich außerordentlich klein. Deshalb gelangt ein kleiner Teil der inhalierten Aktivität in gelöster Form ins Skelett und wird dort eingebaut.

Zur zweiten Frage: Das ist eines der schwierigsten Probleme. Wenn Sie ein bestimmtes Nuklid betrachten, dann gibt es dazu vielleicht 30 verschiedene Publikationen, die manchmal mit verschiedenen chemischen Verbindungen, verschiedenen Teilchengrößen, verschiedenen Tierarten gemacht worden sind. Und diese weichen natürlich erheblich ab. Man kann das im Einzelfall jetzt gar nicht spezifizieren, wie groß diese Unterschiede sind, aber sie liegen, sagen wir einmal, im Bereich einer Größenordnung. Und man muß also praktisch aus diesen Werten eine Art Mittelwert-Retentionsfunktion bilden, oder - wenn man feststellt, daß in einer anderen Publikation das sehr viel sorgfältiger gemacht ist als in anderen -, daß man diese Werte dann zugrundelegt. Aber zweifellos ist das der entscheidende Fehler, der in das ganze Modell eingeht und das wird auch in Zukunft so sein. Man kann diese komplexen Vorgänge, die sich im Körper abspielen, gar nicht in so ein starres einfaches Modell einordnen, aber die Praxis zwingt uns dazu.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

ANFORDERUNGEN AN DIE OBERWACHUNG DER ABGABE RADIOAKTIVER STOFFE IN DER ABLUFT VON KERNKRAFTWERKEN AUS DER SICHT DER STRAHLENBELASTUNG UND DER NOTFALLVORSORGE

J. SCHWIBACH UND I. WINKELMANN

BUNDESGESUNDHEITSAMT, ABT. FÜR STRAHLENHYGIENE, MÜNCHEN-NEUHERBERG

1. Einleitung

Die Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken und ihre Überwachung werden im einzelnen im atomrechtlichen Genehmigungsverfahren geregelt. Die Vorschriften des Atomgesetzes und speziell der Ersten Strahlenschutzverordnung sind dabei entsprechend dem erreichten Stand von Wissenschaft und Technik interpretiert worden. Dieser Sachverhalt braucht hier nicht weiter dargelegt zu werden. Die heute beantragten oder genehmigten Abgaberaten radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken sind aus den Regelvorschriften der Strahlenschutzverordnung oder den Dosisgrenzwerten der Internationalen Strahlenschutz-Kommission (ICRP) nicht mehr direkt abzuleiten. In Auslegung des Grundsatzes der Beschränkung der Strahlenbelastung auf das Mögliche werden zusätzliche Sicherheitsfaktoren bei den grundlegenden Dosisrichtwerten in Rechnung gesetzt. Die technischen Richtwerte für die Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft werden mit Belastungsmodellen unter Berücksichtigung ökologischer Prozesse abgeleitet, wobei in konservativer Weise grundsätzlich jede mögliche Strahlenbelastung am Standort in Rechnung gesetzt wird, auch wenn der Standort zur Zeit derartige Charakteristiken nicht aufweisen sollte. Dies führt zu einer Herabsetzung der Abgaberaten und zu einer Angleichung des technischen Standards der Kernkraftwerke. Hauptprinzip ist heute, eine zweckmäßige Bauweise zu erreichen, die geringe Ableitungen garantiert und eine vollständige Überwachung der restlichen Abgabe radioaktiver Stoffe aus der Anlage unmittelbar beim Austreten aus den Kontrollbereichen gewährleistet. Andererseits werden trotzdem vorsorgliche Überwachungsmaßnahmen in der Umgebung zur Beweissicherung und insbesondere für den Fall störfallbedingter Freisetzungen gefordert.

2. Anforderungen aus der Sicht der Strahlenbelastung

Aus der Sicht der Strahlenbelastung resultiert in der ersten Linie die Anforderung, die Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft so zu überwachen, daß eine genügende Aussage über die zusätzliche Strahlenbelastung der Bevölkerung möglich ist. Entsprechend der Strahlenschutzverordnung ist die Überwachung auf eine Ermittlung der Aktivitätskonzentration radioaktiver Stoffe in der Abluft abgestellt. Dies ist meßtechnisch problematisch, wenn wechselnde Gemische von Radionukliden vorliegen. Berechnungen der Strahlenbelastung erfordern grundsätzlich die Kenntnis der einzelnen Radionuklide. Dasselbe gilt für die Erfassung erhöhter Strahlenbelastungen infolge ökologischer Prozesse in der Umgebung.

*) Bundesgesundheitsamt, Abt. für Strahlenhygiene, 8042 Neuherberg bei München, Ingolstädter Landstr. 1

Aussagen über die Nuklidzusammensetzung in der Abluft können auch aus innerbetrieblichen Messungen gewonnen werden, sowie auf Betriebserfahrungen und spezielle Untersuchungen abgestützt werden. Der meßtechnische Aufwand der Überwachung am Kamin muß wegen Fragen der Strahlenbelastung keineswegs bis zur kontinuierlichen Einzelmessung möglichst aller vorkommenden Radionuklide getrieben werden. Für manche Nuklide oder Nuklidgruppen ist kontinuierliche Probenahme mit periodischer Messung oder eine Stichprobenüberwachung ausreichend. Allein aus Gründen der Nachweisgrenze können Anreicherungsmeßverfahren erforderlich sein. Man muß hier auch die Zeitskala der möglicherweise relevanten Effekte berücksichtigen. Z.B. muß die Begrenzung der Strahlenbelastung infolge Ablagerung langlebiger Radionuklide in der Umgebung auf mehrere Jahrzehnte Betriebszeit sichergestellt werden. Ein Überwachungsturnus von einem Jahr ist dann sicherlich ausreichend.

Aufgrund der technischen Gegebenheiten und bisherigen Betriebserfahrungen werden bei der Überwachung folgende Nuklidgruppen unterschieden:

1. Radioaktive Gase (Spaltgase aus Abgasanlage und Leckagen; Aktivierungsgase)

2. Kurzlebige radioaktive Aerosole (Rb-88, Rb-89 und Cs-138)

3. Radiojod (J-131 und kurzlebige Jodisotope)

4. Langlebige radioaktive Aerosole (z.B. Fe-, Mn- und Co-Isotope; Sr-89 und Sr-9o; und andere)

5. Radioaktive Sondernuklide (z.B. H-3; Aktiniden)

Eine einheitliche und lückenlose Berichterstattung über die Emission dieser Nuklidgruppen in der Abluft von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik liegt nicht vor. In Zusammenarbeit mit dem Bundesgesundheitsamt wollen die Betreiber der Kernkraftwerke jetzt ihre Angaben oder Unterlagen über die bisherige Betriebszeit der Kernkraftwerke nach obiger Einteilung zusammenfassen.

Weiterhin sind nur lückenhafte Angaben über die Nuklidzusammensetzung der radioaktiven Gase und der langlebigen radioaktiven Aerosole sowie von kurzlebigen radioaktiven Aerosolen und von radioaktiven Sondernukliden veröffentlicht. Im Auftrage des Bundesministeriums des Innern und in Zusammenarbeit mit den Betreibern von Kernkraftwerken werden jetzt diesbezügliche Daten vom Bundesgesundheitsamt ermittelt*). Über diese Untersuchungen kann hier nicht näher berichtet werden. Ab dem nächsten Jahr werden jedoch für die beteiligten Kernkraftwerke aus diesen Untersuchungen Daten über die Nuklidzusammensetzung der langlebigen radioaktiven Aerosole und der radioaktiven Gase sowie Meßwerte über radioaktive Sondernuklide in der Abluft veröffentlicht werden können.

---

*) Arbeiten im Rahmen des vom Bundesministerium des Innern bezuschußten Forschungsvorhabens "Erhebungen und Studien über die Überwachung der radioaktiven Emissionen in der Umgebung von Kernkraftwerken und die Notfallplanung bei kerntechnischen Anlagen"

Der nächste Schritt muß die Berechnung von Organdosen bei den anzusetzenden Belastungswegen unter Berücksichtigung möglicher ökologischer Prozesse in der Umgebung sein. Die Erstellung der erforderlichen Rechenprogramme und die Zusammenarbeit mit hieran interessierten Stellen (Betreiber von Kernkraftwerken, Forschungszentren, Institut für Reaktorsicherheit und TÜV-Rheinland)sind ebenfalls kürzlich eingeleitet worden.

In dem Maße, in dem diese Untersuchungen und Studien die erforderlichen Daten erbringen, können die aus der Sicht der Strahlenbelastung zu stellenden Anforderungen bei einer Vielzahl von Kernkraftwerken präzisiert werden. Man muß auch bedenken, daß bis jetzt unsere wenigen Kernkraftwerke bei ihren niedrigen Abgaberaten einen derartigen Aufwand nicht gerechtfertigt hätten.

3. Anforderungen aus der Sicht der Notfallvorsorge

Aus der Sicht der Notfallvorsorge resultieren in erster Linie 3 Anforderungen an die Überwachung.

Erstens sollen erhöhte störfallbedingte Freisetzungen frühzeitig erkannt werden, um die erforderlichen Gegenmaßnahmen unverzüglich einzuleiten. Hierbei ist die Möglichkeit eines nicht erkannten Entweichens radioaktiver Stoffe aus der Kontrolle in der Anlage mit abzudecken.

Zweitens soll die meßtechnische Ausrüstung auch unter Unfallbedingungen eine genügende Aussage über Art und Menge der freigesetzten radioaktiven Stoffe gestatten.

Drittens soll der Betreiber zumindest in den ersten Stunden einer störfallbedingten erhöhten Freisetzung in der näheren Umgebung des Kernkraftwerkes alle Messungen durchführen, die zu einer ersten Beurteilung einer Strahlengefährdung der Bevölkerung erforderlich sind. Etwaige Entscheidungen über akute Notfallmaßnahmen in der Umgebung müssen auf vorbereitete und sofort einsetzende Messungen abgestützt werden können. Dies kann in den ersten Stunden eines Störfalles nur der Betreiber der Kernkraftwerke gewährleisten. Es versteht sich am Rande, daß bei Störfällen jede andere Meßinformation aus der Instrumentierung innerhalb der Anlage mit herangezogen werden muß.

Unter Gesichtspunkten der Notfallvorsorge ist es zweckmäßig, in der Umgebung Referenzpunkte festzulegen, deren Radioaktivitätspegel bekannt ist. Diese Stellen sollen in regelmäßigen Abständen kontrolliert werden, um im Störfall auch kleinere Aktivitätserhöhungen feststellen zu können. Dies stellt weiterhin die notwendige Übung des Personals sicher und gewährleistet eine hohe Verläßlichkeit der Maßnahmen im Notfall.

Bei einer erhöhten störfallbedingten Freisetzung stellen sich verschiedene Meßaufgaben. Die Strahlung aus der Wolke kann durch einen mobilen Meßtrupp in der Umgebung gemessen werden. Ähnlich ist auch die Strahlenbelastung durch abgelagerte radioaktive Stoffe vor Ort meßbar. Radionuklide, die bei Inhalation zu einer erhöhten Strahlenbelastung des Menschen führen, sind nur durch Messung ihrer Aktivitätskonzentration in der Atemluft zu erfassen. Die hierbei wesentlich beitragenden Radionuklide müssen jedoch identifiziert werden. Andererseits ist bei Radionukliden, die über ökologische Prozesse zu einer noch höheren Strahlenbelastung des Menschen bei Ingestion führen können, genügend Zeit für die erforderlichen Messungen verfügbar.

4. Überwachung der Emission am Kamin

Für die Überwachung der Emissionen am Kamin kommen in erster Linie folgende Meßverfahren in Frage:

1. kontinuierliche Messung der Aktivitätskonzentration der Abluft direkt im Kamin oder im Teilstrom über Probenahmeleitung, wenn die Konzentration bei der Abgabe oder die momentane Abgabe festzustellen ist,

2. kontinuierliche Probenahme am Kamin und spätere periodische Messung, wenn die genaue Kenntnis der zeitlichen Verteilung der Abgabe ohne Bedeutung ist oder aus meßtechnischen Gründen ein Anreicherungsmeßverfahren erforderlich ist,

3. diskontinuierliche Probenahme am Kamin (gegebenenfalls unterstützt durch innerbetriebliche Überwachungsmessungen) zur Ermittlung einzelner Nuklidgruppen oder Radionuklide und

4. nur innerbetriebliche Überwachung.

Mit Hilfe der Überwachungseinrichtungen am Kamin ist nicht nur nachzuweisen, daß die genehmigten Betriebsbedingungen eingehalten werden. Es müssen etwaige störfallbedingte Freisetzungen schnell erkannt und zuverlässig gemessen werden können. Weiterhin ist eine ausreichende Information über die mögliche Strahlenbelastung der Bevölkerung zu gewährleisten. Daher ist die Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft generell durch direkt anzeigende Messungen festzustellen. Für geringe Beimengungen bestimmter längerlebiger Radionuklide, die über ökologische Vorgänge zu einer erhöhten Strahlenbelastung des Menschen führen können, genügt jedoch die Bilanzierung.

Als Beitrag zur Erarbeitung einheitlicher Meßvorschriften ist in Zusammenarbeit mit den Betreibern von Kernkraftwerken die folgende Zusammenstellung der Meßaufgaben, meßtechnischen Einrichtungen und Meßverfahren zur Überwachung der Abgabe radioaktiver Stoffe mit der Abluft am Kamin von Kernkraftwerken mit leichtwassergekühltem Reaktor erarbeitet worden /1/:

I. Meßaufgaben*)

1) Ermittlung der abgegebenen Aktivität radioaktiver Stoffe in Luft entsprechend den Spezifikationen in der atomrechtlichen Betriebsgenehmigung.

2) Feststellung erhöhter Aktivitätskonzentrationen oder pro Zeiteinheit abgegebener Aktivitäten radioaktiver Stoffe in Luft (z.B. bei Störfällen).

---

*) Nähere Erläuterungen zu den Meßaufgaben der Überwachung am Kamin gibt Tabelle I.

II. Meßtechnische Einrichtungen

1) Zwei voneinander unabhängige Meßstellen zur kontinuierlichen Messung der Aktivitätskonzentration radioaktiver Gase in der Abluft und Anzeige der Meßwerte in der Warte.

2) Eine Meßstelle zur kontinuierlichen Probenahme auf Sammelfilter vor Ort und wöchentliche Messung des Anteils längerlebiger radioaktiver Aerosole und gasförmiger Radiojodverbindungen im Labor.

3) Eine Meßstelle zur diskontinuierlichen Probenahme auf Sammelfilter vor Ort und Messung des Anteils kurzlebiger radioaktiver Aerosole oder von radioaktiven Sondernukliden wie H-3 in Labor

III. Meßverfahren

1) Messung der radioaktiven Gase

a) Probenahme aus Kamin durch Entnahme eines Teilstromes

b) Messung in geeichter Meßkammer, die durch Faserfilter vor Kontamination durch Aerosole geschützt ist

c) Messung der Zählrate mit einem Detektor, der es gestattet, eine Nachweisgrenze von $2 \cdot 10^{-7} Ci/m^3$ zu erreichen

d) zusätzliche Messung mit spezieller Meßanordnung (z.B. abgeschirmter oder wenig empfindlicher Detektor) zur Erzielung eines hohen Meßbereiches

e) Registrierung der Meßwerte auf Schreiber und Fernanzeige in der Warte

f) Auslösung von Warnmeldungen und betrieblichen Sofortmaßnahmen (z.B. Lüftungsabschluß) bei Erreichen festgelegter Grenzwerte

g) Messung des Luftdurchsatzes durch den Kamin mit Registrierung auf Schreiber.

2) Messung langlebiger radioaktiver Aerosole

a) Kontinuierliche Probenahme mit Aerosolfilter durch Entnahme eines Teilstromes über eine kurze Probenahmeleitung.

b) Die Sammelzeit beträgt mindestens 1 Woche und maximal 3 Monate (zunächst ist jedoch von einem wöchentlichen Sammelzeitraum auszugehen).

c) Messung im Labor.

3) Messung gasförmiger Radiojodverbindungen

a) Kontinuierliche Probenahme mit Jodfilter nach dem Aerosolfilter für die langlebigen radioaktiven Aerosole (nach III.2.a)

b) Filter hält auch organische Jodverbindungen zurück

c) Messung im Labor nach einer Woche Sammelzeit

4) Messung kurzlebiger radioaktiver Aerosole*)

a) Diskontinuierliche Probenahme mit Aerosolfilter durch Entnahme eines Teilstromes aus Kamin über eine kurze Probenahmeleitung

b) Auswertung im Labor

c) Meßhäufigkeit abhängig von Betriebsbedingungen, in der Regel nur Stichprobenanalyse

5) Messung von radioaktiven Sondernukliden

a) Diskontinuierliche Probenahme mit geeignetem Sammler durch Entnahme eines Teilstromes aus Kamin nach Bedarf**)

b) Messung im Labor

c) Meßhäufigkeit abhängig von Betriebsbedingungen, in der Regel nur Stichprobenanalyse.

Anmerkung:

Der Text über die Messung der kurzlebigen Radioaerosole in diesem Vorschlag wird vermutlich in Kürze geändert werden können. Entscheidend ist dabei die Frage, wie sich der Pegel kurzlebiger Aerosole (im wesentlichen Rubidium-88, -89 und Cäsium-138) von dem Pegel natürlicher Radioaktivität in der Anlagenabluft unterscheidet. Zur Zeit werden Meßunterlagen hierüber ausgewertet. Ebenso sind Vorschläge für eine genauere Spezifikation für die Messung von Radiojod in Kürze zu erwarten.***)

---

*) Messung der kurzlebigen Aerosole erfolgt z.Zt. im Prinzip durch den ersten Detektor des Schrittfiltergerätes; dieses Verfahren soll zunächst noch beibehalten werden.

**) Ersatzweise auch Messung in den Betriebsmedien

***) Vgl. Vortrag von Wilhelm, dieses Kolloquium

Im Vergleich zu den obigen Vorschlägen enthält die neu erschienene Sicherheitsrichtlinie Nr. 21 der amerikanischen Atomenergiebehörde (US-AEC) "Messung und Berichterstattung von Ableitungen aus Kernkraftwerken" folgende Forderungen*):

1. Halbjährlich ist anzugeben: Menge jedes der wichtigen Radionuklide, die abgegeben wurden, und andere Informationen, mit deren Hilfe die jährlichen potentiellen Strahlendosen für die Öffentlichkeit abgeschätzt werden können (da sich die spezifische Zusammensetzung der radioaktiven Stoffe in Abhängigkeit verschiedener Betriebsfaktoren ändern kann, sollten die einzelnen Radionuklide in den Ableitungen identifiziert und gemessen werden).

2. Messung der Edelgase und des Tritiums kontinuierlich. Dabei Isotopenanalyse der Gase monatlich. Aufzeichnung der vorherrschenden meteorologischen Bedingungen (Windgeschwindigkeit, Windrichtung und atmosphärische Stabilität) in Intervallen von einer Stunde. Die Richtlinie enthältjedoch den Zusatz, daß für Kernkraftwerke, die kontinuierlich sehr niedrige Mengen ableiten, die stündlichen meteorologischen Messungen nur notwendig sind, bis sinnvolle mittlere meteorologische Parameter vorliegen. (Bei den deutschen Kernkraftwerken dürften dementsprechend stündliche meteorologische Aufzeichnungen zwecks Abschätzung der Strahlendosis durch die betrieblichen Ableitungen entbehrlich sein).

3. Die Empfindlichkeit der Isotopenanalyse der Gase soll gestatten, mindestens 1o μCi/s (≙3oo Ci/a) für jedes Nuklid, das kontinuierlich abgeleitet wird, zu messen. Die Richtlinie enthält jedoch die Einschränkung, daß das vielleicht nicht in jedem Falle möglich ist. Dann kann auch auf Berechnungen des Anteils der einzelnen Nuklide zurückgegriffen werden (Die in der BRD angestrebte Nachweisgrenze für die Gase von $2 \cdot 1o^{-7}$ Ci/m^3 am Kamin entspricht bei $2 \cdot 1o^5$ m^3/h 4oo Ci/a. Diese Nachweisgrenze bezieht sich jedoch auf die Aktivität des Gasgemisches).

4. Die Bestimmung von Radiojod soll mittels kontinuierlicher Probenahmevorrichtung und wöchentlicher Messung vorgenommen werden. Empfindlichkeit der Messung $1o^{-4}$ μCi/s (= 3 mCi/a).(Zum Vergleich: die in der BRD angestrebte Nachweisgrenze von $1o^{-12}$ bis $1o^{-13}$ Ci/m^3 für Radiojod gibt bei $2 \cdot 1o^5$ m^3/h 2 bis o,2 mCi/a).

5. Probenahme der Aerosole kontinuierlich mit Schwebstoffilter. Die Messung beschränkt sich auf Nuklide mit Halbwertszeiten über 8 Tage (!). Geforderte Empfindlichkeit $1o^{-4}$ μCi/s für Gamma-Strahler (= 3mCi/a)und $1o^{-5}$ μCi/s (= o,3 mCi/a) für die Brutto-Alpha-Aktivität, Brutto-Beta-Aktivität sowie Sr-89 und Sr-9o. Die Messung der Faserfilter erfolgt wöchentlich hinsichtlich der Brutto-Beta-Aktivität und der Nuklide Barium-14o, Lanthan-14o sowie Jod-131. Weiterhin monatliche Ermittlung der wichtigsten Gamma-Strahler und vierteljährlich von Sr-89 und Sr-9o. Brutto-Alpha-Aktivität vierteljährlich an einer Probe, die wenigstens 1 Woche exponiert war.(Hinsichtlich der Beschränkung auf längerlebige Nuklide in den Aerosolen ist die Vorschrift also ähnlich wie die Vorschläge in der BRD. Barium 14o, Lanthan-14o und Jod-131 auf den

---

*) In der folgenden Darstellung ist auf den teilweise abweichenden Wortlaut der Vorschriften für Kernkraftwerke, bei denen die radioaktiven Gase <u>diskontinuierlich</u> aus der Sicherheitshülle abgegeben werden, nicht eingegangen.

Schwebstoffiltern gesondert wöchentlich zu messen, könnte bei geringen Abgaberaten entbehrlich sein. Mehr Daten sind jedoch notwendig, dies abschließend zu entscheiden. Gammaspektrometrie der Filter etwa monatlich ist auch in der BRD vorgesehen. Bezüglich Sr-89 und Sr-9o fehlen vielleicht noch Daten zur Beurteilung der Meßhäufigkeit. Die Messung der Brutto-Alpha-Aktivität vierteljährlich erscheint eher verfehlt angesetzt, besser wäre dann Messung der wesentlichen Aktiniden).

Bei der weiteren Formulierung der Vorschläge für einheitliche Meßvorschriften zur Überwachung der Emission am Kamin sollen die Ergebnisse einiger bereits eingeleiteter Untersuchungen*) noch mit berücksichtigt werden. Insbesondere werden in Zusammenarbeit mit den Betreibern von Kernkraftwerken und der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung in Neuherberg seit Juli 1973 zusätzliche Messungen von Tritium in der Abluft und von Alpha-Strahlern in Betriebsmedien und in der Abluft durchgeführt. Auch ein Arbeitsprogramm für Untersuchungen über die Nuklidzusammensetzung der Gase in der Abluft von Kernkraftwerken ist jetzt eingeleitet worden. Weiterhin sind vergleichende Messungen der Aktivitätskonzentration radioaktiver Gase mit einer Meßkammer des Bundesgesundheitsamtes am Kamin der Kernkraftwerke begonnen worden. Die Meßkammer ist gegenwärtig mit einem Großflächenzähler für die Beta-Messung und einem NaJ-Kristall für die Gamma-Messung ausgerüstet.

5. Überwachung der Immissionen in der Umgebung

Die Überwachung der Immissionen in der Umgebung durch den Betreiber der Kernkraftwerke ergänzt seine Überwachung der Emission am Kamin. Sie ist bei geringen Abgaberaten lediglich aus Gründen einer zusätzlichen Beweissicherung und der Notfallvorsorge erforderlich. Insoweit vervollständigt sie die Kontrolle über die Abgabe radioaktiver Stoffe aus dem Kernkraftwerk vor allem für den Fall eines nicht erkannten Entweichens radioaktiver Stoffe aus der Anlage oder bei erhöhter störfallbedingter Freisetzung. Sie erstreckt sich in erster Linie auf die nähere Umgebung und erfaßt dort die Bereiche "Luft und Niederschläge", "Boden und Bewuchs", "Ernährungsketten auf Land", "Gewässer und Grundwasser", sowie "Ernährungsketten in Wasser". Ihre Aufgabenstellung reicht von der Beweissicherung vor der Inbetriebnahme, von der Messung der Verteilung der radioaktiven Stoffe in den Transportmedien Luft und Wasser sowie ihrer Ablagerung in der Umgebung und Anreicherung über Ernährungsketten bis zum Auffinden und Beurteilen störfallbedingter Freisetzungen.

Die Meßprogramme der Umgebungsüberwachung sollen auch im Hinblick auf die Information der Öffentlichkeit aussagekräftig sein. Gerade deswegen ist es notwendig, die Überwachung auf die möglichen kritischen Stellen zu konzentrieren. Bei geringen Abgaberaten kann man sich unter Gesichtspunkten des Normalbetriebes aber auf einige wenige ausgewählte repräsentative Stellen in der näheren Umgebung beschränken. Dabei sollen die Meßergebnisse der Umgebungsüberwachung in der Nähe der Kernkraftwerke gut vergleichbar mit den Meßergebnissen der Meßstellen für die allgemeine Überwachung der Umweltradioaktivität (z.B. des Deutschen Wetterdienstes) sein. Im Falle erhöhter störfallbedingter Freisetzungen schließlich ist der Einsatz eines mobilen Meßtrupps optimal,

*) Arbeiten im Rahmen des bereits erwähnten, vom Bundesministerium des Innern bezuschußten Forschungsvorhabens

wenn er gut ausgerüstet und mit Meßverfahren und der Umgebung durch ständige Übung vertraut ist.

Andererseits ist die langfristige Kontrolle der künstlichen Umweltradioaktivität und der dadurch bedingten Strahlenbelastung der Bevölkerung mehr übergeordnete Aufgabe wissenschaftlicher Institutionen, da mit zunehmender Zahl von Kernkraftwerken eine eindeutige Zuordnung etwaiger Änderungen der Umweltradioaktivität auf ein bestimmtes Kernkraftwerk im allgemeinen nicht möglich ist.

In Zusammenarbeit mit Betreibern der Kernkraftwerke sind die folgenden Vorschläge zur Erstellung einheitlicher Meßprogramme für die Umgebungsüberwachung bei Kernkraftwerken mit leichtwassergekühltem Reaktor ausgearbeitet worden/2/:

A) Beweissicherung vor der Inbetriebnahme, Aufstellung des Routinemeßprogramms und Erprobung der Überwachung

I. Luft

a) Meßfahrten wie im späteren Routinemeßprogramm vorgesehen

b) Inbetriebnahme der Meßstationen mit Meßprogramm des späteren Routineprogramms

II. Boden und Bewuchs

a) Nach örtlichen Gesichtspunkten Festlegung der Meßpunkte, die später bei Bedarf oder zu Vergleichszwecken von Interesse sein könnten

b) Messungen wie im späteren Routinemeßprogramm vorgesehen

III. Ernährungsketten auf Land

a) Nach örtlichen und ökologischen Gesichtspunkten Festlegung der Stellen, bei denen später bei Bedarf oder zu Vergleichszwecken die Probenahme von landwirtschaftlichen Produkten von Interesse sein könnte

b) Messungen wie im späteren Routinemeßprogramm vorgesehen

IV. Gewässer und Grundwasser

a) Messungen wie im späteren Routinemeßprogramm vorgesehen

V. Ernährungsketten im Wasser

a) Nach örtlichen und ökologischen Gesichtspunkten Festlegung der Stellen, bei denen später bei Bedarf oder zu Vergleichszwecken Stichproben aus dem Vorfluter entnommen werden sollen.

B. Routinemeßprogramm

I. Luft

Art der Überwachung	Meß- bzw. Probenahmestelle	Häufigkeit
1. kontinuierliche Messung der Gamma-Strahlung aus der Luft	2 Meßstationen: Hauptbeaufschlagungsgebiet; zweite Hauptwindrichtung-wenn zweckmäßig in Höhenlage	kontinuierlich
2. kontinuierliche Sammlung der Aerosolaktivität der Luft auf Faserfilter	ebenso	wöchentlich Beta-Aktivität, vierteljährlich Gamma-Spektrometrie
3. kontinuierliche Sammlung von Radiojod auf Aktivkohlepatrone	ebenso	monatlich J-131
4. Gamma-Dosis aus der Luft, integrale Messung mit Festkörperdosimetern	ausgewählte Stellen in der Umgebung	jährlich
5. periodische Messung von Gamma-Strahlung, Aerosolaktivität und Radiojod	Meßpunkte lt. Störfallmeßprogramm im jeweiligen Windsektor	monatlich 1 Meßfahrt

II. Boden und Bewuchs

Art der Überwachung	Meß- bzw. Probenahmestelle	Häufigkeit
1. Messung der Ablagerung radioaktiver Stoffe auf dem Boden	Meßpunkte lt. Störfallmeßprogramm im jeweiligen Windsektor	monatlich 1 Meßfahrt

III. Ernährungsketten auf Land

Art der Überwachung	Meß- bzw. Probenahmestelle	Häufigkeit
1. Kuhmilchstichproben (Beta-Aktivität, Gamma-Spektrometrie u. J-131)	beim nächsten Erzeuger, vorzugsweise im Hauptbeaufschlagungsgebiet	3 mal während der Grünfutterzeit
2. Kuhmilchmischprobe (Beta-Aktivität, Gamma-Spektrometrie u. J-131)	bei örtlicher Milchversorgung	halbjährlich (1 mal während der Grünfutterzeit)
3. Stichproben von örtlich wichtigen landwirtschaftlichen Produkten (Beta-Aktivität, Gamma-Spektrometrie)	beim Erzeuger, vorzugsweise im Hauptbeaufschlagungsgebiet	jährlich

IV. Gewässer und Grundwasser

Art der Überwachung	Meß- bzw. Probenahmestelle	Häufigkeit
1. kontinuierliche Mischprobe des Wassers (Beta-Aktivität und Gamma-Spektrometrie)	in Einlauf- und Auslaufkanal des Kernkraftwerkes	monatlich
2. Stichproben von Wasser (Beta-Aktivität und Gamma-Spektrometrie)	im Grundwasserbereich liegender Brunnen, Wasserwerk oder See	jährlich

V. Ernährungsketten im Wasser

Art der Überwachung	Meß- bzw. Probenahmestelle	Häufigkeit
1. Entnahme von Stichproben von Wasser mit Schlamm, Plankton und Schwebstoffen (Beta-Aktivität und Gamma-Spektrometrie)	Vorfluter	halbjährlich

Anmerkung:

Sondernuklide wie H-3 und Alpha-Strahler sind hier nicht aufgenommen; zunächst Messung, wo erforderlich erscheinend, nach Lage des Falls.

C. Störfallmeßprogramm

1. Messung der Gamma-Strahlung aus der Luft, Meßfahrt zu festgelegten Meßpunkten in der jeweiligen Windrichtung (z.B. Messung 1 m über Boden)

2. Messung der Aerosolaktivität mit Faserfilter, ebenso (z.B. 1o min Sammelzeit und Messung der Beta-Aktivität mit Großflächenzähler oder spätere Messung im Labor)

3. Messung von Radiojod mit Aktivkohlefilter, ebenso (z.B. 1o min Sammelzeit wie bei 2.)

4. Messung der Ablagerung auf dem Boden, ebenso (z.B. mit Großflächenzählrohren 5 cm über Boden)

5. Entnahme von Bewuchsproben, ebenso (z.B. für gamma-spektrometrische Untersuchung im Labor)

Anmerkung:

Die später einsetzenden erweiterten Überwachungsmessungen bei Störfällen, insbesondere auch in weiter entfernten Gebieten, richten sich nach der Lage des Falls und erfolgen auf Anordnung der Einsatzleitung.

5. Schlußbemerkung

Eine Detaillierung der oben dargelegten und kurz begründeten Vorschläge für einheitliche Meßprogramme und Meßvorschriften für die Überwachung der Emission radioaktiver Stoffe am Kamin und der Immission in der Umgebung von Kernkraftwerken ist erforderlich. Sie soll auf der Grundlage der hier referierten Statusberichte und der erwähnten laufenden Untersuchungen in Zusammenarbeit mit allen Beteiligten und interessierten Stellen erfolgen.

Tabelle I: Aktivitätskonzentration radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken und Jahresabgaberate bei einem Kamindurchsatz von $2 \cdot 10^5 m^3/h$ (1200 MWe DWR) bzw. $6 \cdot 10^5 m^3/h$ (1200 MWe - SWR)

Ci/m^3	Ci/a	Anmerkungen	MZK-Werte der Strahlenschutzverordnung (Ci/m^3)
$> 10^{-4}$	$2-6 \cdot 10^5$	Störfallbereich; Grenze heutiger Genehmigungen für Gase	
10^{-5}	$2-6 \cdot 10^4$	Betriebswerte Gase	
10^{-6}	$2-6 \cdot 10^3$		$3 \cdot 10^{-6}$ Kr-85 u. Xe-133 $2 \cdot 10^{-6}$ H-3 $1 \cdot 10^{-6}$ Xe-135
10^{-7}	$2-6 \cdot 10^2$	Nachweisgrenze Gase am Kamin	$4 \cdot 10^{-7}$ Ar-41 $2 \cdot 10^{-7}$ Kr-87
10^{-8}	$2-6 \cdot 10$	Betriebswerte kurzlebiger Aerosole?	
10^{-9}	2-6	Maximalwerte der natürlichen Radioaktivität im Freien	$3 \cdot 10^{-9}$ Co-60 $2 \cdot 10^{-9}$ J-131
10^{-10}	$2-6 \cdot 10^{-1}$	Betriebswerte für J-131 und langlebige Aerosole	$1 \cdot 10^{-10}$ Sr-90
10^{-11}	$2-6 \cdot 10^{-2}$		$1 \cdot 10^{-11}$ Gemische ohne Alpha-Strahler
10^{-12}	$2-6 \cdot 10^{-3}$	Nachweisgrenze für langlebige Aerosole	
10^{-13}	$2-6 \cdot 10^{-4}$	derzeitiger weltweiter Falloutpegel	$6 \cdot 10^{-13}$ Pu-239 $4 \cdot 10^{-13}$ beliebiges Gemisch
10^{-14}	$2-6 \cdot 10^{-5}$	Einzelnuklide im Fallout	

Literatur:

/1/ J. Schwibach, I. Winkelmann u. H. Riedel, "Bericht über die Überwachung der Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik. Teil I: Überwachungseinrichtungen am Kamin von Kernkraftwerken mit leichtwassergekühltem Reaktor", Bericht STH - 2/73, Bundesgesundheitsamt, Abteilung für Strahlenhygiene, Neuherberg bei München, Mai 1973

/2/ J. Schwibach, I. Winkelmann u. H. Riedel, "Bericht über die Überwachung der Abgabe radioaktiver Stoffe in der Abluft von Kernkraftwerken in der Bundesrepublik. Teil II: Umgebungsüberwachung bei Kernkraftwerken mit leichtwassergekühltem Reaktor", Bericht STH-5/73, Bundesgesundheitsamt, Abteilung für Strahlenhygiene, Neuherberg bei München, Oktober 1973

Den an den gemeinsamen Besprechungen im Bundesgesundheitsamt beteiligten Betreibern von Kernkraftwerken und Sachverständigen, insbesondere den Herren Aurand, Grau, Jacobi und Schröder, danken wir für Anregungen und Diskussion.

DISKUSSION

STEPHAN: Ich hätte gerne etwas über Abluftüberwachung am Kamin gesagt. Mir scheinen zwei Gasmeßstellen bei einem Kernkraftwerk als nicht notwendig und zwar deswegen, weil bei einem Kernkraftwerk auch noch in den einzelnen Abluftsträngen gemessen wird. Es ist viel wichtiger, die Bilanz der Messungen in den einzelnen Abluftsträngen zu dem Endmeßgerät am Kamin zu bilden, denn es kann Ihnen passieren, daß dort Störstrahlungen vorliegen. Wenn Sie zwei Geräte haben, dann messen zwei Geräte eine Störstrahlung vielleicht etwas unterschiedlich. Und dann vielleicht noch eine kurze Bemerkung zu dem Schrittfiltergerät: Da darf man die Edelgasabsorption nicht vergessen.

SCHWIBACH: Zu Punkt 1 möchte ich sagen: Das ist natürlich interpretationsfähig. Wenn Sie, wie es ja beim Druckwasserreaktor der Fall ist, in jedem Abluftstrang sowieso schon eine eigene Meßstelle haben, dann könnte man also die Redundanzforderung damit als erfüllt ansehen. Das würde ich aber der Behörde im Detail überlassen. Zu Punkt 2 wegen der Edelgasabsorption auf unserem Schrittfiltergerät: Ich habe dies ausgelassen, weil wir selbst noch zu wenig darüber wissen. Als Chemiker kann ich es also nicht ganz glauben, daß das bis in solche Mengen gehen soll, daß es so stark überdeckt. Aber wir werden uns das ansehen.

EDELHÄUSER: Ich kann nicht auf alle Punkte eingehen, zu denen ich persönlich etwas bemerken möchte, ich möchte nur auf eines hinweisen: Auch bei uns in der Bundesrepublik ist natürlich, wie bei den Amerikanern, die Bestimmung der Dosis in der Umgebung das oberste Ziel. Daher werden wir auch bei der Abgabeüberwachung wohl mit

ähnlichen Maßstäben messen müssen. Ich würde nicht von vornherein sagen: Aus der Tatsache heraus, daß die Abgabe sehr niedrig ist und daß wir abschätzen können, daß die Strahlenbelastung ebenfalls sehr niedrig sein wird, können wir völlig auf die Bilanzierung verzichten und damit darauf die Voraussetzung für eine genaue Dosisbestimmung zu schaffen.

SCHWIBACH: Ich habe hier eine kurze Bemerkung dazu. Selbstverständlich wollen wir auch Aussagen über die Strahlenbelastung machen, da sind wir ja völlig im Programm abgesprochen. Aber ich muß meinen Hinweis erläutern, daß bei den Amerikanern unglücklicherweise in der Sicherheitsrichtlinie 21 steht: stündliche Messung der meteorologischen Parameter, Windrichtung, Windgeschwindigkeit, Temperaturgradient zur Festlegung der Ausbreitungsklasse und zur exakten Dosisberechnung am Jahresende. Sie haben also am Jahresende eine Tabelle mit diesen drei Faktoren, aus denen der Meteorologe den Ausbreitungsfaktor ermitteln kann und eine Tabelle der Stundenabgaben. Und das in Bereichen unter 0,5 mrem pro Jahr! Das kann ich nicht verstehen.

HÜBSCHMANN: Herr Schwibach, ich habe eine Frage zur Abluftüberwachung und zwar zum Strontiumproblem. Sie sagen wenig dazu und das hängt wohl auch mit der noch nicht voll etablierten StrontiumÜberwachung in der Bundesrepublik zusammen. Immerhin wird von amerikanischen Reaktoren eine Strontiumabgabe in einem Umfang berichtet, daß dann das Strontium zur entscheidenden Inhalationsbelastung unter den Aerosolnukliden führt. Deshalb meine Frage an Sie: Gibt es schon routinemäßige Analysen und sind die tatsächlichen Nachweisgrenzen bei unseren in der Bundesrepublik angewandten Verfahren ausreichend niedrig, um auch noch solche Strontiumabgaben zu erfassen, die dann bei der Berechnung der Dosisbelastung zu einem nennenswerten Beitrag führen würden.

SCHWIBACH: Ja, über den Daumen gesagt, ich kann mir nicht vorstellen, daß Strontium so stark in der Abluft auftritt, daß es überwiegende Bedeutung hat. Ich habe aber nicht davon gesprochen, weil mir hier zu wenige Daten vorliegen. Ich bin ganz Ihrer Meinung, das müßten wir schon etwas genauer ansehen. Nur könnte ich das jetzt also nicht begründen, ich brauche Analysendaten.

STEPHAN: Ich hätte gerne dazu geantwortet. Im Kernkraftwerk Obrigheim wird das überwacht, und wir können also schliessen, wir liegen weit unter 1 mCi pro Jahr.

JACOBI: Ich möchte eine Bemerkung zur Ermittlung der Bevölkerungsdosis machen. Man sollte sich ja doch über die Prioritäten klar sein. Wir wissen eindeutig, daß im Normalbetrieb die Belastung der Bevölkerung außerordentlich klein ist und völlig in der Variationsbreite der natürlichen Strahlenbelastung verschwindet. Viel entscheidender ist, glaube ich, daß wir Vorsorge treffen, um im Störfall möglichst schnell eine Aussage über die emittierten Radionuklide und die daraus resultierenden Maßnahmen zu erhalten und es scheint mir viel wichtiger, das zu betrachten, als den Normalbetrieb.

STEPHAN: Wir wollten ja jetzt nicht ausführlich die Umgebungsüberwachung betrachten, aber, Herr Jacobi, Sie sprachen eben noch einmal die Störfälle an. Da fiel mir auf, daß also daran gedacht ist, die Bodenkontamination mit einem Kontaminationszähler zu messen, im Gelände selbst Filter auszumessen, β-Aktivitäten zu messen. Wir müssen sagen, nach unserer Erfahrung führt das zu nichts, die Umgebungsstrahlung ist zu hoch. Sie müssen mit absorbierten Edelgasaktivitäten rechnen. Ich möchte eigentlich das nicht für günstig halten, denn man mißt etwas, mit dem man im Störfall nichts anfangen kann.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

II. M E S S T E C H N I K

2. SITZUNG

VORSITZENDER: W. JACOBI

MESSUNG RADIOAKTIVER AEROSOLE

H. GEBAUER
FRIESEKE UND HOEPFNER GMBH, ERLANGEN

Zusammenfassung

Es wird ein Überblick über die Probleme der Messung auf Filter abgeschiedener radioaktiver Aerosole gegeben. Abschließend werden die technischen Ausführungen zweier Schrittfilteranlagen beschrieben und ihre unteren Nachweisgrenzen diskutiert.

1. Einleitung

Unter einem radioaktiven Aerosol versteht man eine Dispersion von festen oder flüssigen radioaktiven Teilchen in der Luft oder in einem anderen Gas. Nach der Anlage II der 1. SSVO liegen die zulässigen Konzentrationswerte der Radioaktivität in der Größenordnung von $5 \cdot 10^{-13}$ Ci/m^3. Konzentrationswerte in dieser Größenordnung können jedoch nur durch eine vorherige Anreicherung der Aerosole z.B. auf Filter nachgewiesen werden. Die zu untersuchende Luft wird deshalb durch ein hochabscheidendes Filter (Abscheidegrad > 99 % für Aerosole mit ca. 1 µm Durchmesser) gesaugt, wobei die Aerosole auf und in dem Filter abgeschieden werden. Bezüglich der dabei auftretenden Abscheidemechanismen sei auf [1, 2] verwiesen.

2. Parameter der Aerosolabscheidung und -messung

Zur Abscheidung der Aerosole verwendet man i.a. zwei Filtertypen und zwar Glasfaser- und Membranfilter. Während beim Glasfaserfilter die Aerosole an der Oberfläche und in der Tiefe abgeschieden werden, findet eine Aerosolabscheidung beim Membranfilter praktisch nur auf der Oberfläche statt. Da die relativ starke Vorabsorption der Alphateilchen im Filter das Meßergebnis verfälscht, werden Glasfaserfilter für die Messung von Alphateilchen emittierenden Aerosolen nicht benutzt. Das muß insbesondere bei spektrometrischen Untersuchungen von Alphastrahlern berücksichtigt werden.

Den Einfluß der verwendeten Filtersorten auf die gemessenen Alphaspektren der natürlichen Luftaktivität zeigt Bild 1. Bei Verwendung von Glasfaserfilter werden die einzelnen Peaks der natürlichen Alphaaktivität so stark verbreitert, daß eine Energiebestimmung praktisch nicht möglich ist. Im Falle der Abscheidung auf Membranfilter ist das Auflösungsvermögen wesentlich besser und die drei Peaks, die vom RaA (5,99 MeV), RaC' (7,68 MeV) und ThC' (8,78 MeV) herrühren, sind getrennt.

Diese Messungen wurden mit einem diffundierten Halbleiterdetektor BPY 25-100 F (Hersteller: Fa. Valvo GmbH) während der Bestaubung des Membranfilters vorgenommen.

Eine weitere Peakverbesserung ist durch eine Messung im Vakuum der auf dem Membranfilter abgeschiedenen, Alphateilchen emittierenden Aerosole möglich. Auf diese Weise ist die Vorabsorption der Alphateilchen in der Luft zwischen Filteroberfläche und Detektor vernach-

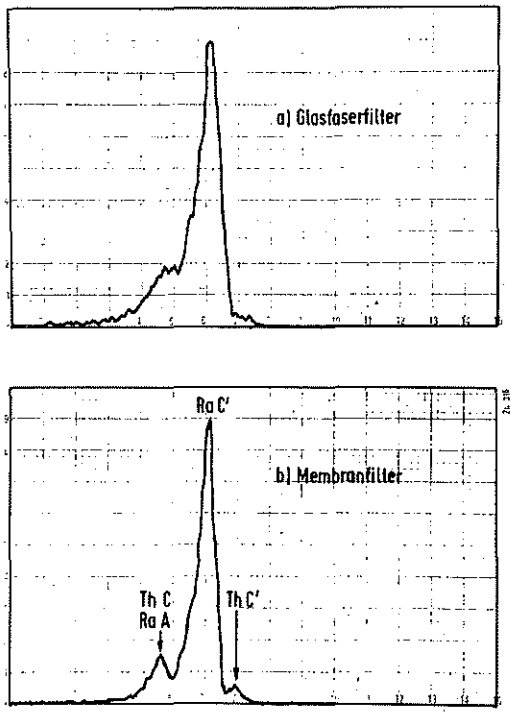


Bild 1:
Während der Bestaubung mit dem Halbleiterdetektor BPY 25-100 F gemessene Alpha-Spektren der natürlichen Aerosole der Luft auf Glasfaserfilter (oben) und Membranfilter (unten) aufgesammelt.

lässigbar, so daß dann lediglich die Selbstabsorption der Alphateilchen in der abgeschiedenen Staubschicht einen Beitrag zur Peakverbreiterung liefert.

Befindet sich in der Bestaubungsstelle gleichzeitig eine Meßstelle, was i.a. der Fall ist, so muß die Vorabsorption der Alphateilchen in der Luftschicht zwischen Filteroberfläche und Halbleiterdetektor in Kauf genommen werden. Jedoch kann durch das Dazwischenschalten eines Kollimators der Einfluß von schräg auf den Detektor fallenden Alphateilchen, die wegen ihrer größeren Luftwege auch eine stärkere Vorabsorption erfahren, reduziert werden. Die verwendeten Kollimatoren bestanden aus 13 Stück wabenförmig aneinander gereihter Rohrabschnitte von 3,1 bzw. 4,8 mm Innendurchmesser und einer Höhe von 3 mm. Die Wandstärke der Röhrchen betrug 0,1 mm. In Bild 2 ist der Einfluß von Kollimatormessungen auf die Peakverbreiterung von Curium-242 dargestellt. Wie zu erwarten, erhält man mit dem engsten Kollimator auch den schmalsten Peak, und es ergeben sich folgende Werte für das Energieauflösungsvermögen $\frac{\Delta E}{E}$ und dem Detektorwirkungsgrad η:

	$\frac{\Delta E}{E}$	η
ohne Kollimator	11,2 %	9 %
4,8 -Kollimator	6,9 %	4 %
3,1 -Kollimator	5,2 %	2 %

Aus diesen Werten ist ersichtlich, daß man die Kollimatoröffnungen wegen der starken Abnahme von η und nur geringfügigen Verbesserungen von $\frac{\Delta E}{E}$ nicht zu klein wählen sollte. Der 4,8-Kollimator scheint ein vernünftiger Kompromiß zu sein.

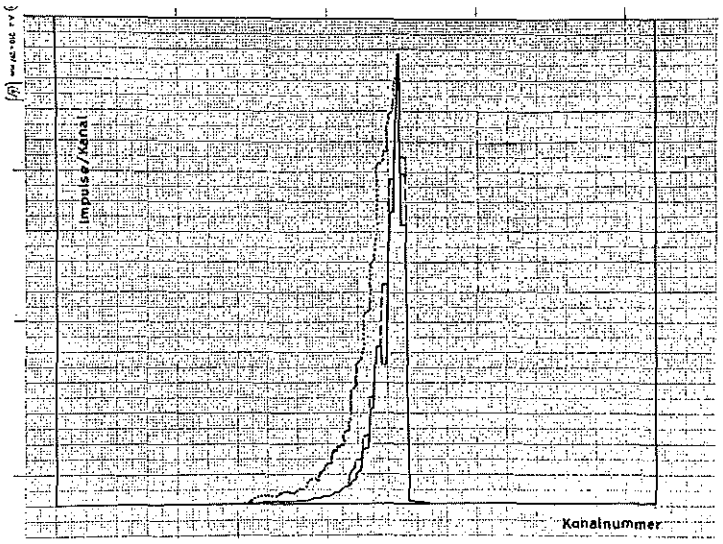


Bild 2: Einfluß der Kollimatormessungen auf die Peakverbreiterung gemessen mit Curium-242

..... ohne Kollimator
- - - - Kollimator bestehend aus 13 Röhrchen von 4,8 mm ϕ_i u. 3 mm Höhe
——— Kollimator bestehend aus 13 Röhrchen von 3,1 mm ϕ_i u. 3 mm Höhe

Die bisherigen Ausführungen gelten nur für Alphateilchen emittierende Aerosole. Während bei der Messung von Betateilchen die Frage der Abscheidung wegen der wesentlich größeren Reichweite der Betateilchen keine wesentliche Rolle spielt, sind bei der Messung von gammastrahlenden Aerosolen die Absorptionsverluste vernachlässigbar.

Zur Betamessung werden i.a. Geiger-Müller-Zählrohre verwendet und für die Gammamessung vorteilhafterweise GeLi-Halbleiterdetektoren mit Vielkanalanalysatoren [3]. Wegen des sehr guten Energieauflösungsvermögens derartiger GeLi-Anordnungen ist eine chemische Aufbereitung der Filterproben nicht immer erforderlich. Das mit den Aerosolen beaufschlagte Filter wird i.a. nach der Bestaubung direkt ausgemessen, indem das Filterpapier entweder in ein Bohrloch gesteckt wird oder um den Halbleiterdetektor gewickelt wird. Kontinuierlich arbeitende kommerzielle Filterbandanlagen mit GeLi-Detektoren sind bisher nicht bekannt geworden.

3. Technische Ausführung von Schrittfilteranlagen zur Alpha- und Betamessung

Die in Bild 3 dargestellte Schrittfilteranlage vom Typ FHT 59 T73 ist mit Geiger-Müller-Zählrohren vom Endfenstertyp ausgerüstet und dient zur kontinuierlichen integralen Messung der auf einem schrittweise bewegten Filterband abgeschiedenen Aerosole, die Alpha- und Betateilchen emittieren. Die Anlage besitzt eine Sofortmeßstelle und eine gegen die Umgebungsstrahlung kompensierte verzögerte Meßstelle. Die Meßwerte der beiden Meßstellen werden am Ende der Meßzeit zusammen mit Datum und Uhrzeit auf einem Druckstreifen digital registriert. Die Verzögerungszeiten zwischen den beiden Meßstellen können zwischen 20 Minuten und 166 Tagen variiert werden.

Wählt man bei einem Meßstellenabstand z.B. eine Schritt- und Meßzeit von 1 h vor, so beträgt die Verzögerungszeit bis zur zweiten Meßstelle 5 Tage. Nach dieser Zeit ist die natürliche

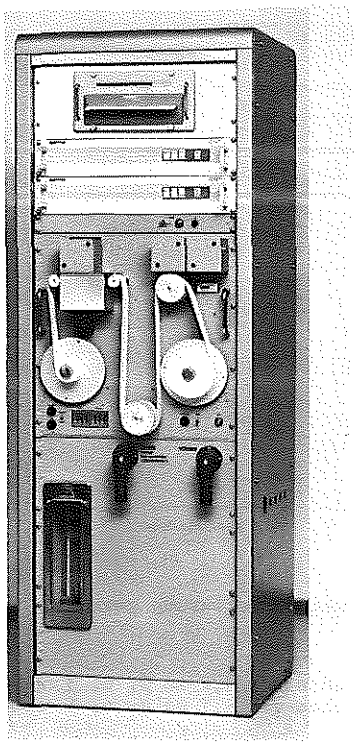


Bild 3:
Ansicht der Luftüberwachungsanlage FHT 59 T73 mit schrittweisem Papiervorschub zur integralen Messung der Aerosol-Alpha- und Betakonzentration in der Luft

Luftaktivität auf dem Filter auf weniger als 10^{-2} % des ursprünglichen Wertes abgefallen, so daß an der 5 Tage verzögerten Meßstelle nur die langlebigen künstlichen Nuklide gemessen werden. Bild 4 zeigt den Zusammenhang zwischen den pro Meßzeit auftretenden Impulszahlen und Aktivitätskonzentrationen. Für 1 h Meßzeit ergibt sich eine untere Nachweisgrenze (4·σ -Wert) von ca. $3 \cdot 10^{-14}$ Ci/m^3. Weitere technische Einzelheiten sind in [5] enthalten.

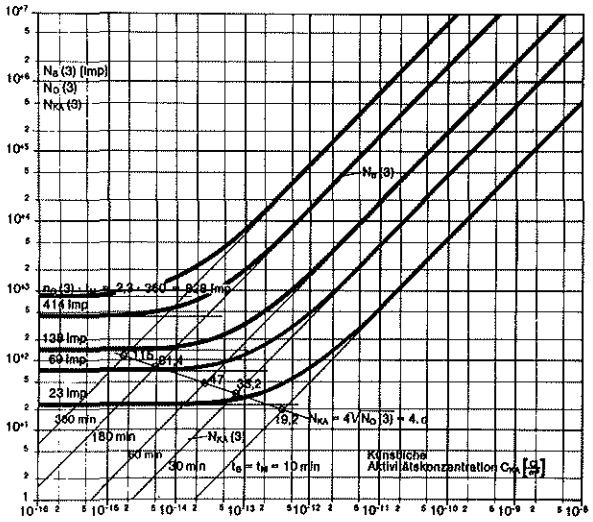


Bild 4: (Fig. 5)
Impulszahlen der 5 Tage verzögerten Meßstelle in Abhängigkeit d.künstlichen Aktivitätskonzentration in der Luft für die Schrittfilteranlage FHT 59 T73

Zur Messung und gleichzeitigen Identifizierung von Aerosol-Alpha-Strahler dient die in Bild 5 dargestellte Anlage vom Typ FHT 59 T6. Als Detektoren werden diffundierte Halbleiterdetektoren mit vorgeschalteten 4,8-Kollimatoren benutzt, wie in Abschnitt 2 beschrieben.

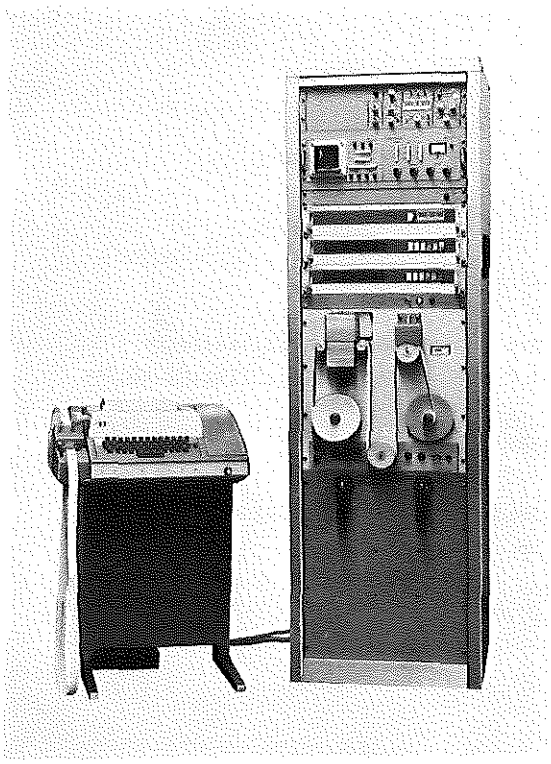


Bild 5:
Schrittfilteranlage FHT 59 T6 zur Messung und Identifizierung von Aerosol-Alpha-Strahler, ausgerüstet mit einer Sofortmeßstelle, eine um ein paar Schritte verzögerte Meßstelle zur Messung des Alphaspektrums im Vakuum und eine verzögerte integrale Meßstelle

Die Aufgabe der Sofortmeßstelle besteht darin zu entscheiden, ob im Energiebereich zwischen 2,5 und 5,2 MeV künstliche Alphaaktivitäten (z.B. von U-235 oder Pu-239) auf dem Membranfilter aufgesammelt wurden, der eine höhere Aktivitätskonzentration als der in Anlage II der 1. SSVO genannten, zugeordnet werden kann. Ist das der Fall, so wird das in der Sofortmeßstelle gerade gemessene Filterbandstück sofort in die zweite Meßstelle transportiert, um dort unter optimalen Bedingungen im Vakuum gemessen und im nachgeschalteten Vielkanalanalysator spektrometrisch untersucht zu werden.

Das Alpha-Spektrum (Meßstelle II) wird zusammen mit den Daten der Meßstelle I und II, sowie Datum, Uhrzeit und Luftdurchsatz z.B. mit einer Teletype digital registriert. Eine analoge Aufzeichnung des Spektrums ist möglich.

Unter der realistischen Annahme eines Nulleffektes von 30 Imp/h für die Sofortmeßstelle, einem Luftdurchsatz von ca. 8 m^3/h und einem Gesamtwirkungsgrad von 5 % ergibt sich für die Sofortmeßstelle bei 1 h Meßzeit eine untere Nachweisgrenze von ca. $3 \cdot 10^{-13}$ Ci/m^3 und $6{,}4 \cdot 10^{-14}$ Ci/m^3 für die um 5 Tage verzögerte Meßstelle.

Diese Angaben gelten für normal belüftete Räume. Nach der Anlage II der 1. SSVO betragen z.B. die zulässigen Konzentrationswerte für U-235 $4 \cdot 10^{-11}$ Ci/m^3 und für Pu-239 $6 \cdot 10^{-13}$ Ci/m^3. Diese Konzentrationswerte können unter den gemachten Annahmen ohne weiteres erfaßt werden. In Räumen mit gefilterter Zuluft sinkt die natürliche Aktivitätskonzentration auf weniger als 1/10 des ursprünglichen Wertes ab [6], was eine weitere Reduzierung der unteren Nachweisgrenze bringt.

Literatur

[1] D. Hasenclever, Staub-Reinh.Luft 26 (1966), 288 - 298

[2] E. Landt, Gesundheits-Ing. 77 (1956), Heft 9 und 10

[3] L. Salmon u.a., IAEA-Symposium "Rapid methods for measuring radioactivity in the environment", 5.-9.7.1971 in Neuherberg, IAEA-SM-148/55

[4] R. Weinreich, wie unter [3], IAEA-SM-148/71

[5] H. Gebauer, Zur Überwachung der radioaktiven Aerosole in der Luft Atomwirtschaft 1974, im Druck

[6] H. Ehret u.a., Kerntechnik 5 (1963), 97 - 103

DISKUSSION

STEPHAN: Wir haben noch eine Schwierigkeit mit einem Schrittfiltergerät gehabt, die hier noch nicht zur Diskussion kam, und zwar ist es die Kontamination dieser Geräte, die mit der Zeit eintritt. Man sollte also darauf achten, daß man zusätzlich die Leitungen noch abschirmen kann, aber was mir vielleicht noch wichtiger erscheint, daß man überhaupt die Meßköpfe aus dem Gerät herauszieht in einen abgeschirmten Topf hinein. Wir haben wirklich große Schwierigkeiten gehabt und die Dekontamination dieser Geräte macht viel Arbeit. Man bekommt die Kontamination nie richtig heraus.

EDELHÄUSER: Ich habe nur eine Frage: Sie erwähnten vorhin die α-Analyse. Scheiden Sie dabei die Probe ab? Das nehme ich wohl an; und wenn Sie die Analyse durchführen, haben Sie da nicht das Problem, daß Sie bei der Herstellung dieses Unterdrucks, den Sie zur guten Spektrometrie erzeugen wollen, die α-Aerosole von dem Filterband ablösen?

GEBAUER: Ob sie sich ablösen, weiß ich nicht, das muß ich ehrlich gestehen. Die Erzeugung des Unterdrucks spielt insofern keine große Rolle, weil das Volumen, das evakuiert werden muß, größenordnungsmäßig vielleicht 5 oder 10 cm^3 beträgt. Mit einer laufenden Pumpe kann die durch die Undichtigkeit - die quer durch das Filter auftritt, wenn das Filter zwischen zwei Platten gepreßt wird - verursachte Leckrate dauernd so abgesaugt werden, daß das Vakuum einige Torr beträgt. Das ist kein Problem. Aber die andere Frage, ob das jetzt abdampft usw., das richtet sich wohl nach den Verbindungen und den Nukliden, die wirklich darauf sitzen. Das kann man allgemein gültig, glaube ich, nicht beantworten.

JACOBI: Die Geräte, die Sie uns hier für die Raumluftüberwachung gezeigt haben, sind relativ aufwendig. Wenn man so in Zukunft einmal daran denken muß, daß einen nicht so sehr die Konzentration interessiert, sondern die von Personen inhalierte Aktivität und wenn man zum anderen Überlegt, daß in Räumen die Konzentration auch sehr inhomogen ist, dann wäre es doch eigentlich zweckmäßig, einmal daran zu denken, ganz einfache tragbare Luftmonitoren, die also von den einzelnen Beschäftigten getragen werden, zu entwickeln und dabei gerade bei längerlebigen Substanzen gar keinen Detektor mit einzubauen, sondern einfach dann monatlich oder wöchentlich die Filteraktivität zu messen. Man braucht auch gar nicht unbedingt nun Filter mit sehr extrem hohem Wirkungsgrad, man könnte ja daran denken, Filter sich herauszusuchen, deren Wirkungsgrad dem des Atemtraktes entspricht, so daß man direkt den abscheidbaren Anteil der Aerosolaktivität nur mißt. Gibt es da irgendwie Tendenzen, so etwas zu entwickeln?

GEBAUER: Ich glaube, das Problem ist nicht so sehr das Filter, es gibt eine genügende Auswahl. Ich schätze, daß mindestens so an die hundert Filter, die auf der Welt produziert werden, hier brauchbar wären. Das richtige Filter daraus auszuwählen, das halte ich nicht für das Primäre. Eine primäre Frage bei diesen tragbaren Anordnungen - also echt tragbar, d.h. der Mann hat einen Aktionsradius, sagen wir einmal, von 20 m im Umkreis - ist die Frage des Luftdurchsatzes. Wenn Sie ein Filter bestauben für einen Mann, der aus einem bestimmten Einzugsvolumen Aktivität inhaliert, so müßte in etwa der Luftdurchsatz für solche Geräte - Sie haben, glaube ich, selber die Zahl genannt - 20 l/min, d.h. ca. 1,2 m^3/h betragen, damit Sie auf die entsprechende Nachweisgrenze kommen. Und das schafft man nicht für ein tragbares Gerät.

JACOBI: Nein, das Gerät muß ja nicht den selben Luftdurchsatz haben wie der Atemtrakt. Es muß nur hinsichtlich der Abscheidung charakteristisch sein.

GEBAUER: Das reicht nicht aus.

JACOBI: Das hängt vom Nuklid ab, wie weit man kommen muß.

GEBAUER: Nehmen wir einmal das kritische Nuklid Plutonium mit 6.10^{-13} Ci/m^3, und wenn Sie jetzt 1 m^3 abgeschieden haben, dann haben Sie eine Aktivität von 6.10^{-13} Ci auf dem Filter. Das sind 0,6 pCi und jetzt wissen Sie die Zerfallsrate. Damit können Sie nicht messen. Also müssen Sie dann in Größenordnungen von vielleicht 10- oder 100-fachen derzeitigen MZK-Werten messen. Es gäbe eine Ausweichmöglichkeit, wenn Sie so wollen, daß man Absaugstellen installiert, z.B. an den Arbeitsplätzen, an den Glove-Boxen; die müssen aber nicht unmittelbar tragbar sein. Aber da hat man die Möglichkeit, größere Luftdurchsätze zu realisieren.

JACOBI: Und dann könnte man eben doch mehr darauf ausgehen, integrierende Detektoren zu entwickeln.

GEBAUER: Ja, das kann man dann machen, selbstverständlich.

SCHWIBACH: Nur eine kurze Anmerkung bezüglich der Überwachung am Kamin. Der Vorteil einer Probenahme auf dem Faserfilter über eine Woche oder über einen Monat ist natürlich, daß ich eine Chance habe, Einzelnuklide darin zu sehen.

JACOBS: Herr Jacobi, ich glaube, Ihre Frage ist doch durch die kleinen batteriebetriebenen personal air sampler beantwortet, die man in die Brusttasche steckt und etwa 20 l/min Saugleistung haben, das entspricht dem Atemvolumen des Menschen. Das Filter kann man auch an den Rockaufschlag anklemmen, also in unmittelbarer Mundnähe. Die Filter, die verwendet werden, sind - glaube ich - üblicherweise Mikrosorbanfilter. Die Ausmessung erfolgt dann, Ihrem Vorschlag entsprechend - natürlich getrennt.

JACOBI: Ich meine, meine Frage ging ja auch darauf hinaus, daß man dies eben doch auch hier in Deutschland mehr anwenden und auch von der industriellen Seite vielleicht etwas vorantreiben sollte.

KÖNIG: Ich möchte an einen Gedanken, den ich in meiner Einführung geäußert habe, anknüpfen. Wir müssen uns darüber im Klaren sein, daß auch die aufwendigsten Anlagen nur einen kleinen Bruchteil eines Raumes überwachen können. Es kann in einem Raum u.U. sehr große Kontaminationen geben, ohne daß die Aerosolüberwachungsanlage etwas davon bemerkt. Ich glaube, man müßte mehr dazu übergehen, das Gesamtsystem zu betrachten, nämlich Raumluftüberwachungsanlage plus dem überwachten Raum und darf sich also nicht mit den beeindruckenden Nachweisgrenzen zufriedengeben, die für die einzelnen Luftüberwachungsanlagen unter optimalen Bedingungen an einem bestimmten Punkt bestimmt sind.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

DER GEWERBEAUFSICHT
des Landes Nordrhein-Westfalen
Meß- u. Prüfstelle f. Strahlenschutz u. Kerntechnik des Landes NW, 4 Düsseldorf, Gurlittstr. 53a
Ihr Zeichen und Tag
Betrifft:

Werbeantwort

Nicht
freimachen
Gebühr zahlt
Empfänger

Deutsche Bank
Filiale Düsseldorf

4000 Düsseldorf 1
Postfach 1117

Ultimo-Sparen*

Ich möchte mich am Ultimo-Sparen beteiligen.

Mein Persönliches Konto hat die Nummer

____ / _____

Der Ultimo-Sparbetrag soll überwiesen werden

☐ auf mein Sparkonto ____ / _____ / ____

☐ auf ein neu auf meinen Namen zu errichtendes Sparkonto

____ / _____ / ____

(wird von der Bank ausgefüllt)

und zwar jeweils am

☐ 11.

☐ 20.

☐ 26. eines Monats

beginnend ab sofort/ab Monat _____

Als „Reserve für alle Fälle" sollen auf meinem Persönlichen Konto _____ DM stehenbleiben.

Es sollen höchstens _____ DM übertragen werden (bitte einen Betrag ab 20 DM einsetzen).

Name des Auftraggebers _____ Datum/Unterschrift _____

*) Gewünschtes bitte ankreuzen und ausfüllen.

ÜBERWACHUNG AUF RADIOAKTIVE GASE, INSBESONDERE TRITIUM

R. MAUSHART

BERTHOLD/FRIESEKE VERTRIEBS-GMBH.,
KARLSRUHE-DURLACH

Zusammenfassung

Es wird eine Übersicht über den Stand der Meßtechnik bei der Gas- und Tritiumüberwachung gegeben. Alle gebräuchlichen, häufig angewandten Anordnungen zur routinemäßigen, kontinuierlichen Messung werden beschrieben, ihre Vor- und Nachteile vergleichend erörtert und in Tabellen ihre Eichkonstanten zusammengestellt.

1. WO STEHEN WIR HEUTE ?

1.1 Rückblick

In den letzten Jahren hat sich, so scheint es zumindest, bei der Überwachung radioaktiver Gase nichts Neues ereignet. Die hierzulande gebräuchlichen Meßverfahren — Großflächenproportionalzählrohre in Kombination mit den verschiedensten Meßkammern zur Erfassung von Edelgasen, Sandwichproportionalzählrohre mit Zählgas-Luft-Gemisch im Durchfluß für die Tritiumbestimmung — sind vor nahezu einem Jahrzehnt entwickelt worden und werden auch heute noch vorwiegend angewandt. Aus Tabelle 1 ist ersichtlich, daß mit diesen Meßanordnungen 1/10 der MZK-Werte nach Anlage II der 1. Str. Sch. VO für die meisten wichtigen Radionuklide, die gasförmig auftreten können, relativ problemlos erreicht werden kann.

Tabelle 1 : Mit gebräuchlichen Meßanordnungen erreichbare Nachweisgrenzen (Richtwerte) für die wichtigsten gasförmig auftretenden Radioisotope

Isotop	^{41}Ar	^{85}Kr	^{133}Xe	^{135}Xe	^{14}C	^{3}H	^{222}Rn
MZK lt. Anlage II der 1.Str.Sch.VO (Ci/m^3)	4×10^{-7}	4×10^{-6}	3×10^{-6}	1×10^{-6}	1×10^{-6}	2×10^{-6}	1×10^{-7}
Routinemäßig erreichbare Nachweisgrenzen (Ci/m^3)	2×10^{-9}	4×10^{-9}	2×10^{-8}	3×10^{-9}	1×10^{-7}	2×10^{-8}	1×10^{-8}

Spektakuläre Fortschritte in der Meßtechnik waren demnach nicht zu erwarten und auch gar nicht erforderlich. Nichtsdestoweniger ist viel Entwicklung im Detail geleistet worden. Sie reicht von neuartigen Detektortypen, wie dem im Abschnitt 2.3 dieser Übersicht beschriebenen, röhrenförmigen Großflächen-Plastikszintillationszähler, über die Erweiterung des dynamischen Meßbereichs bei Gas- und Tritiummonitoren bis zur modernen Digitalelektronik (siehe auch Bild 3 im Abschnitt 3.3.5) deren Vorteile allgemein von **MAUSHART und STREMME (1971)** und speziell für die Abluftüberwachung an Kernkraftwerken von **MAUSHART (1972 a)** aufgezeigt worden sind.

1.2 Ausblick

Aber noch bleibt einiges zu tun. Die Zahl der Kernkraftwerke wächst. Weitere, größere Brennstoffwiederaufarbeitungsanlagen werden entstehen. Aus den bisherigen Erfahrungen haben sich auch neue Problemstellungen für die Abgasüberwachung ergeben, die noch nicht alle befriedigend gelöst sind (vgl. auch **MAUSHART, 1972 b**).

Das langlebige ^{85}Kr und seine Anreicherung in der Atmosphäre machen eine spezifische Messung dieses Isotops auch bei Anwesenheit anderer radioaktiver Edelgase, vor allem ^{41}Ar, erforderlich. Das gleiche gilt für den Tritiumnachweis. Zur Überwachung von Konzentrationsgrenzwerten kommt die Notwendigkeit einer Bilanzierung der Einzelisotope. Das ist häufig nicht mehr mit kontinuierlichen, sondern nur noch mit stichprobenartigen, diskontinuierlichen Methoden zu realisieren.

Von der Meßelektronik, deren Einschübe vielfach auf Labor- und Institutsverhältnisse zugeschnitten sind, wird eine bessere Anpassung an die betriebsmäßigen Bedingungen in einem Kernkraftwerk gefordert. Dazu gehört nicht nur die Robustheit, die Bedienungsvereinfachung und der Staub- und Feuchtigkeitsschutz. Auch der jeweilige Kalibrierfaktor sollte der Meßanordnung so einzugeben sein, daß die Anzeige einheitlich nicht in Impulse pro Minute, sondern direkt in Konzentrationseinheiten erfolgt.

Die Detektoren sind häufig in kontaminierten Bereichen oder Zonen mit erhöhtem Strahlungspegel untergebracht. Das stellt nicht nur besondere Anforderungen an die Methoden zur Gammakompensation des Meßwertes, sondern macht auch Prüfungen, Reparaturen oder Auswechseln zu schwierigen Arbeitsvorgängen, die durch hohe Konstanz und Zuverlässigkeit der Detektoren sowie durch fernbedienbare Testvorrichtungen weitgehend vermieden werden müssen. Gelegentlich werden diese Überlegungen sogar dazu führen, daß auf eine hochgezüchtete Apparatur mit maximaler Meßempfindlichkeit zugunsten der Betriebssicherheit verzichtet werden muß.

Kurz: es ist abzusehen, daß bis Ende dieses Jahrzehnts eine neue Generation von Strahlungsmeßsystemen speziell für den Einsatz in Kernkraftwerken heranwachsen wird, wobei die Verbesserungen kaum in der Meßmethode, wohl aber in der technischen Ausführung zu erwarten sind.

Umso wichtiger und sinnvoller ist es, im folgenden den derzeitigen Stand dieser Methoden — soweit es die Gasüberwachung betrifft — zusammenfassend und vergleichend darzustellen.

2. RADIOAKTIVE EDELGASE

2.1 Übersicht

2.1.1 Meßverfahren und Detektoren

Entstehung, Vorkommen und Eigenschaften der radioaktiven Edelgase können als bekannt vorausgesetzt werden. Zahlreiche Arbeiten befassen sich damit. Erst kürzlich ist diesem Fragenkomplex ein eigenes Symposium gewidmet worden (Las Vegas,1971).Wenn hier dennoch eine Tabelle mit den wichtigsten Nukliden und deren Daten erscheint, so ist das lediglich zur größeren Bequemlichkeit des Lesers gedacht. Es ist ganz nützlich, die Energie- und Reichweitenwerte zur Hand zu haben, wenn wir uns im Folgenden mit den einzelnen Meßanordnungen näher beschäftigen.

Wie sehen diese Meßanordnungen aus ? Daß in Tabelle 2 nur Beta-Energien aufgeführt sind, zeigt uns bereits, daß die Messung — zumindest soweit es sich um die kontinuierliche Messung handelt, auf die Ausnahme kommen wir noch zu sprechen — ausschließlich über die Betastrahlung erfolgt. Das ist notwendig und vorteilhaft. Notwendig, weil ein ganz wesentliches Nuklid, das ^{85}Kr, praktisch ein reiner ß-Strahler ist (0,7 % Gammas von 520 keV) und daher anders nicht annähernd mit ausreichender Empfindlichkeit erfaßt werden könnte. Vorteilhaft, weil sich so Meßgefäße definierter Geometrie mit einigermaßen handlichen Abmessungen — und Abschirmungen — verwenden lassen, ohne die Ansprechwahrscheinlichkeit untunlich einzuschränken.

Schließlich hat man das ganze Arsenal an Beta-empfindlichen Detektoren zur Auswahl, die dann auch alle irgendwann einmal benutzt werden:

- Großflächen-GM-Zählrohre
- Großflächen-Plastikszintillationszähler
- Normale Plastikszintillationszähler
- Großflächen-Proportionalzählrohre

Tabelle 2 : Kenndaten einiger wichtiger radioaktiver Edelgase und Gase

Isotop	^{41}Ar	^{135}Xe	^{85m}Kr	^{85}Kr	^{133}Xe	^{14}C	^{3}H	a)
HWZ	1,85 h	9,2 h	4,4 h	10,4 a	5,65 d	5570 a	12,3 a	
ß-Energie (MeV)	1,2	0,92 (97 %)	0,83	0,67	0,35	0,158	0,018	
b) max. Reichweite in Luft (cm)	406	270	230	180	100	33	0,6	
b) häufigste Reichweite in Luft ($1/3E_{max}$) (cm)	110	90	80	60	14	3	0,15	

a) Falls Ihnen noch ein anderes Radionuklid wichtig erscheint, — in diese freie Spalte können Sie es hineinschreiben !

b) nach D. Nachtigall, Physikalische Grundlagen für Dosimetrie und Strahlenschutz, Thiemig-Taschenbuch Band 24 (1971)

2.1.2 Meßkammern

Wie kommt nun die Meßluft zum Detektor ? Entweder kann man diesen direkt in einem Lüftungsschacht anbringen, falls der Querschnitt der Leitung groß genug ist. Oder man benutzt eine besondere Meßkammer, durch die vermittels einer Bypass-Pumpe die Luft hindurchgesaugt oder -gedrückt wird.

In jedem Fall ist eine Meßkammer die vorteilhafteste Art der Detektoranordnung. Mit ihr verfügt man über

- Eine von vornherein bekannte und und auch nach meßtechnischen Gesichtspunkten optimierbare Geometrie mit feststehenden, im Regelfall auch experimentell ermittelten Eichfaktoren für die einzelnen Edelgase oder auch andere gasförmig auftretende Nuklide, wie z.B. ^{14}C
- die einfachere Möglichkeit der Abschirmung und damit der Reduktion des Nulleffektes zur Empfindlichkeitssteigerung (— an Lüftungstrakten Bleiabschirmungen anzubringen, ist aus Plateau- und Gewichtsgründen meist nicht möglich)
- besser kontrollierbare Druck- und Strömungsverhältnisse im Vergleich zu abluftführenden Schächten, wo die Detektoren oft mechanisch überbeansprucht und außerdem schwer zugänglich sind;
- bewegliche Anordnungen, die auch ohne lange Ansaugwege an verschiedenen Stellen eingesetzt werden können, wie dies bei der Raumluftüberwachung am Arbeitsplatz vielfach notwendig ist.

Wenn die Meßluft aus dem Hauptkamin an Stellen hoher Strömungsgeschwindigkeit entnommen werden muß, können allerdings gelegentlich Schwierigkeiten entstehen, eine wirklich repräsentative Luftprobe zu gewinnen.

Maximale Zählraten pro Konzentrationseinheit der zu erfassenden Aktivität würde man zwar mit Meßgefäßen solcher Abmessungen erhalten, die nahezu der Maximalreichweite der betreffenden Betastrahlung entsprechen. In der Praxis jedoch kommt man ohne wesentlichen Verlust an Ausbeute mit Abmessungen in der erträglichen Größenordnung von einigen 10 Zentimetern aus, da es einerseits im Gesamtspektrum nur wenig Betas mit Maximalenergie gibt, andererseits die Außenschichten bei größeren Volumina aus geometrischen Gründen zum Fluß im Zentrum nur wenig beitragen.

Gelegentlich kann man sogar auf recht kleine Dimensionen zurückgehen, wenn es auf Messungen wesentlich unterhalb der MZK nicht ankommt. Diese Art des Meßgefäßes hat außerdem den Vorteil, daß der Kalibrierfaktor nahezu unabhängig von der Betaenergie und damit von der Art des nachzuweisenden Edelgases wird.

Drei Hauptformen von Meßgefäßen haben sich daher in der Praxis eingebürgert:

- Zylinderförmige Behälter, meist mit Bleiabschirmung von 1/2" – 1", in den Abmessungen 50 cm Ø x 50 cm Höhe. In diese Behälter werden GM-Zählrohre und Szintillationszähler axial eingesetzt.
- Kubische Behälter in den ungefähren Abmessungen 100x100x50cm, in deren einer Wandfläche sich ein Großflächen-Proportionalzählrohr befindet. Hier wird in der Regel aus Gründen der Gewichts- und Kostenersparnis nur das Zählrohr selbst, d.h. ein Halbraum, mit Blei von 5 – 10 cm Stärke abgeschirmt.
- Flache, rechteckige Behälter in den Abmessungen des Großflächenzählrohres (ca. 30 x 30 cm) und ca. 10 cm Dicke.

2.1.3 Eichfaktoren und Nachweisgrenzen

Die Tabelle 3 gibt eine vergleichende Übersicht über die Eichfaktoren der verschiedenen Detektorarten in verschiedenen Behältersystemen für ^{85}Kr. Die so erzielbaren optimalen Nachweisgrenzen liegen für Anordnungen mit GM-Zählrohren bei 10^{-8} Ci/m^3, für Anordnungen mit Großflächenproportionalzählrohren bei 10^{-9} Ci/m^3.

Tabelle 3 : Eichfaktoren (^{85}Kr) für verschiedene Standard-Detektoranordnungen (ipm pro 10^{-6} Ci/m^3)

Meßgefäß und Detektor	40 x 40 x 20 cm Endfensterzählrohr 27 mm Ø	44 Ø x 74 cm Plastikszintillator	44 Ø x 74 cm BZ/120 A	60 x 30 x 10 cm GFDZ	100 x 100 x 50 cm GFDZ
Eichfaktor	40	700	800	2.200	10.000

Die hier aufgeführten Daten sind experimentell ermittelt oder an gemessene Werte anderer Isotope angeschlossen. Die Berechnung von Eichfaktoren für die Aktivitätsmessung gasförmiger Medien in beliebigen Geometrien, wird bei **PLESCH (1968)** ausführlich beschrieben.

Es liegt auf der Hand, daß die beschriebenen Meßanordnungen für gasförmige radioaktive Isotope prinzipiell auch Aerosole mit der gleichen Meßempfindlichkeit nachweisen können. Da man aber in der Regel Wert darauf legt, die gasförmige Aktivität getrennt von der aerosolförmigen zu erfassen, wird die Meßluft zuvor gefiltert. Das hat zudem den Vorteil, Verschmutzungen und Kontaminationen der Meßkammer zu vermeiden.

Außer den genannten Detektorsystemen, bei denen die Meßluft am Detektor vorbeigeführt wird, lassen sich auch alle die in Abschnitt 3 beschriebenen Durchflußzähler zur Messung radioaktiver Edelgase verwenden. Vor- und Nachteile der wichtigsten Meßanordnungen sind in Tabelle 4 zusammengefaßt.

Tabelle 4 : Eigenschaften von verschiedenen Systemen zur Edelgasmessung in Luft

Gerätetyp	wie gebräuchlich ?	Nachweisempfindlichkeit	Vorteile	Nachteile
Durchfluß-Ionisationskammer	früher häufig, jetzt in der BRD selten; im Ausland häufig	schlecht bis ausreichend (ca. 2 x 10^{-7} Ci/m^3)	Strahler aller Energien werden erfaßt (aber nicht getrennt)	ständige Eichkontrolle erforderlich; Nachweisempfindlichkeit schlecht
Durchfluß-Proportionalzählrohr	an Reaktoren und in Labors, nur in Verbindung mit ^3H-Messung (nur BRD)	gut (ca. 5 x 10^{-8} Ci/m^3)	gleichzeitige, getrennte Messung von Edelgasen und ^3H	Gasverbrauch; beschränkte Luft-Durchflußmenge (≈ l/min)
GM-Zählrohr in Meßgefäß 50 Ø x 50	häufig an Beschleunigern gelegentlich an Reaktoren	gut (ca. 2 x 10^{-8} Ci/m^3)	preiswerte, einfache Elektronik; stabil durch langes Plateau	keine ^{14}C-Messung; beschränkter cpm-Meßbereich; Zählrohralterung
Großflächen-Plastikszintillationszähler in Meßgefäß 50 Ø x 50 cm	bisher nur am HMI Berlin	gut (ca. 5 x 10^{-8} Ci/m^3)	druckfest; langlebig; großer Meßbereich ^{14}C noch meßbar	in der Anschaffung etwas teuer als GM-Zählrohr hohe γ-Empfindlichkeit
Großflächen-Proportionalzählrohr in Meßgefäß 100 x 100 x 50 cm	häufig an Reaktoren (nur BRD)	gut (ca. 2 x 10^{-9} Ci/m^3)	höchste Nachweisempfindlichkeit für alle Energien (außer ^3H)	Gasverbrauch

2.1.4 Identifizierung der Edelgase

Verfahren zur spezifischen Messung einzelner Edelgase sind in Abschnitt 2.5.1 beschrieben. Wenn es um eine weitergehende Bilanzierung bei der Abgabe aus kerntechnischen Anlagen geht, so können nach einem Vorschlag von **GEBAUER (1973)** die Edelgasnuklide kontinuierlich über einen Bypass aus der Abluft ausgefroren werden. Die Messung erfolgt dann mit einer GeLi-Spektrometeranordnung über die Gammakomponenten an der Festprobe monatlich bzw. nach Brennelementwechsel oder sonstigen markanten Ereignissen des Reaktorbetriebs.

2.1.5 Messungen zur Umgebungsüberwachung

Zur Umgebungsüberwachung, d.h. im wesentlichen zur Immissionskontrolle, stellt man den Detektor auch frei in den Luftraum.

Hierzu wird schon seit über 15 Jahren nahezu ausschließlich das Großflächen-GM-Zählrohr BZ/120 A benutzt. Es liegen eine ganze Reihe von Veröffentlichungen vor, auf die hier nicht näher eingegangen werden soll. **(BERTHOLD 1957 ; KIEFER und MAUSHART 1959 ; SCHMITT und WINTER 1967 .** Die theoretische Nachweisgrenze für ^{41}Ar liegt in dieser Geometrie, bei der auch die γ-Komponente zur Messung beiträgt, bei 5×10^{-9} Ci/m^3.

Noch niedrigere Nachweisgrenzen für ^{41}Ar im Luftraum konnten mit einem 8" x 4"-NaJ(Tl)-Szintillationsdetektor erreicht werden **(KIEFER und MAUSHART 1963**,. Bei genügend großer Ausdehnung der Argon-Wolke beträgt die meßbare Konzentration dieses Nuklides 10^{-9} Ci/m^3. Außerdem läßt sich in groben Bereichen eine kontinuierliche Spektroskopie betreiben. Ähnliche Messungen wurden am EIR in Würenlingen mit einem 7" x 7"-Plastik-Szintillator vorgenommen **(NAGEL 1969)**. Neuerdings wird das gleiche Verfahren mit ausgezeichnetem Erfolg auch mit GeLi-Detektoren durchgeführt **(BECK 1971)**.

Über spezielle Feldmessungen von ^{133}Xe in der Umgebung eines Druckwasserreaktors mit einem tragbaren Szintillationszähler berichtet **KARCHES (1971)**. Schließlich können mit kollimierten Szintillationszählern auch Form und Größe einer Edelgaswolke bestimmt werden **(BURGKHART 1969)**

2.2 Anordnungen mit GM-Zählrohren

2.2.1 Großflächen-GM-Zählrohre

Zur möglichst empfindlichen Messung werden großflächige, dünnwandige, aber dennoch mechanisch stabile Zählrohre benötigt. Hier hat sich in langjähriger Anwendung das organisch gelöschte Aluminium-GM-Zählrohr BZ/120 A (bzw. der etwas kleinere Typ BZ/45) der Firma Laboratorium Prof. Dr. Berthold als sehr geeignet erwiesen.und wird zumindest im westdeutschen Bereich so gut wie ausschließlich verwendet. Für dieses Zählrohr liegen auch die meisten berechneten und experimentell ermittelten Eichwerte vor.

An äquivalenten Halogenzählrohren kommt vor allem das FHZ 85 der Firma Frieseke & Hoepfner in Frage. Seine Vorteile liegen in der gegenüber den beiden Alu-Zählrohren etwas dünneren Glaswand, dem größeren Temperaturbereich und der Halogenzählrohren eigenen größeren Lebensdauer. Andererseits ist es infolge kleinerer Abmessungen um etwa den Faktor 3 unempfindlicher als das BZ/120 A (bei Energien unter 1 MeV verschiebt sich das Verhältnis etwas zugunsten des FHZ 85) und außerdem mechanisch anfälliger, was gerade bei der Montage in Luftschächten von ausschlaggebender Bedeutung sein kann. Die wichtigsten Kenndaten der genannten Zählrohre sind in Tabelle 5 zusammengestellt.

Tabelle 5 : Kenndaten von Großflächen-GM-Zählrohren

	BZ/120 A	BZ/45	FHZ 85
Wandstärke	0,2 mm (55 mg/cm^2)	0,15 mm (40 mg/cm^2)	0,1 – 0,2 mm (25 – 35 mg/cm^2 mit Kathode)
Wandmaterial	Aluminium	Aluminium	Glas
Abmessungen	45 mm Ø x 430 mm	35 Ø x 250 mm	35 Ø x 360 mm
Aktiver Querschnitt	120 cm^2	45 cm^2	39 cm^2
Einsatzspannung	850 V	850 V	400 V
Plateaulänge	größer als 250 V	größer als 250 V	größer als 250 V
Plateausteigerung	kleiner als 3 % / 100 V	kleiner als 3 % / 100 V	kleiner als 8 % / 100 V
Nulleffekt ohne Abschirmung	ca. 450 ipm	ca. 150 ipm	ca. 320 ipm
Temperaturbereich	–30° bis +50°C	–30° bis +50°C	–55° bis +90°C
Temperaturkoeffizient	ca. 0,1 V / °C	ca. 0,1 V / °C	$\leq$ 0,5 V /°C

Eine Anordnung von BZ/120 A-Zählrohren in einem Meßgefäß von 50 cm Ø x 50 cm Höhe zur Überwachung der Luftaktivität an einem Isochronzyklotron ist von **PROBST (1970)** untersucht und mit ^{41}Ar kalibriert worden. Er findet für dieses Isotop eine praktische Nachweisgrenze von 2×10^{-8} Ci/m^3.

JAHN (1969) mißt das ^{41}Ar im Abluftschacht eines Reaktors über die γ-Komponente, indem er an der Außenwand des Schachtes ein Zählrohr anbringt, – wo die Nachweisempfindlichkeit von einigen 10^{-6} Ci/m^3 ausreicht, natürlich eine sehr einfache Methode.

In Tabelle 6 sind verschiedene Eichfaktoren zusammengestellt, teils gemessen, teils – im Anschluß an den experimentellen Wert für ^{41}Ar – berechnet.

Tabelle 6 : Eichfaktoren für das Zählrohr BZ/120 A
(ipm pro 10^{-6} Ci/m^3)

Isotop		^{41}Ar	^{135}Xe	^{85}Kr	^{133}Xe	^{14}C	Referenz
Meßgefäß 50 cm Ø x 50 cm	gemessen	1.900				0	a
	berechnet		1.380	1.130			a
			1.300	550	32		b
Meßgefäß 44 cm Ø x 74 cm	gemessen	2.800			52	0	c
	berechnet		1.910	810			b
Zählrohr an der Außenwand des Abluft-Kamins	gemessen	17					d

a) Probst (1970)
b) vom Verfasser berechnet nach Angaben in a)
c) Barz (1973)
d) Jahn (1969)

Bei Vorhandensein eines schwankenden Gamma-Untergrundes werden im gleichen Meßgefäß zwei Zählrohre angeordnet, von denen eines mittels eines Kunststoffzylinders von ca. 10 mm Wandstärke gegen die Betastrahlung abgeschirmt wird, so daß sich die Gammakomponente durch Differenzbildung eliminieren läßt.

Diese Art der Gasüberwachung mit GM-Zählrohren stellt bei völlig ausreichender Empfindlichkeit die einfachste und billigste Möglichkeit dar. Sie hat allerdings zwei Nachteile: infolge der Zählrohr-Wandstärke von ca. 50 mg/cm^2 (entsprechend etwa 65 cm Luft) nimmt die Empfindlichkeit bei fallender ß-Energie rasch ab. Betastrahler unterhalb von 300 keV, vor allem ^{14}C, lassen sich nicht mehr nachweisen. Und infolge der GM-Zählrohren eigenen hohen Totzeit ist die Nachweismöglichkeit zu hohen Konzentrationen hin auf einige 10^{-5} Ci/m^3 begrenzt. Diese letztere Eigenschaft verhindert häufig den Einsatz zur Abluftüberwachung an Kernkraftwerken.

2.2.2 Endfenster-GM-Zählrohre

Endfenster-GM-Zählrohre werden gelegentlich als verhältnismäßig einfaches, ergänzendes Meßsystem benutzt, um bei der Abluftüberwachung von Kernkraftwerken den erfaßbaren Konzentrationsbereich gegenüber Großflächen-GM-Zählrohren nach oben hin zu erweitern und somit eine bessere Überwachungsmöglichkeit auch für den Störfall zu schaffen. Bei Verwendung großer Meßgefäße – einige Eichfaktoren dazu sind in Tabelle 7 auf der folgenden Seite zusammengestellt – reicht der Meßumfang von einigen 10^{-7} bis ca. 10^{-3} Ci/m^3. Durch kleinerdimensionierte Meßräume kommt man noch ein bis anderthalb Zehnerpotenzen höher.

Bei derartigen Konzentrationen müssen aber dann Meßergebnisse gerade mit Vorsicht betrachtet werden, da sich durch die Gamma-Komponente auch aus weiter abliegenden Rohr- und Leitungsstücken der Nulleffekt – bzw., wenn man so will, der Eichfaktor – erheblich erhöhen kann.

Tabelle 7 : Eichfaktoren für GM-Endfensterzählrohre von 27 mm Ø und 2 – 3 mg/cm^2 Massenbelegung, Meßgefäßdimensionen 40 cm x 40 cm x 20 cm (berechnet nach PLESCH, 1968). (ipm pro 10^{-6} Ci/m^3)

Isotop	^{41}Ar	^{85}Kr	^{14}C
Eichfaktor für 1 Detektor	57	40	7
Eichfaktor für Sonde mit 7 Detektoren parallel	400	280	50

2.3 Anordnungen mit Plastikszintillationszählern

2.3.1 Großflächen-Plastikszintillationszähler

Großflächen-GM-Zählrohre sind, wie in Abschnitt 2.2.1 gezeigt wurde, von der Nachweisempfindlichkeit her zur Edelgasmessung völlig ausreichende Detektoren, die dazu die Vorteile haben, preiswert und in der erforderlichen Elektronik weitgehend problemlos zu sein. Daß ihr Anwendungsbereich dennoch beschränkt bleibt, liegt an einer vierfachen Unzulänglichkeit:

- infolge der mechanisch erforderlichen Mindestwandstärke von ca. 30 – 50 mg/cm^2, sind Messungen im Energiebereich unter 300 – 400 keV nur mit unzureichender Empfindlichkeit oder gar nicht mehr möglich;
- gleichzeitig ist die Wand wiederum so dünn, daß die Zählrohre mechanischen Beanspruchungen, insbesondere raschen Druckwechseln oder gar ständigen Überdrucken, nicht gewachsen sind;
- schließlich begrenzt die GM-Zählrohren eigene hohe Totzeit den Meßbereichumfang nach oben.
- dazu kommt noch die Zählrohralterung, die einen Ersatz der Detektoren ca. alle 2 bis 3 Jahre erforderlich macht.

Um alle diese Nachteile zu vermeiden, wurde von **BARZ und JACOBI (1970)** eine zylinderförmige Plastikszintillationssonde entwickelt, die inzwischen auch kommerziell erhältlich ist **(LABOR BERTHOLD 1972)**. Der Szintillator in Form einer Röhre mit 5 mm Wandstärke ist dabei auf einem Plexiglas-Lichtleiter aufgezogen und mit einer 0,05 mm-Alufolie abgedeckt. Der Außendurchmesser ist rd. 40 mm, die aktive Länge 194 mm, so daß der aktive Querschnitt rd. 80 cm^2 beträgt (BZ/120 A: 120 cm^2). Daß die Ansprechwahrscheinlichkeit für ein punktförmiges Präparat entlang der Detektorachse wegen der verschiedenen Lichtübertragungswege variiert, spielt solange keine nachteilige Rolle, als der Detektor in einem gleichmäßig kontaminierten Luftraum eingesetzt wird.

Die Eichfaktoren des Detektors in einem Meßgefäß mit 44 cm Ø und 74 cm Länge sind in Tabelle 8 zusammengestellt. Die vergleichbaren Werte für das GM-Zählrohr BZ/120 A stehen in Tabelle 5. Entsprechend seiner größeren empfindlichen Fläche, zeigt das BZ/120 A für die höherenergetischen Isotope unter sonst gleichen Bedingungen eine rd. 50 % größere Impulsrate. Aber beim ^{133}Xe hat sich das Verhältnis bereits umgekehrt, und ^{14}C ist überhaupt nur mit dem Plastikszintillationszähler erfaßbar. Der Nulleffekt des Plastikszintillationszählers liegt bei richtiger Wahl der unteren Diskriminatorschwelle um etwa den Faktor 2 – 3 höher als beim BZ/120 A, wodurch sich die erreichbare Nachweisgrenze etwas schlechter stellt. Dagegen ist die Totzeit um mindestens den Faktor 100 kleiner, so daß sich der Meßbereich entsprechend nach oben ausdehnen läßt.

Tabelle 8 : Eichfaktoren für einen Plastikszintillator 38,2 mm Ø x 5 mm Dicke x 194 mm Länge in einem Meßgefäß 44 cm Ø x 74 cm Länge (BARZ 1973) (ipm pro 10^{-6} Ci/m^3)

Isotop	^{41}Ar	^{135}Xe	^{85}Kr	^{133}Xe	^{14}C
Eichfaktor	1.900	1.400 *a)*	700	84	30 *a)*

a) Vom Verfasser berechnet

Ein kritischer Punkt bei Szintillationszählern ist stets die Temperaturabhängigkeit des Meßwertes. Die Autoren fanden jedoch bei der beschriebenen Plastikszintillatorsonde für das Gesamtsystem Szintillator-Multiplier-Vorverstärker im Temperaturbereich von $-20^{o}C$ bis $+50^{o}$ C keine größere Variation als $\pm$ 1 %. Dieses an sich überraschend günstige Ergebnis wird mit der Annahme erklärt, daß eine Kompensation von gegenläufigen Temperatureffekten in den verschiedenen Systemkomponenten auftritt, die als Summe zu der äußerst geringen Temperaturabhängigkeit führt.

Die Gammaansprechwahrscheinlichkeit der Plastikszintillationssonden beträgt (für eine Sondenlänge von 20 cm, wie sie die kommerziell erhältlichen Typen aufweisen) in der für ß-Messungen üblichen Schwelleneinstellung ca. 10^5 ipm/mR/h, gemessen mit ^{60}Co-Strahlung. Das ist gegenüber dem Zählrohr BZ/120 A ganz rund etwa den Faktor 3 höher; der Einsatz der Plastikszintillatoren sollte deshalb nach Möglichkeit an solchen Stellen erfolgen, wo nicht mit einer wesentlich erhöhten Umgebungsstrahlung zu rechnen ist.

2.3.2 Normale Plastikszintillationszähler

Die üblichen, scheibchenförmigen Plastikszintillatoren werden vor allem dann eingesetzt, wenn es um den Nachweis verhältnismäßig hoher Aktivitätskonzentrationen oder um einen besonders großen Meßbereichsumfang geht.

Beispielsweise wurde in der WAK Leopoldshafen eine Abgas-Kryptonmeßstelle installiert, die einen Plastikdetektor mit 17 mm Ø und 1 mm Dicke, Fensterstärke 0,05 mm Aluminium, in einem Meßgefäß von 45 cm Ø x 30 cm Höhe enthält. Der Eichfaktor dieser Anordnung beträgt 185 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3 ^{85}Kr. Durch 100-fach-Voruntersetzung der Ausgangsimpulsrate reicht der Meßbereich von einigen 10^{-6} Ci/m^3 linear bis 10 Ci/m^3, mit Totzeitkorrektur bis einige 100 Ci/m^3. Vergrößerung des Szintillators auf 25 mm Ø und 2 mm Dicke läßt den Eichfaktor auf 740 ipm ansteigen.

Eichungen einer ähnlichen Meßstelle in der KfA Jülich mit einem Szintillator von 38 mm Ø x 2 mm, fensterlos, ergaben die in Tabelle 9 dargestellten Werte **(JAHN 1973 b)**. Die auffallend geringe Energieabhängigkeit wurde absichtlich dadurch herbeigeführt, daß der Abstand Detektor-Gefäßwand nur 55 mm betrug. Bei einem Nulleffekt von 180 ipm ergibt sich daraus für ^{133}Xe eine Nachweisgrenze von $7{,}5 \times 10^{-8}$ Ci/m^3.

Tabelle 9 : Eichfaktoren für scheibchenförmige Plastikszintillatoren

Isotop	Szintillatorabmess. Abstand Detektor-fenster–Gefäßwand	^{88}Kr / ^{88}Rb	^{41}Ar	^{85}Kr	^{133}Xe	Referenz
Eichfaktoren	38 Ø x 2 mm 55 mm	750	200	—	210	a
	17 Ø x 1 mm 200 mm	—	—	185	—	b
	25 Ø x 2 mm 200 mm	—	—	740	—	b

a) JAHN (1973 b)

b) Laboratorium Prof. Dr. Berthold (unveröffentlicht) (1970)

2.4 Anordnungen mit Großflächen-Proportionalzählrohren

2.4.1 Bauformen

Großflächen-Proportionalzählrohre sind infolge ihrer großen wirksamen Zählfläche in Verbindung mit der dünnen Fensterfolie die höchstempfindlichen Detektoranordnungen für die Gasüberwachung. Handelsübliche Typen, wie die FH 407-Baureihe von Frieseke & Hoepfner, die DDD/DDA-Baureihe von Münchener Apparatebau oder die Großflächenzähler von Herfurth, haben Fensteröffnungen um 700 cm^2 bei Foliendicken zwischen 0,3 und 0,9 mg/cm^2.

Die Detektoren werden üblicherweise an der Wand eines Meßgefäßes mit Luftschichtdicken von ca. 50 cm angebracht. Durch Bleiabschirmung des Detektors (– oder, wenn man sich den Aufwand leisten will und kann, des ganzen Meßgefäßes) wird der Nulleffekt reduziert, durch Verwendung eines Schirmzählers in Differenz die Schwankungen des äußeren Strahlungspegels kompensiert.

Wo mit einem konstanten, niederen Untergrund zu rechnen ist, kann man auch Detektoren mit beidseitigem Fenster in der Mitte einer Luftkammer doppelten Volumens anbringen. Diese Anordnung ist geometrisch die günstigste, weil sie bei gleichem Nulleffekt die doppelte Strahleneintrittsfläche bietet. Dafür läßt sich der Detektor nicht abschirmen; man müßte zur wirksamen Reduktion des Nulleffektes die Abschirmung schon auf das ganze Meßgefäß oder wesentliche Teile desselben ausdehnen. Eine Anlage, die mit 24 Meßstellen nach diesem Prinzip zur Überwachung eines großen Isotopenlabors arbeitet, ist seinerzeit von der Firma Frieseke und Hoepfner in Zusammenarbeit mit dem Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt und gebaut worden **(HOGREBE 1963 a)**. Auch Dreifachdetektoren mit zwei außenliegenden Fenstern und einem Schirmzähler in der Mitte zur Nulleffektskompensation selbst bei derartigen 4 -pi- Meßanordnungen, sind schon realisiert worden **(LABOR BERTHOLD, 1969)**.

Um die dünne Fensterfolie vor Beschädigung durch Druckschwankungen zu bewahren, werden die Großflächenzählrohre zum Einsatz bei Luftüberwachungsanlagen meist mit besonderen Stützgitterkonstruktionen versehen.

2.4.2 Eichfaktoren und Nachweisgrenzen

Für Überwachungsanlagen mit Großflächenzählrohren liegen zahlreiche Berechnungen und experimentelle Nachprüfungen der Nachweiswahrscheinlichkeiten für bestimmte Geometrien vor.

Ausführliche Daten und Eichfaktoren nicht nur für betastrahlende, sondern auch für alphastrahlende, gasförmige Radionuklide bei verschiedenen Detektoranordnungen, sind von **HOGREBE (1963 b) und von MÜLLER und NEMECEK (1964)** gegeben worden. Die wichtigsten sind in Tabelle 10 zusammengefaßt. Für ß-Strahler um 1 MeV erreicht man Nachweisgrenzen von einigen 10^{-9} Ci/m^3 (je nach Stärke und Geschlossenheit der Meßstellenabschirmung), für weiche ß-Strahler wie ^{14}C um 10^{-7} Ci/m^3. Selbst α-Strahler lassen sich mit 10^{-8} Ci/m^3 nachweisen.

Zum Vergleich der Auswirkungen einer Verkleinerung des Meßgefäßes sind in Tabelle 10 auch noch einige Werte für einen Behälter von den ungefähren Abmessungen 60 x 30 x 10 cm gegeben.

Tabelle 10 : Eichfaktoren für ein Großflächendurchflußzählrohr von 25 x 25 cm^2 Fensterfläche in einem Meßgefäß von 100 x 100 x 50 cm^3 (a) bzw. von 22 x 32 cm^2 Fensterfläche in einem Meßgefäß von ca. 60 x 30 x 10 cm^3 (b)

Isotop	^{41}Ar	^{85}Kr	^{133}Xe	^{135}Xe	^{14}C	^{222}Rn	^{131}J
Eichkonstante	$1{,}9 \times 10^4$	1×10^4	3×10^3	$1{,}4 \times 10$	5×10^2	5×10^2	$7{,}5 \times 10^3$ a)
		$2{,}2 \times 10^3$	9×10^2				b)

a) **MÜLLER und NEMECEK (1964)**

b) **SIEMENS (1972), Untersuchungsbericht 21 – 3 / 72, unveröffentlicht**

2.5 Spezielle Meßanordnungen

2.5.1 Messung von ^{85}Kr in Anwesenheit von ^{41}Ar

Das Problem, die radioaktiven Krypton- und Xenonisotope dieser bei der Kernspaltung entstehenden Gase auch im Beisein größerer ^{41}Ar-Konzentrationen zu messen, tritt nicht allein bei der Abluftüberwachung einzelner Reaktoren auf. In allen großen Forschungszentren finden sich eine ganze Reihe kerntechnischer Anlagen, die jede für sich radioaktive Edelgase produzieren und abgeben. Eine in dieser Hinsicht besonders ungünstige Konstellation ist eine Wiederaufarbeitungsanlage mit ihrem hohen ^{85}Kr-Ausstoß in der Nähe von Forschungsreaktoren und deren nicht unbeträchtlichen ^{41}Ar-Wolken. Hier wird die Immissionskontrolle vor eine harte Aufgabe gestellt.

Die ß-Maximalenergien von ^{85}Kr und ^{41}Ar betragen 0,67 MeV bzw. 1,20 MeV. Jeder Detektor, mit dem ^{85}Kr gemessen wird, erfaßt daher auch das ^{41}Ar, meist sogar mit einem größeren Wirkungsgrad. Umgekehrt ist es jedoch möglich, die Wandstärke so zu wählen, daß kein ^{85}Kr mehr, wohl aber ^{41}Ar zur Messung kommt. Das ist theoretisch bei 500, praktisch bei ca. 250 mg/cm^2 der Fall. Mit zwei Detektoren und Differenzbildung läßt sich so die Argon-Konzentration im Argon-Detektor getrennt messen und ihr Zählratenanteil im Argon-Krypton-Detektor bestimmen und abziehen. Meßanordnungen mit großflächigen GM-Zählrohren nach 2.2., die hierfür infrage kämen, ergeben keine sehr gute Trennung, da infolge der Wandstärke von 50 mg/cm^2 auch des Meßdetektors der Wirkungsgrad für Kr gegenüber dem für Argon verhältnismäßig gering ist.

Bessere Ergebnisse werden mit Plastikszintillatoren erzielt **(JAHN, 1973 a)**, bei denen der Meßdetektor völlig fensterlos arbeitet, während der Kompensationsdetektor mit einer Folie von geeigneter Stärke abgedeckt ist. Für den optimalen Trenneffekt spielen auch die Meßgefäßdimensionen eine Rolle. Die erreichten Werte werden auf dieser Tagung im Beitrag von Herrn Dr. Jahn gebracht.

EDELHÄUSER u.a. (1973) haben eine Anordnung mit 2 Dreifach-Sandwichgroßflächenzählern mit Fensteröffnungen von 24 x 64 cm^2 beschrieben, die beiderseits eines quaderförmigen Meßvolumens von ca. 50 l montiert sind. Für den Fall, daß nur die ß-Strahlung des ^{41}Ar aus dem Meßvolumen kompensiert werden muß, ergibt sich mit der beschriebenen Anlage eine Nachweisgrenze für ^{85}Kr von $1{,}4 \times 10^{-8}$ Ci/m^3. Bei Einfluß äußerer Gamma-Strahlung aus der ^{41}Ar-Wolke, muß das Kompensationsverfahren so modifiziert werden, daß sowohl der Einfluß der Gamma-Strahlung als auch der ß-Strahlung von ^{41}Ar kompensiert wird. Die Nachweisgrenze beträgt dann aber $12{,}5 \times 10^{-8}$ Ci/m^3.

2.5.2 ^{133}Xe in der Nuklearmedizin

^{133}Xe wird in der Nuklearmedizin – vor allem in den USA – in zunehmendem Maße zur Kontrolle der Lungenfunktion und für cerebrale Durchblutungsmessungen verwendet. Das macht eine Überwachung der Laborluft notwendig, wozu relativ einfache Monitore auf Ionisationskammer-Durchflußbasis erhältlich sind. Beispielsweise erreicht ein solches Gerät **(JOHNSTON LABORATORIES 1973 a)**, das rd. 1.500 $ kostet und einen akustischen Alarm sowie eine Eichvorrichtung enthält, Nachweisgrenzen um 2×10^{-6} Ci/m^3 ^{133}Xe, das entspricht ca. 20 % des 3-fachen MZK-Wertes nach Anlage II der 1. Str. Sch. VO.

Selbstverständlich lassen sich auch alle anderen Geräte, die in den Abschnitten 2.2 – 2.4 beschrieben worden sind, sowie die ^{3}H-Edelgas-Monitore aus Abschnitt 3.3.4 für den gleichen Zweck einsetzen.

2.5.3 ^{14}C in der Nuklearmedizin

Die Messung ^{14}C-markierter Verbindungen in der Ausatemluft nach Metabolisierung stellt ein spezifisches Problem der Nuklearmedizin dar. Meßtechnisch liegt hier die Schwierigkeit darin, eine optimale Nachweisempfindlichkeit bei – wegen der begrenzten Atemluftmenge – relativ kleinem Meßvolumen von einigen Litern zu erreichen.

Ein unter dem Namen Exhalameter bekanntes Gerät **(FRIESEKE & HOEPFNER 1967)** benutzt drei Großflächenzählrohre mit generator-kompensiertem Nulleffekt in Verbindung mit einem 6-l-Meßgefäß. Die Eichkonstante ist rd. 0,3 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3.

3. TRITIUM

3.1 Überblick

Die niedere Energie der Tritium-Betastrahlung erfordert es, das ^{3}H-haltige, gasförmige Medium — meist Luft, die tritiierten Wasserdampf enthält — zur Messung in das Innere eines geeigneten Detektors zu bringen. Ausführliche Bschreibungen der Möglichkeiten und Verfahren zur kontinuierlichen wie zur diskontinuierlichen Messung finden sich z.B. bei **KIEFER und MAUSHART (1964), bei EHRET (1967)** und bei **MAUSHART (1967).** Hier soll nur auf die gebräuchlichsten und häufig angewandten Geräte zur routinemäßigen, kontinuierlichen Luftüberwachung eingegangen werden. Dazu sind im Prinzip drei verschiedene Detektortypen brauchbar:

- Durchflußionisationskammern
- Durchflußproportionalzählrohre
- Durchflußszintillationskammern

Unter optimalen Bedingungen erreichen Durchflußionisationskammern moderner Bauart, mit Volumen um 10 l, Nachweisgrenzen von 10^{-6} Ci/m^3, Geräte mit Durchflußproportionalzählrohren messen bis herab zu 10^{-8} Ci/m^3 und weniger. Szintillationskammern mit einigen 1000 cm^2 Szintillatorflächen liegen dazwischen. Verglichen mit der MZK von 6×10^{-6} Ci/m^3 am Arbeitsplatz, stellt also die Nachweisempfindlichkeit kaum ein Problem dar. Die wirklichen Schwierigkeiten bei der Anwendung der Monitore, — vor allem in der Kerntechnik —, sind Störungen der Messung durch andere, höherenergetische Isotope als ^{3}H in der Meßluft, durch hohen oder schwankenden Gamma-Untergrund und schließlich durch interne Gerätekontaminationen und anschließendem Memory-Effekt. Eine weitere wichtige Kenngröße ist die Ansprechzeit der Meßanordnung vom Auftreten einer erhöhten ^{3}H-Konzentration bis zum Ansprechen des Alarms. Die Auswahl des geeigneten Gerätetyps wird durch die relative Wichtigkeit dieser einzelnen Faktoren entscheidend beeinflußt.

Wenn man hohe Verzögerungszeiten und einen nicht unerheblichen chemotechnischen Apparat in Kauf nimmt, dann läßt sich das ^{3}H, soweit es als tritiierter Wasserdampf in der Luft vorliegt, auch in einem kontinuierlichen Vorgang ausfällen und in der flüssigen Phase messen, wodurch die Störeinflüsse von Fremdisotopen und Background weitgehend auszuschalten sind. Verschiedene Realisierungsmöglichkeiten für ein solches Verfahren beschreibt **OSBORNE (1971).** Die praktische Anwendung dürfte jedoch auf Ausnahmefälle beschränkt bleiben.

Soweit nur stichprobenartige Messungen verlangt werden — vor allem in der Umgebungsüberwachung kerntechnischer Anlagen —, friert man zweckmäßig die Luftfeuchte an trockeneisgekühlten Blechen aus und bestimmt den ^{3}H-Gehalt nach der Flüssigszintillationsmethode. Damit lassen sich noch Luftkonzentrationen von 10^{-10} Ci/m^3 ohne Schwierigkeiten nachweisen **(WINTER und KÖNIG 1972).**

Die Vor- und Nachteile der verschiedenen Systeme sind qualitativ in der Tabelle 11 zusammengefaßt. Es soll jedoch noch einmal besonders daraufhingewiesen werden, daß von den aufgeführten 5 Meßmethoden für die routinemäßige Arbeitsplatz- und Abgasüberwachung nur die ersten beiden, — Durchflußionisationskammer und -Proportionalzählrohr —, in Frage kommen, wobei zumindest beim Einsatz an Reaktoren und Kernkraftwerken die erreichbare Diskriminierung der ^{3}H-Messung gegenüber radioaktiver Edelgase für das Proportionalzählrohr ganz entscheidend in's Gewicht fällt.

Tabelle 11 : Eigenschaften von verschiedenen Systemen zur ^{3}H-Messung in Luft

Gerätetyp	wie gebräuchlich ?	Nachweis-empfindlichkeit	Störsicherheit bei radioaktiven Edelgasen	Störsicherheit bei erhöhtem γ-Untergrund	gegen Memory-Effekte	Schnelligkeit der Anzeige	spezielle Nachteile
Ionisations-kammern	im Ausland überwiegend	schlecht bis ausreichend (ca. 2 x 10^{-6} Ci/m^3)	keine, nur mit Trockner und Differenzmessung ausreichend	keine, nur mit Kompensation ausreichend	schlecht	sehr gut (Sekunden bis Minuten)	häufige Kalibrierung, Luftverunreinigungen können stören
Proportional-zählrohre	in der BRD überwiegend	sehr gut (ca. 2 x 10^{-8} Ci/m^3)	ausreichend mit Kompensation gut	ungenügend, mit Kompensation gut	gut	ausreichend bis gut (einige Min. bis einige 10 min)	Zählgas-versorgung notwendig
Plastik-Szintillator-kammern	selten (Kanada)	ausreichend (ca. 10^{-6} Ci/m^3)	ungenügend, nur mit Trockner u. Differenzmess. ausreichend	nur mit hoher Abschirmung ausreichend	sehr schlecht	gut (Minuten)	sehr anfällig gegen Verschmutzung und Kontamination
Konversion und Messung in flüssiger Phase (kontinuierlich)	selten (nur als exp. System)	schlecht bis ausreichend (ca. 5 x 10^{-6} Ci/m^3)	sehr gut	sehr gut	ausreichend	schlecht (Stunden)	hoher technischer Aufwand, Wartung notwendig
Ausfrieren und Messung in flüssiger Phase (diskontinuierlich)	für Stichprobenmessungen üblich	sehr gut (ca. 10^{-10} Ci/m^3)	sehr gut	sehr gut	sehr gut	—	Messung als Mittelwert eines relativ undefinierten Luftvolumens

3.2 Geräte mit Durchfluß-Ionisationskammern

3.2.1 Allgemeine Meßtechnik

Dieser Gerätetyp ist der älteste zur ^3H-Messung, seit über 20 Jahren in Gebrauch und auch heute noch im außerdeutschen Bereich fast ausschließlich vertreten. Ausnahmen sind neuerdings ein in den USA entwickelter, dem Berthold-Monitor LB 106 stark nachempfundener Monitor mit Proportionaldurchflußzählrohr **(TICE et al. 1973)** sowie die in Chalk River in Kanada – allerdings vornehmlich zur Wassermessung – verwendeten Szintillationskammern **(OSBORNE 1971)**.

Die unverkennbaren Vorteile der Ionisationskammergeräte sind der niedrige Preis – auf dem US-Markt zwischen zweieinhalb und dreieinhalb Kilodollars – und die Tatsache, daß im Gegensatz zu den Durchflußproportionalzählrohren kein zusätzliches Zählgas benötigt wird. Daraus resultiert die Möglichkeit eines hohen Luftdurchsatzes (beispielsweise 20 m^3/h) und damit einer kleineren Ansprechzeit.

Als weiterer Vorteil wird häufig die hohe Betriebssicherheit und Störunanfälligkeit genannt. Allerdings müssen in dieser Hinsicht viele Vorbehalte gemacht werden **(vgl. z.B. WATERS 1970)**.

Zu den vielen Störfaktoren, die zu Fehlmessungen Anlaß geben können, zählen Zigarettenrauch, Aerosole, Ionen, Feuchtigkeit und Kondensation, äußere Gammastrahlung, Tritium-Absorption und Memory-Effekt in der Kammer, die Anwensenheit von radioaktiven (Spaltprodukt-) Edelgasen oder Radon, und schließlich fehlerhafte oder fehlende Gerätekalibrierung.

Man sucht diesen Einflüssen durch Feinfilter und elektrostatische Ionenfallen, durch Kompensationskammern und durch fernbediente Kalibrierquellen zu begegnen, wobei jedoch die im Prinzip einfachen Meßgeräte wieder zu aufwendigen Einrichtungen gemacht werden.

Ein Vergleich der Meßempfindlichkeiten für drei verschiedene Kammersysteme, die zugleich als typisch gelten können, wird in Tabelle 12 gegeben. Insbesondere ist der starke Einfluß einer erhöhten Radon-Konzentration in der Meßluft hervorzuheben.

Tabelle 12 : Kenndaten einiger gebräuchlicher Ionisationskammersysteme

Gerät	Kammer-volumen (l)	Niedrigster Bereich (Vollausschlag) Ci/m^3					Referenz
		^3H	^{14}C	^{133}Xe	^{41}Ar	^{222}Rn	
FH 53 K (Frieseke & Hoepfner)	2 x 20	$3{,}7 \times 10^{-5}$	$3{,}1 \times 10^{-6}$	$2{,}7 \times 10^{-6}$	$4{,}7 \times 10^{-7}$		a
955 B (Johnston Laboratories)	4 x 5	10^{-5}	2×10^{-6}		ca. 10^{-6}	5×10^{-9}	b, c
755 C (Johnston Laboratories)	1,2	10^{-4}	$2{,}5 \times 10^{-5}$		ca. 10^{-5}		b, c

a: **FRIESEKE & HOEPFNER, Katalogblatt 42349 Ka, Erlangen (1969)**
b: **JOHNSTON LABORATORIES, Katalogblatt "Triton-Gas-Monitors" Cockeysville (1973)**
c: **R. WATERS (1970)**

3.2.2 Radioaktive Edelgase als Störfaktor

Besonders unangenehm ist das gleichzeitige Auftreten von anderen radioaktiven Gasen und Edelgasen neben Tritium. Infolge der pro Zerfall abgegebenen größeren Energie ist die Empfindlichkeit der Kammer für diese Strahler weit höher, so daß ^3H-Konzentrationen vorgetäuscht oder maskiert werden. Die Höhe des Störeinflusses hängt von der Größe der Kammer ab. Pro Tritiumzerfall wird immer die gleiche Ionenmenge erzeugt, pro Zerfall eines höherenergetischen Betastrahlers nimmt dagegen die erzeugte Ionenmenge mit größeren Kammerdimensionen und damit größerer Weglänge des Betateilchens zu. Gelegentlich hilft man sich mit einem Differenzverfahren, bei dem die zugeführte Meßluft in einem Meßzweig einen Trockner durchläuft. Tritiierter Wasserdampf wird so zurückgehalten, die Differenz aus beiden Meßzweigen entspricht der Tritiumkonzentration. In der Praxis hat sich die Methode als wenig wirksam erwiesen. Abgesehen von der Beschränkung aller Differenzverfahren auf nicht zu große Meßwertunterschiede, wird hier nur das wassergebundene ^3H erfaßt. Der Einfluß von Memory-Effekten nach größeren ^3H-Konzentrationsschüben ist unkontrollierbar.

3.2.3 Gammauntergrund als Störfaktor

Besonders bei tragbaren Geräten, wo keine starken Bleiabschirmungen verwendet werden können, macht sich der Einfluß von äußerer Gammastrahlung unangenehm bemerkbar. Bei den üblichen Kammergrößen entspricht 1 mR/h etwa einer Anzeige, die 10^{-4} Ci/m^3 ^{3}H äquivalent ist.

Erhöhter γ-Untergrund wird mit abgeschlossenen Vergleichskammern kompensiert. Der γ-Einfluß kann damit unter günstigen Bedingungen bis auf 1 – 2 % herabgedrückt werden **(COWPER et al. 1966)**. Schwierigkeiten entstehen nicht nur, wie bei alten Kompensationssystemen mit mehreren Detektoren, durch den wechselnden Geometriefaktor bei Feldrichtungsänderungen. Die Begrenzung der Wirksamkeit wird hauptsächlich durch die Luftmassendifferenzen in beiden Kammern bei Temperatur- und Druckschwankungen gegeben.

Eine bei amerikanischen Geräten gelegentlich zu findende Erweiterungsmöglichkeit besteht darin, aus der Not der Gamma-Empfindlichkeit eine Tugend zu machen und das Gerät als Dosisleistungsmesser einzusetzen.

Dazu werden die Ausgänge der beiden Ionisationskammern, die zur γ-Kompensation bei ^{3}H-Messungen in Differenz geschaltet sind, einfach addiert.Das ergibt einen empfindlichsten Bereich von immerhin 0,05 mR/h Vollausschlag.

3.3 Geräte mit Durchflußproportionalzählrohren

3.3.1 Allgemeine Meßtechnik

Die Notwendigkeit, ^{3}H in der Luft gegenüber den Ionisationskammersystemen

- mit höherer Empfindlichkeit
- selektiv auch bei Anwesenheit radioaktiver Edelgase

  und
- mit möglichst geringem Memory-Effekt

zu messen, hat anfangs der 60er Jahre zur Entwicklung von Tritium-Monitoren mit Durchflußproportionalzählrohren geführt.

Das heute zur kontinuierlichen Messung ausschließlich benutzte Meßprinzip, wurde – aufbauend auf den Arbeiten von **DRIVER (1956)** und **HOUTERMANS und OESCHGER (1958)** – erstmals von **EHRET, KIEFER und MAUSHART (1963)** beschrieben. Weitere Veröffentlichungen stammen von **KIEFER und MAUSHART (1964 b), DREUTLER (1966), EHRET (1967), DOBIASCH (1966 und 1972), MAUSHART (1967)** und **TICE und WATERS (1973)**.

Bei diesem Meßprinzip finden als Detektoren entweder zylinderförmige, konzentrische 2-fach-, oder flache 3-fach-Proportionalzählrohre Verwendung, die von einem Gemisch aus etwa 30 % Meßluft und 70 % Zählgas (Methan) durchströmt werden. Der mittlere Zählraum dient als Meßzähler, der oder die äußeren Zählräume als Schirmzählrohre. Die Zählräume sind nur durch Kathodengitter voneinander getrennt, so daß der eigentliche Meßzähler praktisch 'wandlos' und damit weitgehend unempfindlich gegenüber einer internen Tritium-Kontamination ist (daß dennoch Memory-Effekte beobachtet werden, rührt von den unvermeidlichen Tritium-Adsorptionen in den Vorfiltern, Zuführungsschläuchen und der Pumpe her).

Als Maß für die Tritium-Konzentration im Detektor wird die antikoinzidente Impulsrate zwischen dem Meß- und den Schirmzählrohren angezeigt (Tritium-Meßkanal). Die Tritium-Betas, die im Gas nur eine mittlere Reichweite von 1 – 2 mm haben, sind in der Mehrzahl zu energiearm, um in beiden Zählräumen gleichzeitig meßbare Impulse auszulösen. Höherenergetische Betateilchen von ^{14}C oder radioaktiven Edelgasen werden dagegen in der Mehrzahl der Fälle beide Zähler durchdringen und somit durch die Antikoinzidenzschaltung eliminiert. Dabei ist es von besonderer Wichtigkeit, durch geeignete Ausbildung der Kathodengitter-Konstruktion dafür zu sorgen, daß Schirm- und Meßzählräume elektrisch wirklich sauber voneinander getrennt sind (Durchgriff 0), um einerseits ein 'Übersprechen' zwischen beiden zu verhindern, und andererseits keine ^{3}H-Impulse in der Antikoinzidenz zu verlieren. **(WOLTER 1966)**.

Die Volumina der verwendeten Zähler reichen von einigen Kubikzentimetern bis zu mehreren Litern. Größere Meßräume bringen höhere Nachweisempfindlichkeiten, bedingen aber bei vergleichbaren Ansprechzeiten einen entsprechend höheren Zählgasverbrauch.

Dabei ist in Bezug auf die Raumökonomie derjenige Detektor am vorteilhaftesten, der das beste Verhältnis Meßvolumen/Gesamtvolumen aufweist. Allerdings ist in der Praxis auch wesentlich für eine gute und rasche Spülung, daß nirgends 'tote' Gasräume entstehen. Hier ist der ringförmige Zähler den flachen im allgemeinen überlegen.

Um Anstiegszeiten in der Größenordnung von etwa 5 Minuten bis auf 90 % des Endwertes zu erreichen, sind mindestens Gasdurchflußmengen von mehreren Litern pro Minute notwendig **(MAUSHART 1968)**. Um von einer Flaschengasversorgung unabhängig zu sein und einen höheren Gasverbrauch tolerieren zu können, wird neuerdings in zunehmendem Maße Erdgas als Zählgas verwendet. Hier muß man allerdings vorsichtig sein, da die Zusammensetzung des Erdgases schwanken, und damit im Zählrohr Plateauverschiebungen hervorrufen kann, die sich auf die Stabilität der Messung und auf den Eichfaktor auswirken. Beispielsweise wird dem russischen Erdgas, um seinen Heizwert dem holländischen anzugleichen, ein erheblicher Anteil Stickstoff (bis 30 %) beigemischt. Beim Betrieb mit Erdgas sind also zumindest häufige Plateaukontrollen zu empfehlen. Eine Methode zur automatischen Stabilisierung wird in 3.3.6 beschrieben.

3.3.2 Nachweisgrenzen und Eichung

Bei Meßvolumina in der Größenordnung Liter liegen die Eichfaktoren typisch bei 2×10^{-9} Ci/m^3 Tritium/ipm, woraus sich bei Ratemeterbetrieb mit den üblichen Zeitkonstanten eine Nachweisgrenze von etwa 2 bis 4×10^{-8} Ci/m^3 Tritium ergibt. Bei Verwendung digitaler Ratemeter und Basismeßzeiten von ca. 1 Stunde lassen sich – z.B. in der Umgebungsüberwachung – noch Nachweisgrenzen um 5×10^{-9} Ci/m^3 erreichen. Eine Zusammenstellung der wichtigsten Daten einiger gebräuchlicher Geräte findet sich in Tabelle 13.

Tabelle 13 : Kenndaten einiger gebräuchlicher Proportionalzählrohrsysteme

Gerät	Meßvolumen/ Gesamtvolumen (l)	Eichfaktoren ipm/10^{-6} Ci/m^3 im ^{3}H-Kanal					Richtwert für NE ohne/mit Abschirmung (ipm)	Mischungsverhältnis Luft/Methan	Referenz
		^{3}H	^{14}C	^{41}Ar	^{133}Xe	^{85}Kr			
FHT 112 A Frieseke & Hoepfner	0,25 / 0,75	56					30/ –	25/75	a
TMH 2 Kimmel	0,1 / 0,3	25	18	12	15	15	10/ –	33,3/66,6	h
FHT 63 B Frieseke & Hoepfner	1,2 / 3,6	500	150	70			55/ –	25/75	b, f
SMHK Kimmel	2/6	500	150	50	ca. 70	ca. 60	50/ –	33,3/66,6	c
LB 106 Labor Berthold	0,23 / 1,3	63	30	6			–/7	50/50	d, g
Bzg. unbekannt Johnston Laboratories	2,27 / 6	450					–/5	12,5/87,5	e

a: FRIESEKE & HOEPFNER, Katalogblatt 42 341 (Erlangen 1968)

b: FRIESEKE & HOEPFNER, Katalogblatt 42306/51 . . Ka, Erlangen (1973)

c: MÜNCHENER APPARATEBAU – KIMMEL KG, Prospektblatt P 253

d: ELMDUST UND KÜHN (1969)

e: TICE AND WATERS (1973)

f: FRIESEKE & HOEPFNER, Firmenschrift 'Tritium-Monitor' Erlangen (1968)

g: LABORATORIUM PROF. DR. BERTHOLD, Katalogblatt BF 54 - 1 - 717, Wildbad (1971)

h: MÜNCHENER APPARATEBAU – KIMMEL KG, Prospektblatt P 253 und P 243

Über zweckmäßige Anordnungen zur Eichung von kontinuierlichen ^{3}H-Monitoren sowie über die dabei auftretenden Probleme berichten **EHRET et al. (1963), ELMDUST und KÜHN (1969)** und **DOBIASCH (1972).**

Bei der Durchführung von Eichungen und bei der Angabe von Eichfaktoren ist zu beachten, daß diese vom Mischungsverhältnis zwischen Meßluft und Zählgas abhängt. Glücklicherweise ist bei Verwendung von Methan diese Abhängigkeit jedoch nicht allzu kritisch, da sich durch geeignete Wahl von Mischungsverhältnis und Hochspannungseinstellung eine Art Plateau finden läßt. Man nützt dabei die Tatsache aus, daß bei konstanter Hochspannung durch steigenden Meßluftanteil einerseits die Ansprechempfindlichkeit des Detektors zurückgeht, andererseits die absolute Menge an Tritium im Zählvolumen zunimmt, und sich diese beiden Effekte in einem gewissen Variationsbereich die Waage halten (vgl. Abb. 1).

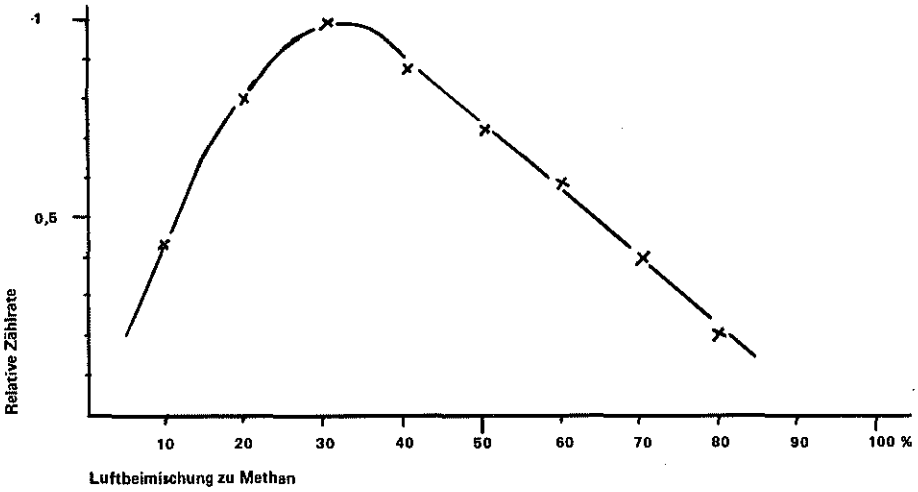


Bild 1

Änderung der Zählrate mit dem Mischungsverhältnis Luft/Zählgas bei gleichbleibender Hochspannung und konstanten ^{3}H-Konzentration in der Meßluft für den Tritium-Monitor LB 106.

Man sieht, daß ein Mischungsverhältnis von 30:70 nicht nur optimale Ausbeute, sondern auch minimale Meßfehler selbst bei erheblichen Schwankungen dieses Verhältnisses bringt.

Bei Argon-Methan dagegen ist die Abhängigkeit der Zählrate vom Mischungsverhältnis sehr viel stärker ausgeprägt, so daß dort besonders auf konstanten Gasdurchfluß geachtet werden muß.

Infolge der hohen Empfindlichkeit dieser Detektoranordnungen, ist der Meßbereich zu höheren Konzentrationen naturgemäß begrenzt. Um dennoch auch auftretende Konzentrationsspitzen erfassen zu können, ist eine Anordnung vorgeschlagen worden **(DOBIASCH 1972)**, welche zwei in ihren Volumina in etwa 1:1000 unterschiedliche Detektoren enthält. Die Umschaltung zwischen beiden Detektoren erfolgt automatisch, wodurch der Meßbereich der gesamten Anordnung bis zu 10^{-1} Ci/m^3 Tritium ausgedehnt wird.

3.3.3 ^{3}H-Messung bei Anwesenheit radioaktiver Edelgase

Einer der Hauptvorteile des Systems liegt in der Möglichkeit, den Einfluß höherenergetischer Betastrahler, die gleichzeitig anwesend sind, auf die Tritium-Messung zu eliminieren. Dabei wird auch die Konzentration dieser Strahler selbst getrennt bestimmt. Im Tritiumkanal wird immer ein gewisser, wenn auch kleiner Prozentsatz der Betateilchen, die von anderen Strahlern als Tritium herrühren, genauso wie ein Teil der Photo- und Comptonelektronen aus der Umgebungsstrahlung mitgemessen. Diese Einstreuung tritt bei Anwesenheit von radioaktiven Edelgasen oder bei schwankender Umgebungsstrahlung störend in Erscheinung. Sie wird durch jenen niederenergetischen Anteil des Betaspektrums verursacht, der im selben Energiebereich wie die Tritiumbetas liegt. Demgemäß ist die Einstreuung umso größer, je niedriger die Maximalenergie des Störstrahlers liegt.

Durch eine Differenzschaltung ist es prinzipiell möglich, den Störstrahlungsanteil von der Impulsrate im Tritium-Meßkanal abzuziehen und damit die reine Tritium-Aktivitätskonzentration unabhängig von der Anwesenheit anderer Betastrahler zu messen. Als Ausgangspunkt für die Kompensation dient die koinzidente Impulsrate zwischen Meß- und Schirmzählrohr. Um sicherzustellen, daß Koinzidenzen nur von höherenergetischen Betateilchen und nicht von Tritium-Betas ausgelöst werden, was bei hohen ^{3}H-Konzentrationen eine erhebliche Meßwertverfälschung mit sich bringen würde, ist eine besondere Form des Kathodengitters nötig, die 1973 für die Firma Frieseke & Hoepfner patentiert wurde (DBP Nr. 1539963 vom 1.2.1973). Eine andere Möglichkeit ist bei Sandwich-Detektoren auch die Koinzidenzbildung zwischen den beiden Schirmzählrohren. Allerdings vermindert sich dadurch der Wirkungsgrad für die Edelgasmessung.

Für jeden Störstrahler läßt sich der Kompensationsfaktor (Verhältnis antikoinzidente Impulsrate / koinzidente Impulsrate für diesen Strahler) ermitteln, mit dem die koinzidente Impulsrate vor der Subtraktion multipliziert werden muß. Für ^{41}Ar z.B. liegt der Faktor etwa bei 0,2. Dieser Faktor ist energieabhängig, so daß sich eine völlige Kompensation immer nur für ein bestimmtes Störisotop durchführen läßt. Durch die Kompensation wird außerdem aus statistischen Gründen die Nachweisgrenze für Tritium verschlechtert, da die Tritium-Zählrate ja als – bei hoher Störstrahlung relativ sehr kleine – Differenz zweier Impulsraten gebildet wird. Im mittleren Konzentrationsbereich lassen sich Trennfaktoren von besser als 1:100 erreichen, d.h. weniger als 1 % der Edelgasaktivität wird als ^{3}H angezeigt.

Beispielsweise ergibt beim F & H – Tritiummonitor FHT 63 B 1 eine ^{85}Kr-Konzentration von 10^{-3} Ci/m^3 bei einem Kompensationsfaktor von 0,39 eine Differenz-Impulsrate von 10^3 ipm und täuscht damit eine ^{3}H-Konzentration von rd. 3 x 10^{-6} Ci/m^3 vor **(JAHN 1973 b)**.

Größere Edelgaskonzentrationen als einige 10^{-3} Ci/m^3 können bei diesen hochempfindlichen Detektorsystemen mit mehreren Litern Meßvolumen nicht mehr sinnvoll kompensiert werden, da dann die absoluten Impulsraten bereits zu hoch sind. Ähnliche Überlegungen gelten selbstverständlich, wenn nicht gegen Störstrahler in der Meßluft, sondern gegen einen äußeren Strahlungspegel kompensiert werden soll. Die Impulsrate im Tritium-Meßkanal beträgt beispielsweise beim unabgeschirmten Zählrohr FH 407 T (Meßvolumen 1,2 l) 10^4 ipm/mR/h. Die Begrenzung einer sinnvollen Kompensation liegt in diesem Fall bei ca. 15 – 20 mR/h. Mit abgeschirmten Detektoren läßt sich diese Grenze natürlich entsprechend erhöhen.

3.3.4 Messung radioaktiver Edelgase

Die koinzidente Impulsrate, die zur Kompensation der Tritiumrate benutzt wird, braucht nur noch angezeigt zu werden, um gleichzeitig mit dem Tritium auch die übrigen betastrahlenden, gasförmigen Aktivitäten zu erfassen. Allerdings sind die Eichfaktoren je nach der maximalen Betaenergie von Strahler zu Strahler verschieden, so daß eine Angabe in Ci/m^3 streng genommen nur für jeweils ein bestimmtes (und bei der Messung bekanntes) Nuklid gemacht werden kann.

Die Nachweisgrenze, die auf diese Weise für radioaktive Edelgase erreicht werden kann, liegt typisch bei ca. 5×10^{-8} Ci/m^3.

Beim Monitor LB 106 beträgt beispielsweise die ^{85}Kr-Eichkonstante für die Koinzidenzrate 200 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3, beim Monitor FHT 63 B für das gleiche Isotop 800 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3.

3.3.5 Praktische Ausführung von Tritiummonitoren

Entsprechend den unterschiedlichen Anforderungen bei der Arbeitsplatz- und Abluftüberwachung umfaßt das kommerzielle Angebot von Tritiummonitoren mit Proportionaldurchflußzählrohren zwei Gerätetypen: einen kleinen, tragbaren Monitor mit Detektorvolumen von einigen 100 cm^3 und einer Nachweisgrenze von rd. 5×10^{-7} (1/10 MZK für Kontrollbereiche), und einen stationären, gamma- und edelgaskompensierten Monitor mit Detektorvolumen von rd. 2×10^{-8} (1/10 MZK für Bevölkerung). Als Beispiel für den erstgenannten Typ mag der Monitor FHT 112 A der Firma Frieseke & Hoepfner dienen (Bild 2). Das komplette Gerät einschließlich Detektor und Pumpe für die Meßluft ist in einem Gehäuse der Abmessungen von nur $24 \times 16 \times 41$ cm^3 untergebracht, kann aber auch als Einschub (UC/2) benutzt werden. Bei Überschreiten eines einstellbaren Pegels werden optische und akustische Signale gegeben, ebenfalls wird Geräteausfall angezeigt. Mit den Grenzwertschaltern können auch externe Alarmeinrichtungen gesteuert werden; ein Schreiberanschluß steht zur Verfügung. Für mobilen Einsatz ist zur Aufnahme des Monitors mit Gasversorgung ein kleiner Rollwagen vorgesehen. Meßtechnische Daten finden sich in Tabelle 13.

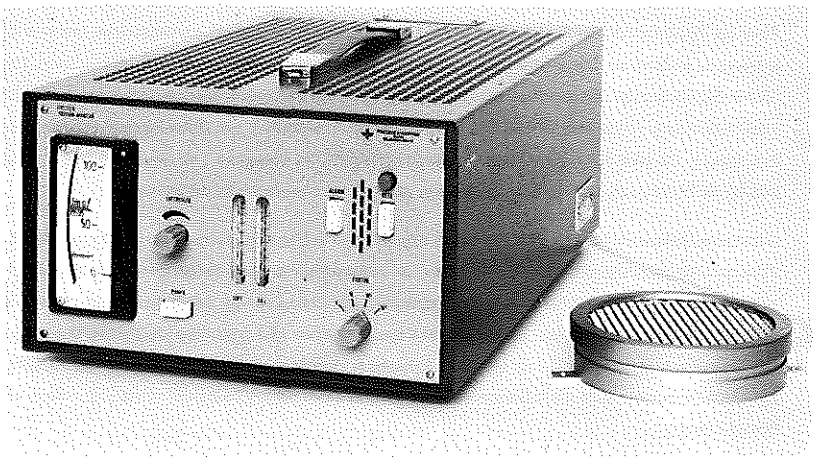


Bild 2

Tragbarer ^3H-Monitor FHT 112 A in Kompaktbauweise, Nachweisempfindlichkeit ca. 5×10^{-7} Ci/m^3, mit eingebauter Alarmschwelle mit optischer und akustischer Warnung, sowie Signal für Geräteausfall.

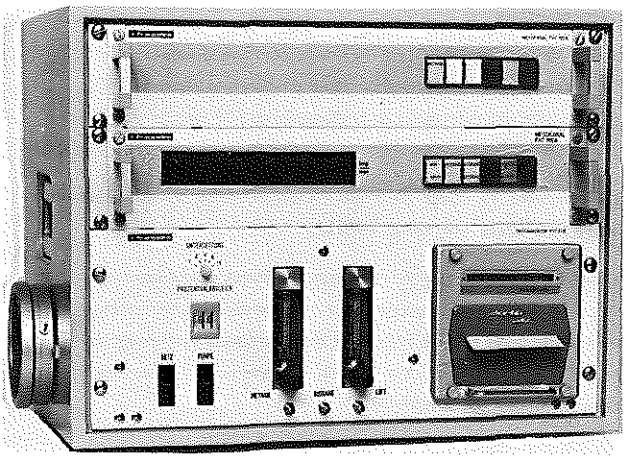


Bild 3

Der heutige Stand der Tritium-Meßtechnik: Tritium-Monitor FHT 63 B 2 mit moderner Digitalelektronik, in Prozentschritten einstellbarem Kompensationsfaktor zur zuverlässigen Tritiummessung selbst bei 300-fach höherer Edelgaskonzentration oder einem äußeren Gammafeld bis 15 mR/h; Modell FHT 63 B 1 hat außerdem gleichzeitige, getrennte Anzeige der Edelgaskonzentration. Datenausgabe wahlweise analog und/oder digital auf Drucker oder Rechner.

Das in wesentlichen Teilen neuentwickelte Tritium-Monitor-System FHT 63 B **(KOSMOWSKI und GEBAUER, 1973)** der gleichen Firma dient dagegen der Abluftüberwachung mit höchster Nachweisempfindlichkeit. Auch hier wurde besonderen Wert auf äußerst kompakten Aufbau gelegt. Je nach den Bedingungen der Einsatzart können drei Ausbaustufen gewählt werden: Der Monitor FHT 63 B 3 mißt das Tritium nach dem in Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Verfahren ohne weitere Kompensation; beim FHT 63 B 2 (Bild 3) wurde eine Koinzidenz hinzugefügt, so daß die ^{3}H-Messung auch bei Anwesenheit von radioaktiven Edelgasen oder erhöhtem Gamma-Untergrund möglich wird, wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben. Der Kompensationsfaktor ist dabei in Prozentschritten von außen einstellbar, um ihn möglichst exakt und jederzeit reproduzierbar den jeweiligen Meßbedingungen anpassen zu können. Der Monitor FHT 63 B 1 schließlich gestattet auch die separate, gleichzeitige Anzeige der Edelgaskonzentration. Besonders hervorzuheben ist die digitale Meßelektronik, realisiert mit dem 19"-Meßkanal FHT 700 A. Dadurch ist nicht nur eine Datenausgabe auf Schreiber, Drucker (gleichzeitig mit Ausdruck von Datum und Uhrzeit), Lochstreifenstanzer (Teletype) oder direktem Rechneranschluß möglich. Durch Verlängerung der Meßzeit auf beispielsweise einige Stunden lassen sich auch, wie u.a. für die Umgebungsüberwachung wichtig sein kann, Nachweisgrenzen unter 10^{-9} Ci/m^3 erzielen.

3.3.6 Spezielle Systeme

Von der **EBERLINE INSTRUMENT CORPORATION** ist ein ^{3}H-Monitor mit konzentrischen Ringzählern von 670 cm^3 Meßvolumen gebaut worden, der mit 3 Atü Betriebsdruck arbeitet und speziell der ^{3}H- und ^{85}Kr-Überwachung in Erdgas dient, dessen Quelle mit einer Nuklearexplosion erschlossen worden war **(BOWMAN et al., 1971)**. Das Erdgas wird unmittelbar durch den Detektor geleitet. Die Eichfaktoren sind 2.830 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3 für ^{3}H und 6.200 ipm (im Krypton-Kanal) pro 10^{6} Ci/m^3 für ^{85}Kr. Der Nulleffekt im Tritium-Kanal liegt bei 25 ipm, so daß die Nachweisgrenze den sagenhaften Wert von 7×10^{-10} Ci/m^3 erreicht. Hier fängt bereits das natürliche Radon an sich störend bemerkbar zu machen.

Bemerkenswert an dem System ist außerdem die automatische Stabilisierung, die Veränderungen in Druck, Temperatur und Zusammensetzung des Erdgases ausgleichen soll. Das Erdgas wird durch einen Vergleichsdetektor (mit kleinerem Volumen) geleitet, in dem mit Hilfe einer eingebauten Quelle (1,4 μCi ^{63}Ni) eine Impulsrate von ca. 10^{6} ipm erzeugt wird. Diese Impulsrate steuert die Hochspannung des Meßzählers, so daß Plateauveränderungen in einem gewissen Bereich korrigiert werden. Ein Alarm zeigt an, wenn die Grenzen des Regelbereiches erreicht werden sollten.

3.4 Geräte mit Szintillationskammern

Geräte mit Szintillationskammern haben bisher zur Luftüberwachung keine allgemeine Verbreitung gefunden, obwohl **SANNES und BANVILLE** schon **1965** einen tragbaren Monitor mit spiralförmiger Plastik-Meßzelle von 70 cm^3 Volumen beschrieben haben. Sie werden offenbar auch kommerziell nicht hergestellt und sollen hier nur der Vollständigkeit halber kurz erwähnt werden.

Das Meßprinzip ist das gleiche wie bei der Flüssigszintillationsmessung, es sind also bei einigermaßen höheren Empfindlichkeitsansprüchen 2 Fotomultiplier, eine schnelle Koinzidenzstufe und der entsprechende elektronische Aufwand nötig.

Da man bei der Auslegung der Detektorkammern auf ein gutes Verhältnis von Volumen/Wandfläche legen muß, kommt man zwangsläufig auf eine kamm artige Anordnung des Plastikszintillatormaterials. Die Volumenvergrößerung selbst ist rasch begrenzt durch den abnehmenden Wirkungsgrad der Lichtübertragung und den Umfang der notwendigen Abschirmung, um den Nulleffekt in tragbaren Grenzen zu halten.

In einem Würfel von 5 cm Kantenlänge lassen sich etwa 3000 cm^2 Szintillatorfläche unterbringen **(OSBORNE 1971)**. Der ^{3}H-Wirkungsgrad liegt dann in der Größenordnung von 10 %. Hinter 10 cm Pb beträgt der Nulleffekt ca. 20 ipm, das entspricht etwa der Impulsrate, die durch 10^{-6} Ci/m^3 ^{3}H in der Luft hervorgerufen wird.

4. KURZLEBIGE N– UND O–ISOTOPE

4.1 Entstehung und maximal zulässige Konzentrationen

Beim Betrieb von Hochenergiebeschleunigern entstehen durch Wechselwirkung von primären und sekundären Teilchen mit den Nukliden der atmosphärischen Gase außer dem bekannten ^{41}Ar auch radioaktive Isotope des Stickstoffs, des Sauerstoffs und des Kohlenstoffs. Die wichtigsten sind mit ihren charakteristischen Daten in Tabelle 14 zusammengestellt.

Tabelle 14 : Gasförmige radioaktive Nuklide an Hochenergiebeschleunigern

Isotop	^{15}O	^{13}N	^{11}C	Referenz
HWZ	2,1 m	10 m	20,4 m	
Energie ß (MeV) γ	$ß^+$ 1,7 2 x 0,512	$ß^+$ 1,25 2 x 0,512	$ß^+$ 0,96 2 x 0,512	
MZK (Ableitungswert)	2×10^{-7}	2×10^{-7}	2×10^{-7}	a
MZK (geschlossene Räume)	ca. 3×10^{-5}	ca. 3×10^{-5}	ca. 5×10^{-5}	b

a: KÖNIG (1969)

b: Gemittelte Werte aus einer Zusammenstellung von HÖFERT (1969)

Für die MZK dieser Isotope sind in der 1. Str. Sch. VO keine Werte gegeben; unter den vorliegenden physikalischen Bedingungen wäre es aber sinnlos, den dann formal platzgreifenden Wert von 4×10^{-13} Ci/m^3 für unbekannte Gemische anzusetzen. Von verschiedenen Autoren sind daher unter der Voraussetzung einer Strahlenbelastung im wesentlichen durch Immersion MZK-Werte berechnet worden. Eine Zusammenstellung davon gibt **HÖFERT (1969)**. Es zeigt sich, daß die Strahlenbelastung in geschlossenen Räumen praktisch nur durch die Betastrahlung der Haut bestimmt wird. In diesem Fall ergeben sich Toleranzkonzentrationen von einigen 10^{-5} Ci/m^3 für die 40-Stunden-Woche. Im Freien hängt die Strahlenbelastung vom Durchmesser der radioaktiven Wolke ab. Infolge der kurzen Halbwertszeit der in Frage kommenden Nuklide ist es höchst unwahrscheinlich, daß radioaktive Volumen von praktisch unendlicher Ausdehnung entstehen, wie dies etwa beim ^{41}Ar der Fall sein kann. Die Abgabekonzentrationen der gesamten Edelgasgruppe wurden im Interesse einer minimalen Belastung der Umgebung dennoch vom Kernforschungszentrum Karlsruhe mit 2×10^{-7} Ci/m^3 festgesetzt **(KÖNIG 1969)**.

4.2 Messung

Alle drei in Frage kommenden Nuklide sind Positronenstrahler. Sie können also mit allen auch für die übrigen Edelgase brauchbaren Meßanordnungen erfaßt werden, wobei die Nachweisgrenze bzw. der Eichfaktor durch ihre jeweilige ß-Strahlungsenergie bestimmt wird. Zwar liegen nach Wissen des Verfassers keine experimentellen Eichungen vor, doch kann man wohl ohne schwerwiegende Fehler die Werte von ^{41}Ar benutzen. Allerdings lassen sie sich dann bei der Messung auch nicht von ^{41}Ar unterscheiden, es sei denn durch Halbwertszeitanalysen an stehenden Gasvolumen.

Darüber hinaus bietet die Vernichtungsstrahlung von 0,512 MeV jedoch die Möglichkeit, die Gruppe dieser Nuklide spezifisch zu erfassen, indem man als Detektor einen NaJ(Tl)-Szintillationskristall benutzt. Wiederum sind für eine solche Meßanordnung keine Eichwerte bekannt; wenn man jedoch annimmt, daß praktisch von jedem auf dem Detektor auftreffenden Positron eines der beiden, in entgegengesetzter Richtung ausgesandten Vernichtungsquanten in das Kristallvolumen eintritt und gezählt wird (– dazu kommen ja auch noch ein paar Quanten aus dem Gasraum), so wird der Eichfaktor gleich dem eines ß-Detektors mit gleicher empfindlicher Meßfläche sein. Er liegt dann beispielsweise bei einem 1" x 1"-Kristall und einem Meßgefäß von 45 Ø x 30 cm in der Größenordnung 600 ipm / 10^{-6} Ci/m^3 auf der 0,51-MeV-Linie, so daß die MZK von 2×10^{-7} Ci/m^3 noch ohne weiteres nachweisbar sein wird. Größere Kristalle verbessern diese Nachweisgrenze natürlich entsprechend.

5. RADON

5.1 Vorkommen

Messungen des Radongehaltes können aus verschiedenen Gründen interessieren. Als natürlicher Aktivitätsanteil der Luft mit Konzentrationen bis zu 10^{-9} Ci/m^3 (in bestimmten geologischen Gebieten oder Gebäuden aus uranhaltigen Baumaterialien auch mehr) stören das Radon und seine Folgeprodukte die Überwachungsmessung künstlicher α-Strahler wie beispielsweise Plutonium. Hier wie auch bei low-level-Messungen in Ganzkörperzählern, ist es daher vorteilhaft, wenn die Radonkonzentration am Ort solcher Einrichtungen vorher gemessen werden können, um durch gezielte Maßnahmen in der Zuluftführung den Radongehalt möglicherweise zu vermindern.

Radium- oder Uraninkorporationen lassen sich unter anderem durch das Radon in der Ausatemluft bestimmen.

Und schließlich ist der wichtigste Anwendungsfall die Radonmessung in Urangruben, da durch Inhalation der kurzlebigen Zerfallsprodukte dieses Edelgases eine erhebliche Strahlenbelastung der Lunge von Bergarbeitern hervorgerufen wird.

5.2 Messung

Radon kann zwar mit den bereits in Abschnitt 2.4 beschriebenen Detektoranordnungen mit Großflächenzählrohren sowie mit den Ionisationskammer- oder Proportionaldurchflußdetektoren der Abschnitte 3.2 und 3.3 direkt gemessen werden. Im allgemeinen reicht die Nachweisempfindlichkeit jedoch nicht aus, um die natürlichen Radonkonzentrationen noch zu erfassen. Die Direktmessung hat außerdem den Nachteil, daß das Radon nicht spezifisch nachgewiesen wird. Die gebräuchlichen Radon-Meßverfahren arbeiten daher mit Abtrennung der Radonfolgeprodukte, die dann auf geeignete Weise mit einem α-Detektor gemessen werden.
Eine Zusammenstellung der erreichbaren Werte ist in Tabelle 15 gegeben.

Tabelle 15 : Nachweisgrenzen verschiedener Anordnungen zur Radonmessung

Meßanordnung	Großflächen-Zählrohr nach Abschnitt 2.4	Durchflußproportionalzählr. nach Abschn. 3.3	Durchflußionisationskammer nach Abschn. 3.2	Zweifilter-Methode	el. stat. Abscheidung auf Halbleiter	el. stat. Abscheidung in Gitter-Ionisationskammern (geschätzt)	Filterabscheidung u. Messung mit Halbleiter	diskontinuierliches System (kommerziell)
a) Nachweisgrenze	2×10^{-9}	1×10^{-9}	5×10^{-9}	10^{-10}	10^{-8}	10^{-11}	10^{-11}	10^{-13}
Referenz	b	c	d	e	f	f	g	h

a) **die angegebenen Werte beziehen sich nicht in jedem Fall auf vergleichbare Meßbedingungen und sind daher nur als Richtwerte zu betrachten; sie gelten außerdem nur unter den jeweils bestmöglichen Voraussetzungen.**

b) **MÜLLER und NEMECEK (1964)**

c) **WATERS (1970)**

d) **vom Verfasser berechnet**

e) **THOMAS und LECLARE (1970)**

f) **ALBRECHT und KAUL (1969)**

g) **JOHNSTON LABORATORIES (1973 b)**

Zur Absolutbestimmung des Radon-Gehalts dient die von **JACOBI (1963)** eingeführte Zweifiltermethode, die auch von zahlreichen Autoren theoretisch untersucht **(FONTAN 1964; THOMAS und LECLARE 1970)** oder als Grundlage zum Bau kontinuierlicher Radon-Monitore benutzt wurde **(BLANC u. a. 1967; TAYLOR und LUCAS 1966)**. Das Verfahren ist im Prinzip sehr einfach. Radonhaltige Luft wird durch ein Rohr gepumpt, das in einigem Abstand zwei Filter enthält. Das erste Filter hält die vorhandenen Tochterprodukte zurück und läßt nur Radon durch. Das zweite Filter sammelt die in der Zwischenzeit nachgebildeten Folgenuklide, im wesentlichen RaA, auf. Ein geeigneter Detektor registriert die Aktivität auf diesem Filter. Die Nachweisempfindlichkeit hängt von den Abmessungen des Rohres (typisch 5 cm Ø x 50 cm Länge) sowie von der Durchflußgeschwindigkeit ab. Nach **THOMAS und LECLARE (1970)** können Werte bis 10^{-10} Ci/m^3 erreicht werden; übliche Geräte liegen jedoch eher bei 10^{-9} Ci/m^3.

Eine weitere Methode zur Radonbestimmung wurde von **ALBRECHT und KAUL (1969)** angegeben. Von diesen Autoren wird das RaA der (ungefilterten) Meßluft elektrostatisch auf einem hochauflösenden Halbleiterdetektor abgeschieden und durch α-Spektroskopie spezifisch bestimmt. Der Eichfaktor dieser Anordnung beträgt 260 ipm pro 10^{-6} Ci/m^3. Damit läßt sich eine untere Nachweisgrenze von etwa 10^{-8} Ci/m^3 Rn erreichen. Die Autoren hoffen, durch Verwendung einer großvolumigen Gitterionisationskammer anstelle des Halbleiters die Nachweisgrenze auf 10^{-10} bis 10^{-11} Ci/m^3 senken zu können.

Für ausgesprochene Strahlenschutzmessungen kommt es jedoch nicht auf die Radonkonzentration alleine, sondern auf die potentielle α-Energiekonzentration der Rn-Zerfallsprodukte an (Working level, WL). Ein einfacher, tragbarer und direkt anzeigender Monitor zur langzeitigen Messung der integralen Radonexposition in Bergbaubetrieben, wurde von **HAIDER und JACOBI (1972)** entwickelt.

Die zu untersuchende Luft wird bei konstantem Luftdurchsatz durch ein Faserfilter gesaugt, wobei die Rn-Zerfallsprodukte auf der Filteroberfläche abgeschieden und angereichert werden. Die gesamte α-Aktivität des Filters setzt sich additiv aus der RaA- und RaC-Aktivität des Filters zusammen.

Die α-Aktivität des Filters wird mit einem über der Ansaugseite des Filters befindlichen Si-Halbleiter-Detektor gemessen, wobei die störende ß- und y-Strahlung diskriminiert wird. Die während der Meßzeit aufgetretene Zahl von α-Impulsen wird auf einem Zählwerk direkt angezeigt. Sie ist proportional dem Zeitintegral der α-Aktivität des Filters während der gesamten Meßzeit.

Unter Berücksichtigung des Nulleffekts von 5 Impulsen/h ergibt sich eine untere Nachweisgrenze von etwa 0,001 WL / h. Bei der mittleren potentiellen α-Energiekonzentration der Rn-Zerfallsprodukte in der bodennahen, atmosphärischen Luft von etwa 10^{-3} WL ergibt sich eine mittlere Zählrate von etwa 8 Impulsen/h zum Nulleffekt. Das entspricht bei radioaktivem Gleichgewicht in der Meßluft einer Radon-Konzentration von 10^{-11} Ci/m^3.

Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, daß höhere Nachweisempfindlichkeiten mit diskontinuierlichen Methoden erzielt werden (in kommerziell erhältlichen Anlagen bis 10^{-13} Ci/m^3; **JOHNSTON LABORATORIES 1973 b)**, jedoch kann im Rahmen dieses Referats darauf nicht näher eingegangen werden.

6. LITERATUR

Albrecht, E. und A. Kaul (1969); Eine Methode zur Bestimmung des zeitlichen Verlaufs von ^{222}Rn-Konzentrationen, 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Berlin, Tagungsberichte S. 174

Barz H.-G. und W. Jacobi (1970); Cylindrical plastic scintillators for monitoring ß-y-Activity in air and water, Health Physics 18, S. 659

Barz, H.-G. (1973); Berlin, private Mitteilung

Beck, H.L., et. al. (1971); In situ external environmental y ray measurements utilizing Ge-Li- and NaJ(Tl)-Spectrometry, IAEA-SM-148/2

Berthold, R.(1960); Zum Problem der Kontaminationsmessung in Luft und Wasser, Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie 'Radionuklide' Heft 2, München 1960

Blanc, D., et. al. (1967); in. Assessment of airborne radioactivity, IAEA Wien, (1967) S. 229

Bowman, C.R., et. al. (1971); On-line monitor for natural gas from nuclear stimulation, Tritium-Symposium Las Vegas, Nevada, Proceedings p. 548

Burgkhardt, B. (1969); Gamma-Teleskop zur Ausmessung radioaktiver Wolken, GfK-Bericht 20/69-3 S. 97

Cowper, G. et. al. (1966); The detection of Tritium in air with ionisation chambers, AECL-2604

Dobiasch, W. (1967); Möglichkeiten zur Messung von Tritium in Luft, G—I—T (1966) S.334

Dobiasch, W. (1973); Eichmethoden und Meßgrenzen von Monitoren zur selektiven Tritium- und Edelgasüberwachung in Luft, 6. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Karlsruhe, Tagungsbericht S.231

Dreutler, U. (1966); Strahlenschutzmeßtechnik, Kerntechnik 8 (1966) S. 367

Driver, G.E. (1956); Tritium Survey Instruments, Rev. Sci. Instr. 27 (1956) S. 300

Edelhäuser, H., et. al. (1973); Kontinuierliche Messung von ^{85}Kr in Anwesenheit von ^{41}Ar, KFK-Bericht 1679

Ehret, R., et. al. (1963); Fortschritte bei der kontinuierlichen Tritium-Überwachung in Luft, Direct-Information 2/63, G. Braun—Verlag, Karlsruhe

Ehret, R. (1967); Proportional Flow Counters for Measurement of Tritium in Air, Symposium on Instr. and Techniques for the assessment of airborne radioactivity, IAEA Wien 1967

Elmdust, M. und W. Kühn (1969); Zur Eichung eines Tritium-Monitors, G—I—T Heft 8, August 1969, S. 815

Fontan, J. (1964); The quantitative determination of gaseous radioelements which yield radioactive daughter products, ANL-TRANS-45

Frieseke & Hoepfner (1967); Firmenprospekt 'Exhalameter FHT 50 B' Erlangen

Gebauer, H. (1973); Vorschlag für Regeln zur Abluftmessung an wassergekühlten Kernkraftwerken, Schreiben an das BMI UA II 3 vom 17.5.73

Haider, B. und W. Jacobi (1972); Ein Monitor zur Messung der a-Aktivität in Luft, in: Strahlenschutz am Arbeitsplatz, 6. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Karlsruhe, Tagungsbericht S. 105

Höfert, M. (1969); Strahleninduzierte Luftaktivität in Hochenergiebeschleunigungsanlagen, 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., Berlin 1969, Tagungsbericht S. 76

Hogrebe, K. (1963 a); Facility for continuously monitoring the atmosphere of several laboratories by using large area counters, Int. Conf. on Radioactive Pollution of gaseous media, Saclay, Nov. 1963

Hogrebe, K. (1963 b); Die maximal zulässige Konzentration gefährlicher Radionuklide in Gasform und ihr meßtechnischer Nachweis, 12. Sitzung des Arbeitskreises IV/2 'Strahlenmeßverfahren' der Deutschen Atomkommission, Bad Godesberg

Houtermans, F.G. und H. Deschger (1958); Physica Acta 31, 117

Jacobi, W. (1963); A new method to measure Radon and Thoron in streaming gases, Proc. Int. Conf. Radioactive Pollution of gaseous media, Saclay, S. 509

Jahn, H. (1969); Eine einfache Meßanordnung für die Überwachung der Emmission von ^{41}Ar, 4. Jahrestagung des Fchverbandes für Strahlenschutz e.V., Berlin 1969, Tagungsbericht S. 113

Jahn, H. (1973 a); Abluftüberwachung an Forschungsreaktoren, Referat beim Kolloquium 'Raum- und Abluftüberwachung' des Fachverbandes für Strahlenschutz, 15. und 16.11.1973 Kernforschungszentrum Karlsruhe

Jahn, H. (1973 b); Jülich, private Mitteilung

Johnston Laboratories (1973 a); Firmenprospekt '^{133}Xe Gas Monitor', Cockeysville, Maryland

Johnston Laboratories (1973 b); Prospekt 'Radon System', Cockeysville, Maryland

Karches, G.J., et. al. (1971); Field determination of dose from ^{133}Xe, IAEA-SM-148/30

Kiefer, H. und R. Maushart (1959); Die Umgebungsüberwachung atomtechnischer Anlagen mit Zählrohren, Atomwirtschaft IV, Heft 6, S. 247

Kiefer, H. und R. Maushart (1963); Measurements in successive stages of an emergency in: Seminar on the Protection of the Public in the Event of Radiation Accidents, FAO Rom

Kiefer, H. und R. Maushart (1964 a); Strahlenschutzmeßtechnik, G. Braun-Verlag, Karlsruhe

Kiefer, H. und R. Maushart (1964 b); Kontinuierliche Tritumüberwachung in Luft und Wasser, in: Seminaire sur la protection contre les dangers du Tritium, Le Vesinet 1964, S. 83

König, L.A. (1969); Festsetzung höchstzulässiger Werte für die Ableitung radioaktiver Stoffe in die Luft, 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., Berlin 1969, Tagungsbericht S. 32

Kosmowski, A. und H. Gebauer (1973); Sicherheit durch neue Überwachungsanlagen — Radioaktivität der Luft, Wasser Luft und Betrieb 17, Nr. 7, S. 205

Laboratorium Prof. Dr. Berthold (1969); Katalog 'Strahlungsmeßgeräte aus dem Laboratorium Prof. Dr. Berthold' S. 30, Wildbad

Laboratorium Prof. Dr. Berthold (1972); Katalog 'Radiation Monitoring Instruments' S. 29 und Datenblatt SZ 19117-1, Wildbad

Las Vegas (1971); Noble Gases Symposium, National Environmental Research Center, Las Vegas, Nevada 89114

Maushart, R. (1968); Anzeigegeschwindigkeit und Abklingzeit beim Auftreten kurzzeitig erhöhter Tritiumkonzentrationen, 'Nukle(r)aritäten' 1/68, Wildbad

Maushart, R. und W. Stremme (1971); Moderne zukunftsbezogene Strahlungsmeßsysteme, Interkama 71, Kongreßvorträge S. 133, R. Oldenbourg-Verlag, München

Maushart, R. (1972 a); Moderne Meßsysteme für die Abluftüberwachung von Kernkraftwerken, Referat bei der Fachtagung der 'Nuclex' 1972, Basel

Maushart, R. (1972 b); Strahlungsmeßsysteme für den Umweltschutz, — dürfen wir zufrieden sein ? , Umwelt 1/72 S. 49

Müller, S. und P. Nemecek (1964); Kontinuierliche Luftüberwachungsanlagen zur Direktüberwachung von radioaktiven Substanzen, insbesondere von Gasen, Firmenschrift Frieseke und Hoepfner, Erlangen-Bruck, Sept. 1964

Nagel, E. (1969); ^{41}Ar-Messungen in der Umgebung des EIR Würenlingen, 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., Tagungsbericht S. 87

Osborne, R.V. (1971); Monitoring Reactor Effluents for Tritium, in: Tritium (A. Moghissi and M.W. Carter, Editors) Messenger Graphics, Las Vegas, Nevada 1973 S. 496

Plesch, R. (1968); Methoden der Isotopenpraxis, Hoppenstedt Verlag GmbH, Darmstadt

Probst, H. (1970); Aufbau und Kalibrierung einer Anlage zur Überwachung der Luftaktivität am AEG-Isochron-Zyklotron, G—I—T Heft 6/1970 S. 679

Sannes, F. und B. Banville (1965); A portable Tritium-in-air Monitor, AECL - 2283

Schmitt, A. und M. Winter (1967); Einsatz und Kalibrierung großflächiger Zählrohre des Typs BZ/120 A zur Bestimmung von ^{41}Ar-Konzentrationen in der Umgebungsluft, Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe, Externer Bericht 20/67-2, S. 113

Taylor, J. A. und H.F. Lucas (1966); Atmospheric Radon Monitor, ANL 7220

Tice, G. and J.R. Waters (1973); Continuous Monitor for Tritium in air with high sensitivity and wide range; 18th annual meeting of the Health Physics Society, 20. Juni 1973

Thomas, J.W. und P.C. Leclare (1970); A study of the two-filter method for ^{222}Rn, Health Physics 18, S. 113

Waters, R (1970); Pitfalls and common errors in the measurement of Tritium in air, 15th annual meeting of the Health Physics Society, Chicago, July 2, 1970

Winter, M. und L.A. König (1972); Experimente zur Bestimmung der atmosphärischen Ausbreitung von tritiiertem Wasserdampf, KFK-Bericht 1565, S. 133

Wolter, E. (1966); Kastenförmiges Großflächenzählrohr zur Messung gasförmiger Radionuklide, DBP 21 g Nr. 1539969 v. 1.2.73, angemeldet am 23.3.66

DISKUSSION

JAHN: Ich wollte vielleicht bitten, unsere von Herrn Maushart zitierten Werte hinsichtlich des Krypton ein kleines bißchen in einer Richtung vorsichtig zu behandeln. Wir mußten - da wir ja nicht beliebig viel Krypton zur Verfügung hatten - das ganze Verfahren in einem geschlossenen System durchführen. Wir hatten also einen Modellschornstein und dann die Leitung, die Förderpumpe und die Meßkammer. Das gesamte Volumen war etwa 1 m^3. Jetzt kam also zwangsläufig das Methan als Zählgas hinzu, so daß wir also das deutliche Gefühl bekamen, daß wir ein explosives Gemisch darin aufbewahrten, und wir wollten das Experiment nicht damit beenden, daß uns dieser ganze Versuchsmonitor um die Ohren flog. Aus diesem Grunde waren wir also gezwungen, die ganzen Messungen in einem Zeitraum von etwa 20 Minuten zu machen.

Das Versuchsgerät hatte noch den Nachteil, daß die Kompensation im Inneren gemacht werden mußte. Man mußte also die Zählkarten herausziehen und dann die kleinen Klämmerchen umsetzen. Diese fielen dann in der Aufregung auf die Erde. Ich meine, man müßte diese Messungen mit den neueren Geräten, wo insbesondere die Kompensation leicht von außen einstellbar ist, noch einmal wiederholen, aber die Größenordnung wird sicher stimmen. Ich möchte also noch einmal darauf hinweisen, daß wir da zwangsläufig einige Schwierigkeiten hatten.

MAUSHART: Dazu bin ich nun gezwungen, zu sagen, daß das sicher richtig ist. Ich habe ja auch selbst in meinem Vortrag darauf hingewiesen, daß der Kompensationsfaktor verändert werden muß. Bei den Geräten, die wir jetzt ausliefern, ist der Kompensationsfaktor von außen einstellbar.

KÖNIG: Ich möchte eine Lanze für die kontinuierliche Probenahme von Luftfeuchte brechen, mit der man eine sehr hohe Nachweisempfindlichkeit erreichen kann. Wenn Sie z.B. eine Abluftmenge von 10^9 m^3/a haben, so können Sie damit immerhin Tritiumableitungen im Bereich von mCi/a nachweisen. Außerdem ist sie in den Fällen, wo z.B. den Abgasen aggressive chemische Verbindungen beigemischt sind, die einzige Weisheit. Eine solche Apparatur wurde bei uns hier entwickelt und läuft schon seit längerer Zeit. Ein Bericht von Herrn Wilhelm, Herrn Dillmann und mir ist in der Atomwirtschaft erschienen.*

KUNZ: Ich habe eine Frage zu den Nachweisgrenzen. Sind diese bezogen auf den Nulleffekt eines "sauberen" Labors oder auf einen Nulleffekt, wie er in einem Kernkraftwerk zu erwarten ist?

MAUSHART: Sie sind, wie ich sagte, immer auf die optimalen Bedingungen bezogen. Es ist klar, daß ich keine Nachweisgrenze für irgendwelche Bedingungen an irgendeinem Kernkraftwerk geben kann. Daß sich dort die genannten Nachweisgrenzen erheblich verschlechtern können, ist ganz klar.

KUHN: Ich habe eine Frage auch zu den Nachweisgrenzen. Sie geben für die Luftüberwachung bei Ihren Durchflußzählrohren 10^{-9} als Nachweisgrenze an. Wir setzen die gleichen Zählrohre einheitlich bei unseren Druckwasserreaktoren in der Bundesrepublik ein. Wir geben für die gleichen Zählrohre die annähernd gleiche Geometrie - 2.10^{-7} -, also etwa die von Herrn Schwibach genannten Werte, an. Unsere Nachweisgrenzen sind bezogen auf eine etwa 5σ-Grenze und eine Minute Meßzeit. Die Nulleffekte sind besser, als sie in den Labors der Fa. Frieseke & Hoepfner in Erlangen gefunden werden, da wir bis zu 80 cm starke Betonabschirmungen über unserem Meßraum haben. Können Sie sagen, wie Ihre Nachweisgrenzen gefunden werden?

MAUSHART: Die Nachweisgrenzen habe ich der Literatur entnommen. Ich müßte jetzt an der dortigen Literaturstelle die genauen Bedingungen für die Nachweisgrenzen nachlesen. Ich kann also jetzt im Moment nicht darauf antworten, aber die Diskrepanz zwischen 10^{-9} und 10^{-7} erscheint mir so groß, daß da also irgendwo ein fundamentales Mißverständnis vorliegen muß. Ich glaube nicht, daß das jetzt dadurch zu überbrücken wäre, daß der eine nun 3σ und der andere 2σ oder 1 Minute oder 5 Minuten hat, sondern da scheint irgendetwas in den Prämissen nicht zu stimmen.

---

* L.A. König, J.G. Wilhelm, H.G. Dillmann, Kontinuierliche Probenahme zum Nachweis von wassergebundenem Tritium, Atomwirtschaft, No. 12, Dezember 1973, S. 582

KUHN: Darf ich abschliessend noch dazu sagen, daß der Kalibrierfaktor für diese Zählrohre experimentell an verschiedenen Stellen - teilweise unter Beisein des TOV - ermittelt wurde. Der Kalibrierfaktor für einen Impuls beträgt 10^{-9} µCi/cm^3. Der Nulleffekt liegt etwa bei 1000 Impulsen. Das sind experimentell an verschiedenen Stellen ermittelte Werte.

GEBAUER: Zu Ihrer Aussage bezüglich des Nulleffekts bei Frieseke & Hoepfner: Das Werk liegt auf einer Sandschicht und in dieser Sandschicht ist Thorium eingelagert; wir leiden also etwas unter der natürlichen Aktivität, die aus diesen Bodenschichten austritt. Es ist allgemein feststellbar, daß unsere Nulleffekte in Erlangen z.T. bis um einen Faktor 2 größer sind als an anderen Meßstellen in der Bundesrepublik. Die zweite Sache, die Diskrepanz zwischen den Nachweisgrenzen: ich glaube, Herr Maushart, Sie beziehen sich auf eine Kammer, die ein wesentlich größeres Einzugsvolumen hat als die Kammer, die das KWO benutzt hat mit den gleichen Zählrohren, und damit ergeben sich natürlich doch wesentliche Unterschiede in den Eichfaktoren.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

JOD-ÜBERWACHUNG

J.G. WILHELM

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG MBH., KARLSRUHE,
ABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT

Zusammenfassung

Es wird die für eine Jod-Ueberwachung in der Luft oder im Abgas notwendige Probengewinnung beschrieben, Auslegungsdaten für eine geeignete Filterpatrone zur Anreicherung von Jod für Meßzwecke werden gegeben. Die hauptsächlichen spezifischen Einflußgrößen, die die Jodabscheidung und Probenahme betreffen, werden diskutiert und praktische Hinweise für ihre Beherrschung gegeben. Die wichtigsten Gesichtspunkte zur kontinuierlichen Messung von Jod in Luft mit Hilfe eines Jodmonitors, der ein Alarmsignal auslösen kann, werden beschrieben und die Ergebnisse der Messung von kleinsten Jodaktivitätskonzentrationen in Luft durch diesen Jodmonitor wiedergegeben.

1. Einleitung

Der Nachweis von Jodisotopen im Bereich der Konzentrationswerte in Luft nach der 1. SSVO verlangt besondere Meßverfahren. Eine Direktmessung der Jodaktivität in Luft scheidet aus, wenn andere gasförmige Luftkontaminationen z. B. durch Edelgasisotope, vorliegen oder die Jodmessung durch eine erhöhte Ortsdosisleistung infolge weiterer radioaktiver Quellen gestört wird. Derartige Verhältnisse können bei der Raumluft- und Abluftüberwachung oder auch in der Umgebung eines Kernkraftwerkes erwartet werden.

In den meisten Fällen ist daher das Problem der Jodüberwachung in zwei Teilaufgaben aufzugliedern:

1. Die Gewinnung einer repräsentativen Probe über einen Anreicherungsprozeß,
2. die Messung der Probe.

Als Sonderfall ist die kontinuierliche Jodmessung zu betrachten, durch die bei Vorliegen einer unzulässigen Aktivitätskonzentration von radioaktivem Jod in der Luft ein Alarmsignal ausgelöst werden soll. In diesem Fall sind durch ein geeignetes Gerät die beiden obengenannten Teilaufgaben zu lösen.

2. Die Gewinnung einer repräsentativen Probe über einen Anreicherungsprozeß

Diese Aufgabe stellt sich in der Praxis laufend, z. B. bei der Abluftüberwachung sowie der Kontrolle der Raum- und Umgebungsluft. Zur Messung ist das Jod an einem geeigneten Jod-Sorptionsmaterial anzureichern. Zu den heute bekannten Materialien gehören die Jod- oder TEDA-imprägnierten Aktivkohlen, die Silberform von Molekularsieben und andere Sorptionsmaterialien, wie das Bayer Sorbens VP AC-6120, das in Zusammenarbeit der Gesellschaft für Kernforschung Karlsruhe und der Fa. Bayer AG, Leverkusen, entwickelt wurde. Diese Materialien eignen sich nur für die Abscheidung von gasförmigem Jod. Ihre Abscheideleistung gegenüber

elementarem Jod und Methyljodid wurde nachgewiesen, von anderen Jodformen wie z. B. der in neuester Zeit diskutierten unterjodigen Säure HOJ ist das Abscheidungsverhalten nicht mit ausreichender Sicherheit bekannt.

Luftgetragenes Jod kann auch in Partikelform, z. B. als Metall-Jodverbindung, vorliegen oder an feste Schwebstoffe adsorbiert bzw. in Tröpfchenaerosolen gelöst sein; in diesen Fällen muß das Jod durch ein Schwebstoffilter abgeschieden werden. Zweckmäßig ist die Benutzung von Schwebstoff-Filtermaterialien mit bekanntem Partikel-Abscheidegrad. Da Membranfilter dem Luftstrom einen relativ hohen Strömungswiderstand entgegensetzen, empfiehlt sich die Benutzung von Filterpapieren, die aus der Luftfiltertechnik stammen und meistens aus Glas- oder Nylonfäden bestehen. Der Abscheidungsmechanismus beruht dann nicht auf einem einfachen Siebeffekt, sondern, da die Porenöffnungen groß sind im Verhältnis zur Größe der abzuscheidenden Teilchen, vorwiegend auf partikelgrößenabhängigen Effekten wie Trägheitssperreffekt und Diffusionseffekt. Entscheidend für die Partikelabscheidung zu Meßzwecken ist ein niedriger Durchlaßgrad des Schwebstoff-Filterpapiers. Dieser ist bei Filterpapieren, die für Schwebstoffilter der Klasse S eingesetzt werden, in jedem Fall als ausreichend gering anzusehen.

Für die Jodmessung ist ein wesentlicher Gesichtspunkt, daß partikelförmig auftretendes Jod zwar durch Schwebstoffilter abgeschieden werden kann, aber z. B. durch Oxidation von Metalljodiden und Uebergang in elementares Jod, Jodverbindungen mit hohem Dampfdruck und anschliessende Desorption von den Partikeln bzw. dem Schwebstoffilter wieder gasförmig abgegeben werden kann. Damit entzieht es sich der Messung, falls dem Schwebstoffilter kein Sorptionsmaterial zur Abscheidung von gasförmigem Radiojod nachgeschaltet wurde. Es sei ausdrücklich betont, daß in Abhängigkeit von der Art der Bindung des Jodes an Partikel und Faser, der Betriebszeit des Schwebstoffilters nach der Beaufschlagung und den im Luft- bzw. Gasstrom herrschenden Bedingungen ein integraler Durchlaßgrad des Filters für das ursprünglich als Partikel abgeschiedene Jod von praktisch 0 - 100 % auftreten kann. Umgekehrt können spezifische Abscheidungseigenschaften eines Partikelfilters für gasförmiges Jod durch auf dem Filter abgeschiedenen Staub stark, meistens in Richtung höherer Rückhaltung, verändert werden. Ungebrauchte Partikelfilter haben gewöhnlich einen sehr niedrigen Abscheidegrad auch für elementares Jod. Beispiele sind in Tab. I für ein Luwa-Gelb-Papierfilter für verschiedene Jodkonzentrationen und auf die Beladung folgende Nachspülzeiten angegeben. Die Lufttemperatur betrug 30°C, die relative Luftfeuchte 70 %, die lineare Luftgeschwindigkeit 1 m/s. Es wurde eine kurze Beladungszeit gewählt, um in Verbindung mit kurzen Nachspülzeiten die Desorption der einmal abgeschiedenen Aktivität so niedrig wie möglich zu halten. Dadurch wurden höhere Abscheidegrade gemessen als bei längerem Filtereinsatz zu erwarten sind. Bei Versuchen mit trägerfreiem J_2 wurde $\leq 0{,}8$ % Jod pro Filter zurückgehalten. Ein Vergleich der auf dem ersten und zweitem Filter abgeschiedenen Aktivität zeigt wenig Unterschiede. Nach 60 min Spülzeit (trägerfreie Probe) war noch ca. die Hälfte der ursprünglich auf dem Filter abgeschiedenen Jodaktivität vorhanden. Im Konzentrationsbereich zwischen 1,6 und 2700 µg J_2 pro m^3 Luft betrug die J_2-Abscheidung an einem einzelnen Luwa-Gelb-Papierfilter maximal 3,7 %. Diese Daten zeigen, daß unter den gewählten Versuchsbedingungen keine wesentliche Abscheidung von J_2 an den frischen Luwa-Gelb-Papierfiltern erfolgte.

Eine einfache Filterpatrone zur Abscheidung und Anreicherung von luftgetragenem Jod sollte, wie diskutiert, aus einem Schwebstoffilter und einer nachgeschalteten Filterpatrone mit geeignetem Sorptionsmaterial bestehen. Im Normalfall dürfte zur Füllung der Filterpatrone eine imprägnierte Aktivkohle eingesetzt werden. Die Abscheidung des Jodes in der Patrone ist von einer Vielzahl von Faktoren, wie der chemischen Form des Jodes, den Bedingungen unter denen das Trägergas steht, der Trägergaszusammensetzung und der Abscheideleistung der Aktivkohle oder des sonst gewählten Sorptionsmaterials abhängig.

Jodkonzentration in Luft +) (µg/m³)	Spülzeit (min)	η Papierfilter (%)	
		Filter 1	Filter 2
trägerfreie Probe	5	0,69	0,80
trägerfreie Probe	30	0,53	0,49
trägerfreie Probe	60	0,32	0,34
1,6	5	3,5	3,7
3,5	5	3,0	3,0
65	45	0,61	0,40
84	60	1,5	0,34
100	5	3,0	3,2
470	5	1,9	1,7
550	5	0,92	0,61
580	5	2,4	2,4
850	15	1,8	1,2
1 100	30	0,24	0,39
2 700	5	0,36	0,39

+) Gemittelt über die Beaufschlagungsdauer von 5 min.

Tab. I : Abscheidung von ^{131}J (beaufschlagt als elementares Jod) an Luwa-Gelb-Papierfiltern

Auf die wichtigsten Faktoren sei kurz eingegangen. Elementares Jod ist leicht, organische Verbindungen des Jodes wie z. B. das oft nachgewiesene Methyljodid, daß als Modellsubstanz für eine Reihe organischer Jodverbindungen angesehen werden kann, jedoch schwierig abzuscheiden, im besonderen dann, wenn das durch die Patrone gesaugte Trägergas eine hohe relative Feuchte aufweist. In Tab. II sind die Abscheidegrade wiedergegeben, die mit einer guten imprägnierten Aktivkohle gegenüber ^{131}J in Form von $CH_3{}^{131}J$ bei verschiedenen Luftfeuchten erreicht werden können. Die Dimensionierung der Patrone ist in erster Näherung durch die "Verweilzeit" τ beschrieben, die sich aus dem Quotienten

$$\tau = \frac{\text{Schüttvolumen des Jod-Sorptionsmaterials in der Filterpatrone}}{\text{Volumenstrom des Trägergases durch die Filterpatrone}} ;$$

ergibt.

Tab. II: Abscheidegrade von imprägnierter Aktivkohle Norit RX-08-C 1 % KJ tauchimprägniert gegenüber ^{131}J (in Form von $CH_3{}^{131}J$) bei verschiedenen relativen Luftfeuchten

Aktivkohle: Stranggepreßt, Stäbchendurchmesser 0,8 mm, 1 % KJ-imprägniert

Trägergas: Feuchtluft 30°C, vorgefiltert durch Schwebstoff-Filter der Klasse S

Vorströmzeit (nur Trägergas): ≥ 22 h

Beaufschlagung (Prüfmedium + Trägergas): 1 h

Nachströmzeit (nur Trägergas): ≥ 20 h

Prüfmedium: 70 ± 10 µg $CH_3{}^{127}J$ pro g Aktivkohle, vermischt mit ca. 10 µCi $CH_3{}^{131}J$ pro g Aktivkohle (Beladung berechnet auf 10 cm Bett-Tiefe)

Druckabfall: ca. 90 mmWS bei einer linearen Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s, Raumtemperatur und Atmosphärendruck (gemessen über ein 10 cm langes Testbett)

rel. Luftfeuchte %	Abscheidegrade (η) in %			
	Bett-Tiefe in cm			
	2,5	5,0	7,5	10,0
	Verweilzeit in s			
	0,1	0,2	0,3	0,4
25	99,62	99,9997	>99,9999+)	>99,9999+)
40	99,37	99,9983	99,9999	>99,9999+)
55	98,8	99,942	99,9981	99,9999
70	96,1	99,914	99,9974	99,9998
85	95,6	99,79	99,9947	99,9997
95	85,7	98,6	99,87	99,988
98 - 100	80,4	97,2	99,5	99,92

+) Meßgrenze erreicht.

Aus den in Tab. II angegebenen Daten ist sofort zu ersehen, daß für eine ≥ 90 %ige Abscheidung von ^{131}J in Form von $CH_3{}^{131}J$ bei der sehr hohen, d. h. ungünstigen relativen Luftfeuchte von 98 - 100 % eine Verweilzeit von mindestens 0,2 s zu wählen ist. Dies entspricht bei einer scheinbaren linearen Luftgeschwindigkeit von 25 cm/s einer Aktivkohlebett-Tiefe von 5 cm. Aus Tab. II ist weiter zu entnehmen, daß diese Auslegung für die Abscheidung bei niederen relativen Luftfeuchten weit überdimensioniert ist. Die Abscheidung von elementarem Jod ist im gesamten Bereich der relativen Luftfeuchte weitaus besser. Eine auf der sicheren Seite liegende Annahme ist die einer um eine Größenordnung höheren Abscheidung, praktisch dürften für elementares Jod in jedem Fall bei 0,2 s Verweilzeit und Luftfeuchten < 100 % Abscheidegrade > 99,99 % zu erwarten sein. Tatsächlich wird also die Auslegung der Filterpatrone nicht durch

das elementare Jod, sondern das radioaktive Methyljodid bestimmt, daß mit Anteilen von < 1 % bis nahezu 100 % in der Raum- bzw. Abluft auftreten kann.

Für die Jodmessung erscheint es zweckmäßig, eine Jodfilterpatrone so auszulegen, daß:

1. Ein ausreichend großer Volumenstrom der Abluft zur Erreichung der Abscheidung einer genügend hohen Jodaktivität durch die Patrone gezogen werden kann,
2. ein ausreichender Abscheidegrad mit Sicherheit auch bei hohen relativen Luftfeuchten erreicht wird,
3. Effekte, die die Abscheideleistung der Patrone herabsetzen wie Schadstoffadsorption, Veränderung der Imprägnierung des Sorptionsmaterials durch chem. Reaktion und weitere "Alterungseffekte" nicht zur Unterschreitung eines Abscheidegrades von mindestens 90 % führen oder, falls dies der Fall ist, erkannt werden können,
4. das gesamte Jod-Sorptionsmaterial der Patrone in einer oder zwei Messungen auf einem geeigneten Detektor, z. B. einem NaJ(Tl)-Szintillationskristall von 3 x 3" gemessen werden kann.

Für die Standardmessung von Jod in Luft über eine Anreicherung durch Abscheidung in einer Aktivkohlepatrone dürfte folgende Dimensionierung der Patrone geeignet sein:

Aktivkohle: Typ NORIT RX 08-C 1 % KJ tauchimprägniert oder gleichwertig wie Sutcliffe Speakman, Typ 207 B, 5 % TEDA. Verweilzeit: 0,2 s je Einzelbett. Volumenstrom: 2 m^3/h.

Bei einem inneren Durchmesser der Aktivkohlepatrone von 5 cm würde dies einer Bett-Tiefe von 5,7 cm je Einzelbett oder, aufgerundet, 6,0 cm, entsprechen. Es sind zwei durch Netze getrennte Aktivkohlebetten zu verwenden. Die Auslegung wurde so gewählt, daß praktisch die gesamte Jodaktivität im ersten Aktivkohlebett abgeschieden wird und das zweite Einzelbett nur zur Kontrolle auf Vollständigkeit der Abscheidung dient.

Beim Einsatz von Patronen mit Jod-Sorptionsmaterial ist unbedingt zu beachten, daß eine Kondensateinspeicherung durch Taupunktunterschreitung in der Patronenzuluft bzw. Beaufschlagung mit Nebel ausgeschlossen wird. Ggf. ist in der Patronenzuluft durch Vorerhitzung ein ausreichender Taupunktabstand einzustellen. In den meisten Fällen dürfte eine Vorerhitzung der Zuluft um 5 - 8°C ausreichen. Treten nennenswerte Mengen an NO_x in der Patronenzuluft auf, kann Aktivkohle wegen der zu erwartenden Vergiftung und eventueller Brandgefahr nicht eingesetzt werden, ein geeignetes Sorptionsmaterial ist dann mit dem Bayer Sorbens VP AC-6120 gegeben. Die Abscheidegrade für dieses Material bei relativen Luftfeuchten ≤ 70 % reichen für die angegebenen Dimensionen der Patrone aus, höhere relative Luftfeuchten sollten durch Vorerhitzung erniedrigt werden. Angaben zur Abscheideleistung des VP AC-6120, das früher unter der Bezeichnung KTB bzw. KTC untersucht wurde, liegen über einen weiten Parameterbereich vor (1, 2).

Aktivkohle kann zur Jodabscheidung für Meßzwecke bis ca. 150°C, Bayer Sorbens VP AC-6120 bis ca. 350°C eingesetzt werden. Bei höheren Gastemperaturen kommen Molekularsiebe wie Linde 13 X in der Silberform in Anwendung. Die erreichbaren Abscheidegrade können der Literatur entnommen werden (3). Im allgemeinen ist die oben angegebene Dimensionierung der Patrone vollständig ausreichend. Auch Molekularsiebe sollten nur bei relativen Luftfeuchten bis zu 70 % eingesetzt werden.

Als Strukturmaterial für die Patronenkörper und Ansaugrohre werden Glas, elektropolierter Edelstahl und Teflon (keine anderen Kunststoffe) empfohlen, um eine geringe Abscheidung von elementarem Jod zu erreichen. Lackierte Oberflächen sollten wegen der Chemiesorption von Jod vermieden werden. Längere Ansaugwege (Rohre) können zu sehr hohen Verlusten an elementarem Jod

(Adsorption, Chemiesorption) führen, Gummischläuche und Kupferrohre sind wegen extrem hoher Jodabscheidung völlig unbrauchbar. Dies gilt in etwas geringerem Maße auch für die meisten Plastikschläuche. In Ansaugrohren aus wenig adsorbierendem Material können in kurzer Zeit soviel Staub und andere Verunreinigungen abgelagert werden, daß die ursprünglich günstigen Materialeigenschaften nicht mehr zum Tragen kommen.

Müssen lange Ansaugwege (mehrere Meter) benutzt werden, sollten Rohrschleifen unter Benutzung von Rohren mit möglichst großem Durchmesser eingesetzt werden, durch die mit einem Hilfsgebläse ein hoher Volumenstrom der Probeluft aufrecht erhalten wird und von denen an geeigneter Stelle die benötigte (kleine) Abluftmenge entnommen und zurückgespeist werden kann. Derartige Bypass-Strecken dürften sich z. B. bei der Probenahme aus Abluftkaminen empfehlen.

Abschließend sei bemerkt, daß auch Atemfilterpatronen (4), die von der Filterindustrie, z. B. den Firmen Dräger und Auer geliefert werden und zur Abscheidung auch von organisch gebundenem radioaktivem Jod geeignet sind (diese Eigenschaft muß aus der Filterbeschriftung hervorgehen, "Halogenabscheidung"allein genügt nicht), können ebenfalls zur Probenahme herangezogen werden. Der Volumenstrom durch die Atemfilterpatronen der genannten Firmen sollte 2,7 m^3/h nicht überschreiten. Diese Patronen bestehen aus einer Kombination von Schwebstoff- und Aktivkohlefilter. Die Messung der Atemfilterpatronen verursacht jedoch besonders nach Abscheidung nur geringer Jodaktivität Schwierigkeiten, da die Patronen nicht geöffnet werden können und die Aktivkohleschicht wegen des vorgeschalteten Schwebstoffilters relativ weit von der Anströmseite entfernt sitzt. Aktivkohlepapiere reichen zur sicheren Erfassung gasförmigen Jodes und seiner Verbindungen nicht aus.

3. Die Messung der Probe

Zur genauen Messung wären die wie beschrieben ausgelegten Patronen zu öffnen, die Aktivkohle der beiden durch Drahtnetze aus Edelstahl gehaltenen Sorptionsbetten in zwei getrennte Probendosen aus Plastik oder einem anderen "Wegwerfmaterial" zu schütten und vor der Messung durch Schütteln zu mischen, um eine gleichmäßige reproduzierbare Aktivitätsverteilung zu erreichen. Ist bei der Messung des in Anströmrichtung an zweiter Stelle liegenden Aktivkohlebettes eine wesentliche Aktivität ($\geq$10 % der im ersten Bett abgeschiedenen Aktivität) festzustellen, sollte die Probenahme wenn möglich mit einer frischen Aktivkohlepatrone wiederholt werden oder ein Zuschlag auf die insgesamt abgeschiedene Aktivität, bei Annahme einer exponentiellen Abscheidungsfunktion, errechnet werden.

Bei direkter Ausmessung der Patronen ist die verschiedene Verteilung der einzelnen Spaltjodkomponenten innerhalb des Aktivkohlebettes zu berücksichtigen (Abscheidungsprofil). Durch Patronen in Hohlzylinder- oder Ringform, die den Detektor im mittleren Teil des empfindlichen Volumens umschließen oder Benutzung eines Meßspaltes zwischen zwei Detektoren sind Möglichkeiten gegeben, die aus der unterschiedlichen Aktivitätsverteilung resultierenden Fehler gering zu halten.

Als Detektor dürfte meistens ein NaJ(Tl)-Szintillationskristall oder ein Halbleiterdetektor mit nachgeschaltetem Vielkanalanalysator in Frage kommen. Beim Auftreten von Edelgasen in der Luftprobe sollten die Aktivkohlepatronen vor der Messung mit Frischluft für ca. 2 - 4 Minuten gespült werden, um adsorbierte Edelgase, die die Messung stören, auszutreiben. Jod-Sorptionsmaterialien, wie das Bayer Sorbens VP AC-6120 oder die Molekularsiebe, adsorbieren Edelgase nur in geringem Maße (Tab. III).

Tab.III: ^{133}Xe-Gleichgewichtsaktivität an verschiedenen Jodadsorbermaterialien

Trägergas: Laborluft, 1 at , Raumtemperatur, lineare Luftgeschwindigkeit: 17 cm/s

^{133}Xe-Aktivität: ca. 50 µCi ^{133}Xe/l Luft

Zeitdauer bis zur Einstellung des Adsorptions-Desorptionsgleichgewichtes im Adsorberbett: 3 - 6 min (durch mehrere Langzeitversuche bis zu 6 h kontrolliert)

Adsorberbett: Tiefe 10 cm, Durchmesser: 2,5 cm, Volumen 49 cm³

Adsorbermaterial	spez.Oberfläche nach BET +) m²/g	^{133}Xe-Gleichgewichtsaktivität im Adsorberbett in µCi ++)
Leerrohr, mit ^{133}Xe-Luftgemisch beaufschlagt	-	0,0175 (im Rohrvolumen)
Aktivkohle (Norit CG I)	1000	1,67
Molekularsieb (LMS 13 X in Ag-Form überführt)	490	0,0129
$AgNO_3$-imprägnierter Katalysatorträger (KTB)	125	0,00909

+) Adsorbermaterial vor Imprägnierung bzw. Ionenaustausch.

++) Fehlerbreite der Einzelwerte bezogen auf Kalibrierung ± 5 %.
Die Aktivität der ^{133}Xe-Quelle war auf ± 30 % bekannt.

4. Die kontinuierliche Messung von Jod mit Alarmgabe

Zur Erfüllung dieser Meßaufgabe sollte das Radiojod ebenfalls in einer geeigneten Filterpatrone abgeschieden werden. Die Jodaktivität kann bereits während des Anreicherungsvorganges kontinuierlich durch einen Detektor gemessen und auf einem Ratemeter angezeigt werden. Bei Erreichung einer vorgegebenen Impulsrate kann nach einer Sammelzeit, die, wegen des Verhältnisses von Meßzeit zur Halbwertszeit des Radiojodes, der Aktivitätskonzentration des Jodes in Luft praktisch umgekehrt proportional ist, ein Signal ausgelöst werden, das die Luftkontamination anzeigt.

Für den Aufbau und die Auslegung der beschriebenen Anordnung sind folgende, zum Teil bereits diskutierte Gesichtspunkte maßgebend:

- Je größer der Volumenstrom der Luft ist, der die Filterpatrone passiert, um so schneller wird eine Luftkontamination nachgewiesen.
- Große Volumenströme bedingen große Filterpatronen, da eine bestimmte Verweilzeit der Luft im Jod-Sorptionsmaterial zur Erreichung einer möglichst vollständigen Jodabscheidung nicht unterschritten werden darf.

- Das empfindliche Detektorvolumen sollte in Hinsicht auf eine niedrige Untergrundzählrate möglichst klein gehalten werden. Das gleiche gilt für das Gesamtvolumen von Detektor und Filterpatrone, da eine Abschirmung vorzusehen ist, die den Detektor und die Filterpatrone einschließt.
- Die Adsorption von Edelgasen an der Oberfläche des Jod-Sorptionsmaterials der Filterpatrone sollte möglichst gering sein, um kleine Jodkonzentrationen in einer zusätzlich durch Edelgase kontaminierten Luft erfassen zu können.
- Gasförmiges Jod kann in verschiedenen Formen auftreten. Die Abscheideleistung von Jod-Sorptionsmaterialien ist für die verschiedenen Formen des gasförmigen Jodes unterschiedlich. Daraus folgt eine unterschiedliche Aktivitätsverteilung der Jodkomponenten in der Filterpatrone (z. B. steiles Abscheidungsprofil für J_2, flacheres Abscheidungsprofil für CH_3J).
- Die Abscheidung von CH_3J wird durch die relative Feuchte der angesaugten Luft besonders stark beeinflußt. Bei steigender Luftfeuchte sinkt der Abscheidegrad der Filterpatrone.
- Jod, besonders in elementarer Form, lagert sich an Oberflächen ab. Eine Beeinflussung des Meßwertes durch Kontamination der Ansaugwege und des Detektors ist durch Materialauswahl und Formgebung möglichst gering zu halten.
- Partikelförmig auftretende radioaktive Stoffe, die die Jodmessung stören können, sollten sich nicht in der Filterpatrone abscheiden. Bei Vorfilterung der Luft mit einem Schwebstoff-Filter sollte kein gasförmiges Jod an diesem Filter abgeschieden werden.
- Falls Jod in hohen Anteilen partikelförmig vorliegt, sollte der Einbau eines Schwebstoff-Filters in die Filterpatrone möglich sein.
- Die Jodaktivität sollte möglichst spezifisch, z. B. mit einem Einkanalanalysator über den Photopeak, gemessen werden.

In Abb. 1 ist eine Anordnung von Detektor und Jodfilterpatrone wiedergegeben, bei der die angegebenen Punkte weitgehend berücksichtigt werden können. Eine Filterpatrone umschließt einen zylinderförmigen NaJ(Tl)-Szintillationskristall. Detektor und Filterpatrone sind von einer Abschirmung umgeben. Eine Kontamination des Innenraumes von Luftzuführung und -verteilung durch Ablagerung von Jod wird durch Formgebung und Verwendung von Teflon als Wandmaterial weitgehend vermieden. Zur Herabsetzung der relativen Luftfeuchte (r. F.) wird die Zuluft zur Filterpatrone vorgeheizt. Eine Aufheizung um 7°C reicht aus, um die relative Feuchte, die vor allem das Abscheidungsverhalten des Methyljodides bestimmt, bei Lufttemperaturen $\leq$40°C von 100 % auf ca. 70 % herabzusetzen. Dadurch ist eine wesentliche Erhöhung des Volumenstromes der Luft durch die Filterpatrone (Verringerung der notwendigen Sammelzeit) und die Verwendung von Jod-Sorptionsmaterial auf anorganischer Basis möglich, durch dessen Einsatz die Edelgasadsorption in der Filterpatrone stark herabgesetzt werden kann (s.Tab.III). Dies ist besonders wichtig bei der Messung der Abluft von Reaktor- und Wiederaufarbeitungsanlagen, bei denen die radioaktiven Edelgasisotope des Xenon und Krypton die kontinuierliche Jodmessung erheblich stören können.

Der Einfluß von ^{135}Xe, dessen Aktivitätskonzentration in der Reaktorabluft um mehrere Größenordnungen über der von ^{131}J liegen kann, wurde für die beschriebene Meßanordnung experimentell ermittelt und erwies sich als relativ gering; dies ist wegen der geringen Edelgasadsorption am Jod-Sorptionsmaterial auch für andere Edelgasisotope anzunehmen. Während Jod laufend in der Filterpatrone des Detektors abgeschieden wird und dadurch mit steigender Sammelzeit ansteigende Zählraten registriert werden, tritt nach Einstellung des Adsorptions-Desorptionsgleichgewichtes der Edelgase in der Filterpatrone kein Anstieg der Zählrate mehr ein. Die Störung der Jodmessung durch sehr hohe Edelgas-Aktivität in der angesaugten Luft verliert mit steigender Sammelzeit daher weiter an Bedeutung.

Einzelheiten sind einer Veröffentlichung zu entnehmen (5), aus der an dieser Stelle zum Teil zitiert wird.

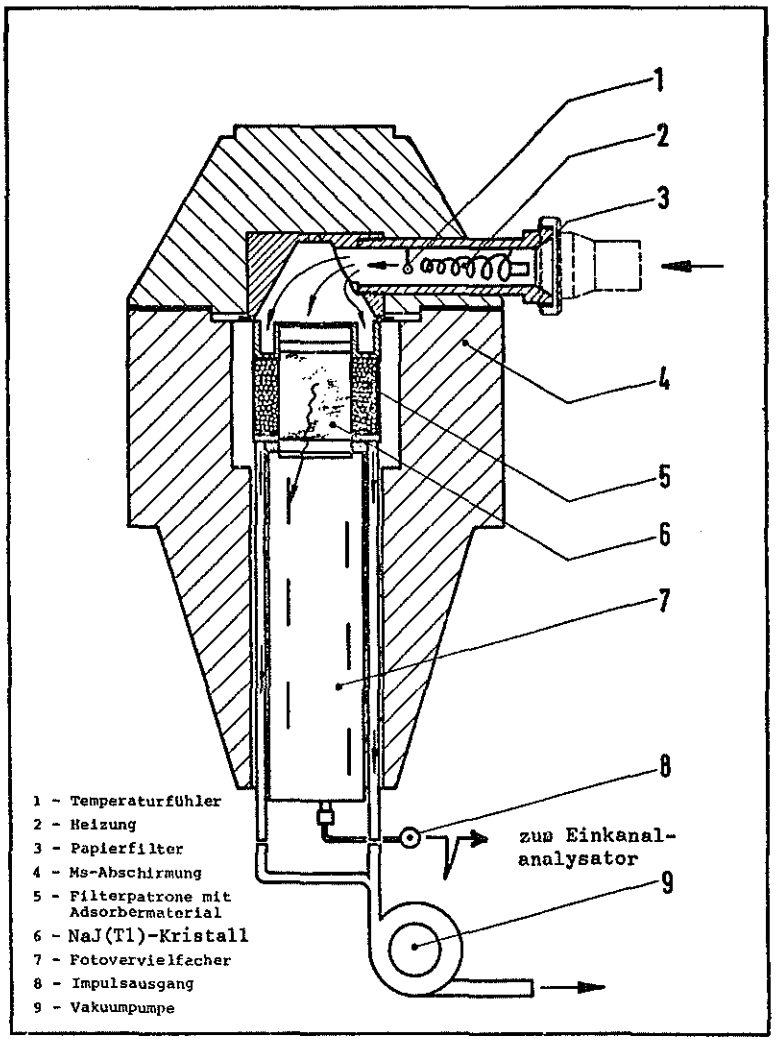


Abb. 1 Detektor des Jodmonitors mit Sammeleinrichtung

Die Empfindlichkeit des Jodnachweises und die Zeitdauer bis zum Erreichen einer vorgegebenen Alarmschwelle sind vom Wirkungsgrad η des Detektors, der Jod-Aktivitätskonzentration c, dem angesaugten Volumenstrom der Luft v und der Höhe der Untergrundzählrate R_o abhängig. Setzt man eine niedrige Jodkonzentration in der Luft voraus, ist die Sammelzeit zur Abscheidung einer ausreichenden Jodaktivität in der Filterpatrone der für die Alarmgebung zeitbestimmende Schritt. Die Zeitkonstante der Ratemetermessung kann demgegenüber meistens vernachlässigt werden. Die Alarmschwelle kann auf eine Meßrate festgelegt werden, die durch das X-fache der Untergrundzählrate oder, bei hoher Untergrundzählrate, zweckmäßiger durch einen Wert gegeben ist, der sich aus der Untergrundzählrate zuzüglich dem X-fachen der Standardabweichung der Untergrundzählrate ergibt. Liegt zu Beginn der Meßzeit bereits eine ^{131}J-Beladung der Filterpatrone aus einer vorhergehenden Sammelzeit vor, ist die Alarmschwelle auf einen höheren Wert zu verschieben. Die notwendige Sammelzeit zur Erreichung der Alarmschwelle verlängert sich.

Für die Zeitdauer t gilt unter Berücksichtigung der oben angegebenen Festlegung der Alarmschwelle:

$$t = \frac{(x - 1) \cdot R_o \cdot 100}{c \cdot k \cdot \eta \cdot v} \text{ (h)} \quad \text{bzw.} \quad t = \frac{x \cdot \sqrt{R_o} \cdot 100}{c \cdot k \cdot \eta \cdot v} \text{ (h)} \qquad \text{(I), (II)}$$

wenn R_o in ips, c in Ci/m^3, v in m^3/h und η in % eingesetzt wird; (Umrechnungsfaktor) = $3{,}7 \cdot 10^{10}$.

Messungen mit einem nach den vorstehend angegebenen Gesichtspunkten konstruierten Jodmonitor, der in Zusammenarbeit zwischen dem Kernforschungszentrum Karlsruhe und der Fa. Herfurth GmbH, Hamburg, entstand, ergaben die in Tab. IV angegebenen Betriebszeiten bis zur Alarmgabe in Abhängigkeit von der ^{131}J-Konzentration der angesaugten Luft.

Tab. IV: Betriebszeit bis zur Alarmgabe bei verschiedenen Aktivitätskonzentrationen von $CH_3{}^{131}J$ in der Luft

Konzentration an ^{131}J in Luft in nCi/m^3	2	5	10	50
Betriebszeit, gemessen, in min	49,5	24,3	14,5	4,9
Betriebszeit nach (II) errechnet, in min	44,6	17,9	8,9	1,8

Die Messungen wurden im Kontrollbereich bei erhöhter Ortsdosisleistung durch harte γ-Strahlung durchgeführt. Der O-Effekt betrug 9,5 ips anstelle des außerhalb des Kontrollbereiches gemessenen Wertes von 0,8 ips. Der Ansaugweg für die mit CH_3J beaufschlagte Luft war 1,65 m lang und bestand aus einer mehrfach abgewinkelten und geflanschten Glasrohrleitung mit einer lichten Weite von 25 mm. Die lineare Luftgeschwindigkeit im Glasrohr betrug 2,7 m/s. Für die Alarmauslösung wurde ein Wert vorgegeben, der einer Erhöhung der Untergrundzählrate R_o um den Wert $4\sqrt{R_o}$ entsprach. Durch die Adsorption von $CH_3{}^{131}J$ in der Rohrleitung (Konzentration ≤ 3 ug CH_3J/m^3 Luft) und Luftzuführung sowie die Zeitkonstante des Ratemeters (gewählt wurden 10 s) ergaben sich erwartungsgemäß um wenige Minuten (3,1 - 6,4 min) längere Betriebszeiten bis zur Alarmauslösung, als nach (II) berechnet wurde.

LITERATURANGABEN

(1) J.G. WILHELM, H. SCHUETTELKOPF, Inorganic Adsorber Materials for Trapping of Fission Product Iodine, Proceedings of the 11th AEC Air Cleaning Conference, CONF-700816, p. 568 - 578, August 1970.

(2) J.G. WILHELM, H. SCHUETTELKOPF, An Inorganic Adsorber Material for Off-Gas Cleaning in Fuel Reprocessing Plants, Proceedings of the 12th AEC Air Cleaning Conference, CONF-720823, p. 540 - 550, August 1972.

(3) J.G. WILHELM, Trapping of Fission Product Iodine with Silverimpregnated Molekular Sieves, Actes Du Congres International Sur La Diffusion des Produits de Fission, Saclay, p. 265 - 283, November 1969.

(4) K. GERLACH, J.G. WILHELM, Atemfilter zur Abscheidung von Spaltjod, im Jahresbericht der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, KFK 1565, S. 203 - 205, März 1972.

(5) J.G. Wilhelm, Entwicklung eines Meßgerätes zur kontinuierlichen Überwachung auf Radiojod, Atomwirtschaft XVIII, Heft 6, Juni 1973, S. 297 - 299

PFEIFFER: Ich möchte noch zu dem Hinweis von Herrn Wilhelm, daß man möglicherweise eben die Einbeziehung des Schwebstoffilters in die Jodpatrone überdenken muß, aus unseren eigenen Messungen einige Erfahrungen kurz andeuten, ohne dabei Referaten, die in vierzehn Tagen bei der Jodfiltertagung gehalten werden, vorzugreifen. Wir haben festgestellt, daß der an gewöhnlichen Schwebstoffiltern, d.h. an Asbestfaserfiltern, zurückgehaltene Jodanteil - bezogen auf die gesamte Jodmenge - sehr unterschiedlich sein kann und sich sehr danach richtet, wo die Messung durchgeführt wird, ob beispielsweise die Luft aus den Komponentenräumen des Primärkreises direkt gesammelt wird oder über Filter geleitet wird oder ob man die Messung erst im Kamin durchführt. Wir haben beispielsweise aus Messungen, wo eine so große Zahl von auch hier genannten Filtern hintereinandergeschaltet war, daß mit großer Sicherheit die Gesamtaktivität auch unter Berücksichtigung der verschiedenen Komponenten wohl gemessen werden konnte, festgestellt, daß teilweise bis zu 30 - 40 % der Gesamtaktivität im vordersten Schwebstoffilter steckten. Bei simulierten Leckagen unter besonderen Bedingungen stiegen diese Anteile bis 80 %, während andererseits wieder in der Kaminabluft teilweise Anteile unter 1 %, in den meisten Fällen zwischen 3 und 12 %, in einem Schwebstoffilter zu finden waren, was ja die Philosopie unterstützt, daß wahrscheinlich das Jod - wo immer es auch freigesetzt wird - aus dem Primärkreis auf seinem Weg mit der Abluft bis zum Kamin eine starke Abreicherung erfährt in punkto der Komponenten, die sich also nun leicht anlagern. Insofern müßte man überlegen - je nach dem Ort -, wo man also mit einem solchen Gerät Jodmessungen unternimmt, die größere oder kleinere Aerosolkomponente zu berücksichtigen.

WILHELM: Diese Zahlen bestätigen die Angaben, die von mir im Vortrag gemacht wurden. Der Anteil an Spaltjod in Verbindungs- und Aerosolform kann in weitesten Bereichen schwanken, ebenfalls schwankt, in Abhängigkeit von den Bedingungen während der Abscheidung am Filter, der Abscheidegrad eines bestimmten Schwebstoffilters für elementares (gasförmiges) Jod. Die Abscheidung von elementarem Jod an einem Faserfilter läßt sich jedoch durch Wahl der Abscheidungsbedingungen sehr stark beeinflussen. Jodaerosole in Tröpfchenform können außerdem zerstört werden (z.B. durch Verdampfung), anschließend kann dann das ursprünglich an Partikel gebundene Jod u.U. wieder in elementares Jod überführt werden. Dies kann beispielsweise durch Oxidation von Metalljodiden geschehen.

Ob es für die Messung von Spaltjod in Luft besser ist, ein Partikelfilter in die Filterpatrone des Detektors einzubeziehen (um die Aktivität von partikelförmig gebundenem Jod zu erfassen) oder ob die Partikel bereits aus der Zuluft der Filterpatrone eines Joddetektors ausgefiltert werden sollten(um Störungen der Messung durch ebenfalls partikelförmig vorliegende,radioaktive Isotope anderer Elemente auszuschalten und damit die Selektivität der Jodmessung zu erhalten), muß im Einzelfall entschieden werden.

Ein Meßverfahren, durch das automatisch die geeignete Methode ausgewählt wird, gibt es in diesem Fall nicht, die Entscheidung über die Filteranordnung muß vom Strahlenschutztechniker auf Grund von an Ort und Stelle gewonnenen Erfahrungswerten getroffen werden.

FRITZE: Können Sie etwas zum Verhalten der Jodadsorption bei gleichzeitiger Anwesenheit von Chlor sagen? Ich möchte diese Frage mit dem Hinweis begründen, daß neben einem deutschen Kernkraftwerk eine Chemieanlage errichtet wurde, in der mehrfach durch Störfälle Chlor freigesetzt wurde.

WILHELM: Durch Chlor können Jodsorptionsmaterialien vergiftet werden. Es muß an Ort und Stelle geprüft werden, ob dagegen zusätzliche Maßnahmen ergriffen werden müssen. Unter Umständen muß eine Voradsorption der Chlorgase bzw. von Salzsäuredämpfen durchgeführt werden. Dies hängt natürlich davon ab, wie weit die Vergiftung der Jodfilterpatronen gehen kann. Vergiftung des Sorptionsmaterials ist in der Jodfiltertechnik ein erhebliches Problem. Aus diesem Grunde habe ich vorgeschlagen, daß man das Sorptionsmaterial der Standardmeßpatrone auf zwei aufeinanderfolgende Betten aufteilt. Man kann dann die Verringerung der Jodabscheidung durch Vergiftung erkennen. Bei einer vergifteten Meßpatrone mit niedrigem Abscheidegrad wäre sowohl auf dem ersten als auch auf dem zweiten Filterbett radioaktives Jod nachzuweisen. Die Abscheidung von Jod in der Meßpatrone muß im Normalfall durch eine e-Funktion beschrieben werden können, die sich z.B. aus den von uns experimentell ermittelten Abscheidegraden errechnen läßt. Werden geringe Abscheidegrade (durch das Auftreten eines wesentlichen Anteiles der insgesamt in der Meßpatrone abgeschiedenen J-131 - Aktivität auf dem zweiten Filterbett) angezeigt, müssen geeignete Maßnahmen (wie z.B. Einsatz längerer Meßpatronen oder anderer Sorptionsmaterialien) ergriffen werden.

HEIM: Ich darf vielleicht darauf hinweisen, daß ich dies sehr nachdrücklich auf einer Tagung IRS schon vor Jahren gesagt habe. Ich halte es für unbedingt notwendig, daß man eine qualitative und ntitative Analyse der Abgase von Reaktorstationen macht, damit man die Anwendung des Milchfaktors auf Aktivitätskonzentration des elementaren Jodes in der Luft einschränken kann. Das Problem ist noch viel ngender, als es im Moment erscheint. Man hat in den USA bei verschiedenen Diskussionen darauf hingewiesen, es Verbindungen des Jodes in der Abluft gibt, die zwar nur in geringen Konzentrationen vorkommen, sich r praktisch kaum abscheiden lassen. Bei Anwendung des Milchfaktors auf die dadurch hervorgerufene Aktivi- skonzentrationen in der Luft wäre dieser Anteil der Fortluftaktivität nicht mehr vernachlässigbar klein.

u sollte man sich jedoch meiner Meinung nach überlegen, daß für Verbindungen des Jodes, die sich durch ne der bekannten Sorptionsmaterialien abscheiden lassen, eine Adsorption am Grünfutter nicht angenommen den muß und daher eine Milchkontamination nicht ohne weiteres zu erwarten ist.

schlägige Untersuchungen zur Zusammensetzung der Abgase müssen natürlich mit gehöriger Vorsicht interpretiert den. Denn man muß sicher sein, daß sich derartige Jodverbindungen nicht auf dem Transportweg in andere Formen, . elementares Jod,umwandeln. Eine dieser schwer abscheidbaren Verbindungen, deren Existenz in der Abluft mir och nicht ausreichend nachgewiesen zu sein scheint, könnte vielleicht die unterjodige Säure sein. In diesem l muß dann mit chem. Reaktionen auf dem Transportweg gerechnet werden, durch die Folgeprodukte der unterjodigen re entstehen, die wieder am Grünfutter adsorbiert werden können.

wird noch erhebliche Arbeit in einschlägige Untersuchungen hineingesteckt werden müssen, bevor über die m. Form des Spaltjodes in der Ab- und Fortluft und ihre Signifikanz für die Ingestion mit der Milch zuver- sige Aussagen gemacht werden können.

ederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

lei uns kommt
lrom-82 durch
ıgene sind und

ˈom ja noch
ɜntuell läßt
ıng ausnutzen.
ɜich schnell

on, sei es
erhältnisse

erkung: 1 mCi
trone des Jod-
von 1 m^3 Luft
Xe-135 zu
400 mal so groß

t, kann trotz
erden als die
h. Für übliche
n vollständig
während das
hrt. Das Xenon
kann es praktisch
s damit helfen,
ines Volumen der
em Grunde als

ıg. Sie sprachen
das umfangreiche
ıtamination haben,

ıten.

ind und weil man

t nicht intensiv
ber die Jodab-
auf das Problem

vielleicht finden

lgkeiten

TEILCHENGRÖSSENBESTIMMUNG

J. VAANE
EUROPÄISCHES INSTITUT FÜR TRANSURANE,
KARLSRUHE

Zusammenfassung

Dieser Bericht gibt einen Überblick über das Problem der Teilchengrößenbestimmung α-radioaktiver Aerosole.
Nach einer kurzen Erläuterung des Problems werden einige der verwendeten Begriffe definiert. Die wichtigsten Techniken zur Bestimmung der Teilchengrößen α-radioaktiver Stoffe werden dann kurz erläutert; die betreffenden Literaturstellen für ausführlichere Studien werden gegeben. Zum Schluß wird das Ergebnis einer im Europäischen Institut für Transurane ausgeführten Studie der Teilchengröße einiger α-radioaktiver Nuklide diskutiert. Es zeigt, daß die Teilchengröße im allgemeinen mit zunehmender spezifischer Aktivität abnimmt, wodurch das Risiko der Lungenbelastung beim Einatmen dieser Stoffe als Aerosole mit zunehmender spezifischer Aktivität größer wird.

1. Einleitung

Das Problem des Risikos beim Umgang mit staubbildenden Stoffen ist nicht neu; schon im Jahre 1661 berichtete der englische Arzt JOHN EVELYN Seiner Majestät, König Charles II, über die Verschmutzung der Londoner Luft mit Kohlenstoffpartikeln, die aus den Kaminen von Bierbrauereien, Kalkbrennereien, Salz- und Seifenkochereien in die Atemluft gestoßen wurden [1]. Er spricht von "those black and smutty atomes", die es keinen Anemonen mehr zulassen, in London zu blühen; es ist jedoch zu bezweifeln, ob er mit "atome" schon damals kleine Partikel verschiedener Größe meinte.

Über die Filterwirkung des Atmungstraktes und die Möglichkeit der Anwesenheit fester Staubpartikel verschiedener Abmessungen wurde etwas später von TYNDALL 1882 berichtet [2]. Die ersten quantitativen Untersuchungen nach Partikelgrößen bei der Ablagerung von Staub im Atmungstrakt wurden von DRINKER et al. im Jahre 1928 ausgeführt [3].

1959 veröffentlichte die I.C.R.P. das sog. Lungenmodell [4], womit die relative Ablagerung eingeatmeter Aerosole im menschlichen Atmungstrakt abgeschätzt werden konnte.
Ein neues Lungenmodell [5], das dieses Problem eingehender behandelt, folgte 1966. In diesem Modell wird die relative Ablagerung im Atmungstrakt als Funktion der Partikelgröße sowie der physikalischen und chemischen Zusammensetzung der eingeatmeten Substanzen beschrieben.

Das Modell zeigt, daß die Kenntnis der Teilchengröße radioaktiver Aerosole für die Einsicht in das Risiko der Handhabung einen wichtigen Beitrag liefert, weil die endgültige Körperbelastung nach Einatmen eines Aerosols eine Funktion der Teilchengröße ist.

2. Begriffe

Wir werden zuerst die wichtigsten bei der weiteren Diskussion verwendeten Begriffe kurz erläutern; eine etwas ausführlichere Behandlung findet man u.a. in [6] .

Aerosol

Es gibt verschiedene Definitionen für den Begriff Aerosol [7] [8] [9] , das im neuen Lungenmodell auch als "airborne dust" bezeichnet wird, mit Hinweis auf [9] , worin folgende Definition gegeben wird:
Ein Aerosol ist ein System fester, in Luft dispergierter Partikel, die so klein sind, daß sie eine niedrige Ablagerungsgeschwindigkeit haben und dadurch eine stabile Suspension bilden. Als obere Grenze wird ein System kugelförmiger Teilchen von 50 µm Durchmesser und Dichte 1 gegeben; diese Teilchen haben in Luft eine Ablagerungsgeschwindigkeit von 8 cm . sec^{-1}, was übereinstimmt mit der Bewegung von "ruhiger Luft" in einem geschlossenen Raum.

Teilchengröße; Aequivalenter Durchmesser

Abbildung 1 [7] zeigt eine elektronenmikroskopische Aufnahme von Teilchen verschiedener chemischer Zusammensetzung. Sie illustriert, wie schwierig es im allgemeinen ist, den Begriff Teilchengröße eines Aerosols zu definieren, weil ein Aerosol nicht nur aus Teilchen verschiedener Größe, sondern auch verschiedener Form besteht. Für die Teilchengröße gibt es verschiedene Definitionen [7] [8] [9] [10] , eine für die Praxis brauchbare ist folgende [7]:
Der aequivalente Durchmesser eines Partikels ist der Radius einer Kugel mit dem gleichen Volumen wie das Partikel.

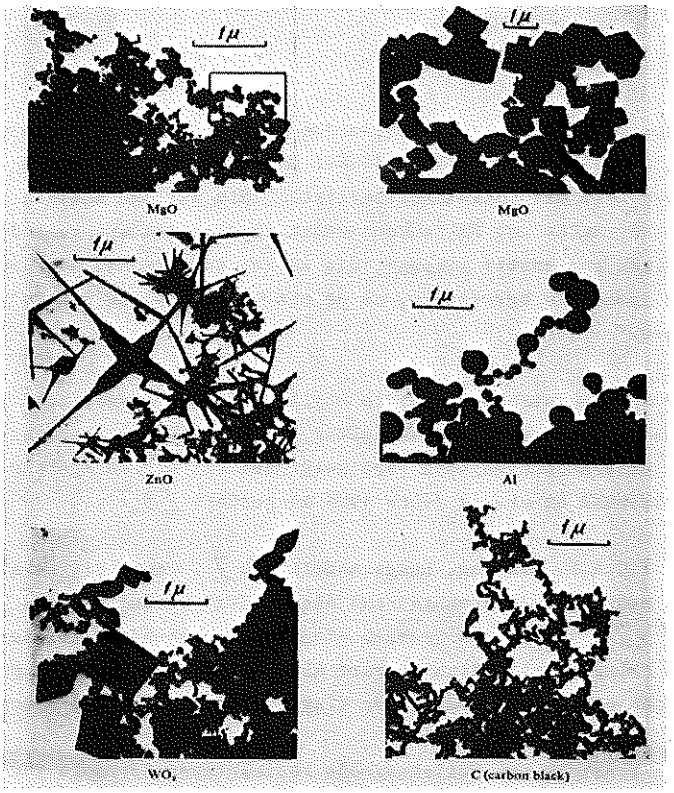


Abb. 1
Mikroaufnahmen verschiedener Aerosolpartikel

Aerodynamischer Durchmesser

Im neuen Lungenmodell wird der Begriff "Aerodynamischer Durchmesser" (A.D.) verwendet, in [7] definiert als der Durchmesser einer Kugel mit einer Dichte von 1 g . cm^{-3}, die in Luft die gleiche Ablagerungsgeschwindigkeit hat wie das Partikel.
Für kugelförmige Teilchen mit Dichte ρ und Durchmesser D gilt nach dem Gesetz von STOKES:
$AD = D \cdot \sqrt{\rho}$.
Für ein Aerosol mit Teilchen verschiedener Größe liegen die entsprechenden aerodynamischen Durchmesser in einem für das betreffende Aerosol charakteristischen Zahlenintervall.

Logarithmisch normale Verteilung; AMAD; Geometrische Standardabweichung

Die Häufigkeitsverteilung der Partikeldurchmesser ist für viele Aerosole eine logarithmisch normale Verteilung; d.h. die Logarithmen der Durchmesser bilden eine normale Verteilung.
Die Tatsache, daß bei Zerkleinerung von größeren Teilchen die Durchmesser der entstehenden Teilchen eine logarithmisch normale Verteilung bilden, hat nach [10] eine physikalische Erklärung, ähnlich wie beim Wachsen der Kristallgrößen in Lösungen.
Zur Berechnung der relativen Ablagerung eingeatmeten, radioaktiven Staubes in den Kompartimenten des Atmungstraktes [5] anhand des Lungenmodells, kann ein Aerosol mit einer logarithmischen normalen Verteilung durch zwei charakteristische Größen, der aktivitätsmediane aerodynamische Durchmesser (A.M.A.D.) und die geometrische Standard-Abweichung (σ_g) völlig festgelegt werden [5] . AMAD und σ_g werden wie folgt definiert und berechnet (s.u.a. [6]) ; Tabelle 1 und Abbildung 2 illustrieren diese Berechnung
Von einer Anzahl n der das Aerosol bildenden Partikel werden (z.B. durch Autoradiographie) die Durchmesser D_1 (i = 1 , ... n) bestimmt und mit zunehmendem Wert für i = 1 ..... n die Summen

$$S_i = \sum_{j=1}^{i} A_j$$

der Aktivitäten aller Partikel mit $D \leq D_1$, berechnet, sowie deren Prozentsatz P_i der Gesamtaktivität aller Partikel:

$$P_i = \frac{100 \cdot S_i}{\sum_{j=1}^{n} A_j}$$

Die Werte von P_i, auf logarithmischem Wahrscheinlichkeitspapier aufgetragen, bilden für die Aerosole mit einer logarithmisch normalen Verteilung eine Gerade (Abbildung 2); der aktivitätsmediane Durchmesser (AMD) ist dann per Definition der Durchmesser für P_i = 50 %. Weiter gilt

$$AMAD = AMD \sqrt{\rho} \quad .$$

Die Standardabweichung der AMAD wird bei einer logarithmisch normalen Verteilung aus den Differenzen der Logarithmen der Durchmesser bei 50 % und 16 % (bzw. 84 % und 50 %) berechnet und ist deshalb das Verhältnis dieser Durchmesser selbst. Sie wird die geometrischen Standardabweichung (σ_g) genannt.

Tabelle 1 Berechnungsschema einer Größenhäufigkeitsverteilung von Plutoniumpartikelchen auf einer Filterprobe

Aeorodynamischer Teilchendurchmesser [µm]	Anzahl der Teilchen	Aktivität [dpm]	% der Gesamtaktivität	Integrierte Aktivität der Teilchen unterhalb einer bestimmten Teilchengröße in % der Gesamtaktivität
2,7 bis 2,8	3	1,200	10,7	100,0
2,2 bis 2,3	1	0,200	0,2	89,3
2,1 bis 2,2	3	0,570	5,1	89,1
2,0 bis 2,1	3	0,470	4,3	84,0
1,9 bis 2,0	2	0,280	2,5	79,7
1,8 bis 1,9	8	0,936	8,4	77,2
1,7 bis 1,8	14	1,383	12,4	68,8
1,6 bis 1,7	13	1,030	9,2	56,4
1,5 bis 1,6	18	1,114	10,9	47,2
1,4 bis 1,5	18	0,925	8,2	36,3
1,3 bis 1,4	17	0,728	6,4	28,1
1,2 bis 1,3	6	0,222	2,0	21,7
1,1 bis 1,2	31	0,889	8,0	19,7
1,0 bis 1,1	48	0,820	7,4	11,7
0,9 bis 1,0	11	0,132	1,2	4,3
0,8 bis 0,9	20	0,188	1,7	3,1
0,7 bis 0,8	3	0,021	0,2	1,4
0,6 bis 0,7	19	0,106	0,9	1,2
0,5 bis 0,6	8	0,030	0,2	0,3
0,4 bis 0,5	1	0,002	0,1	0,1
	247	11,246	100,0 %	

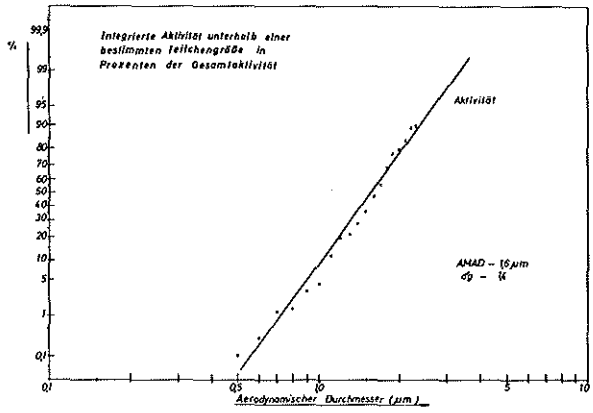


Abb. 2

Darstellung der integrierten Aktivität unterhalb einer bestimmten Teilchengröße in Prozenten der Gesamtaktivität

Relative Ablagerung im Atmungstrakt

Die relative Ablagerung in den Teilen des Atmungstraktes ist nach dem neuen Lungenmodell eine Funktion von AMAD und σ_g, des Atemvolumens und der Atemfrequenz; sie ist weiter von einer Anzahl physikalischer und chemischer Eigenschaften der Partikel abhängig (Löslichkeit, hygroskopische Eigenschaften, chemische Zusammensetzung).

Abbildung 3 [5] zeigt diese prozentuale Ablagerung eines eingeatmeten radioaktiven Aerosols in den verschiedenen Kompartimenten des Atmungstraktes als Funktion von AMAD und σ_g. Die Bedeutung der Partikel-Größe für die Beurteilung des Inkorporierungsrisikos ist daraus deutlich erkennbar. Die Daten gelten für einen sog. Standard-Menschen [4], eine mittlere Arbeitsleistung und ein Atemvolumen von 1.450 cm^3. Die größte relative Lungenbelastung findet im Falle von Aerosolen mit einem AMAD zwischen 0,3 µm und 0,5 µm statt.

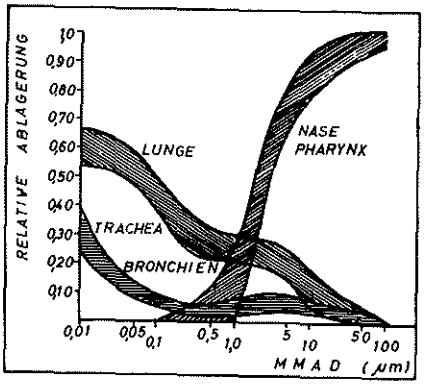


Abb. 3

Die relative Ablagerung als Funktion des Massen-Medianen-Aerodynamischen Durchmessers (MMAD) in den einzelnen Teilen des Atmungstraktes, bei einer Standardabweichung zwischen 1,2 und 4,5 und bei einer mittleren Arbeitsleistung von 1450 cm^3

3. Methoden zur Bestimmung der Partikelgröße

Manche Methoden zur Bestimmung der Partikelgröße eines Aerosols sind so mühsam und zeitraubend, daß sie kaum für die routinemäßige Strahlenschutzkontrolle geeignet sind.
Wir werden zuerst einige autoradiographische Techniken besprechen, womit die Größenhäufigkeitsverteilung der auf Luftfilterproben gesammelten radioaktiven Partikel, z.B. nach einem Kontaminationszwischenfall, bestimmt werden kann, und werden uns dabei auf α-radioaktive Teilchen beschränken.
Ein Problem, das bei der Staubprobenahme überall wieder auftritt, ist die richtige Wahl der Plazierung des Filters und die Ansauggeschwindigkeit der Luft, damit die gesammelte Probe repräsentativ für das Risiko des Einatmens der zu untersuchenden Luft ist. Es ist hier jedoch nicht die Stelle, darauf einzugehen.

3.1. Röntgenfilmmethode

Wenn eine Filterprobe α-radioaktiven Staub enthält, kann mit Hilfe eines Röntgenfilms die Verteilung der radioaktiven Partikel über das Filter festgestellt werden [6] . Hierzu wird ein hochempfindlicher Röntgenfilm in engen Kontakt mit der radioaktiven Probe gebracht. Die optimale Exponierungszeit ist abhängig von der auf dem Filter deponierten Aktivität; sie kann oft erst nach einigen Versuchen bestimmt werden; praktische Erfahrung kann diese Entscheidung jedoch beschleunigen.
Abbildung 4 zeigt die Verteilung von Plutoniumteilchen mit einer Gesamtaktivität von 0,01 µCi auf einer Filterprobe. Es befinden sich auf diesem Filter etwa 10.000 Teilchen, was einer mittleren Aktivität von 1 pCi pro Teilchen entsprechen würde. Die Aktivität der einzelnen Teilchen kann unter bestimmten Voraussetzungen anhand solcher Autoradiographien aus dem Fleckdurchmesser berechnet werden. Wir haben jedoch durch Vergleichen von Röntgenaufnahmen mit Kernspurautoradiographien der selben Filter [6] festgestellt, daß in manchen Fällen zwei oder mehrere Teilchen zusammen nur einen Fleck bilden; bei zunehmender Zahl der Teilchen kann es sein, daß die Zahl der Flecken nur die Hälfte oder sogar einen kleineren Prozentsatz der Teilchenzahl ausmacht.
Die Röntgenfilmmethode von R.J. SHERWOOD und D.C. STEVENS [11] wurde durch Einlegen von α-Szintillatorschicht (ZnS) zwischen Film und Filterprobe noch etwas verfeinert; die von den α-radioaktiven Teilchen erzeugten Lichtquanten schwärzen dann den Film. Die Behauptung der Autoren, daß diese Methode etwas empfindlicher ist, als die ohne Szintillator, wurde durch unseren Untersuchungen nicht bestätigt.

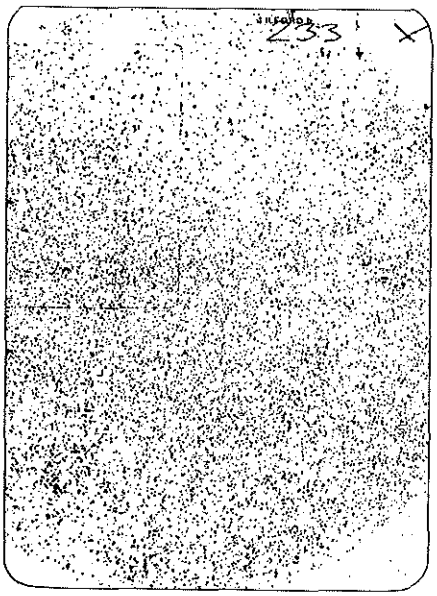


Abb. 4
Autoradiographie einer Luftfilterprobe, auf der sich Plutoniumpartikel befinden, mittels Röntgenfilm. Die totale α-Aktivität auf dem Filter beträgt 0,01 µCi, die Exponierungszeit 7 Tage

3.2. Kernspurfilm

Zur Bestimmung der Aktivität einzelner Partikel ist die Autoradiographie mit Kernspurfilmen die geeigneteste Methode [12] [13] [14]. In einer Kernspuremulsion erzeugt jedes eintretende α-Teilchen eine Spur, die im entwickelten Film mikroskopisch wahrgenommen werden kann. Die Länge dieser Spuren ist eine Funktion der Energie des α-Teilchens beim Eintritt in den Film und dessen Einfallswinkel.

Die Zahl der Spuren pro Zeiteinheit ist proportional zu der Radioaktivität des Partikels. Die Ausbeute (Anzahl der Spuren pro Zerfall) hängt von verschiedenen Faktoren ab (siehe "Bestimmung der Aktivität"). Ist die isotopische Zusammensetzung der Partikel und die Ausbeute bekannt, kann die Aktivität der einzelnen Partikel aus der Anzahl der Spuren pro Zeiteinheit (Abbildung 5) und bei bekannter spezifischer Aktivität auch deren Masse berechnet werden, wobei dann angenommen wird, daß das Teilchen kugelförmig ist. In besonderen Fällen ist es möglich, bei Anwendung der Strippingfilmtechnik das Partikel selbst sichtbar zu machen (Abbildung 6).

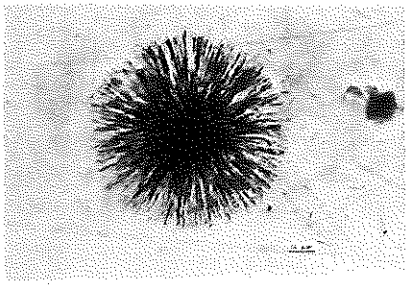


Abb. 5

Bild einer Autoradiographie mit Kernspurfilm. Das sternartige Bild zeigt die α-Spuren eines Plutoniumpartikels

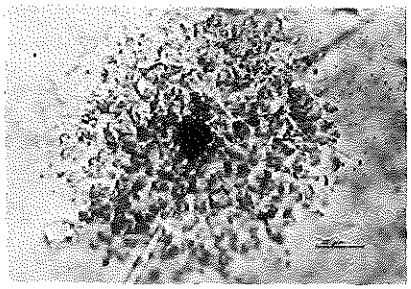


Abb. 6

Bild der Autoradiographie eines Plutoniumpartikels. Um das Partikel sichtbar zu machen, wurden die α-Spuren chemisch aufgelöst

Für Autoradiographien kann man drei Arten von Kernspurfilmen verwenden: Strippingfilm, Kernspurplatten und flüssige Kernspuremulsion.

3.1. Strippingfilm [12]

Eine Analyse wird meistens dann mit der Strippingfilmmethode durchgeführt, wenn die Verteilung der Aktivität über das Filter bereits mit der Röntgenfilmmethode festgestellt wurde.
Die Emulsionsschicht befindet sich auf einer Glasplatte, von der man sie abziehen und über den Filter legen kann.
Die ausgewählten zu untersuchenden Teile des Filters werden dazu in Stücke von je etwa 1 cm^2 geschnitten. Jedes zu untersuchende Filterteil wird dann auf einen fettfreien, angewärmten Objektträger gelegt und mit Araldit imprägniert. Um zu gewährleisten, daß bei dem nun folgenden Vorgang der Film gut an dem Präparat haftet, wird dieses nach Abkühlung in eine Gelatinelösung getaucht und getrocknet.

Danach schneidet man in der Dunkelkammer ein entsprechendes Stück Strippingfilm aus und legt es auf die Oberfläche einer mit Wasser gefüllten Schale. Man bringt auch die präparierte Filterprobe ins Wasser, führt sie unter den auf dem Wasser schwebenden Film und hebt sie an; der Film liegt nun auf der Probe, die anschließend zur Exponierung in einem lichtdichten Kasten aufbewahrt wird. Die Exponierungszeit wird vorher aus der Aktivität oder eventuell mit Hilfe von Röntgenfilmen abgeschätzt.
Die angefertigte Probe kann dann mikroskopisch untersucht werden; für die Untersuchung des entwickelten Films und das Zählen der α-Spuren verwendet man ein Kernspurmikroskop.

In der Praxis schließen wir ab 5 Spuren in Sternform auf das Vorhandensein eines aktiven Partikels im Mittelpunkt des Sternes. Die Durchmesser der Sterne und gegebenenfalls auch die Größe der Partikel werden bei einer 1250-fachen Vergrößerung mit Immersionsobjektiv und Okularmikrometer gemessen. Die Eindringtiefe der Partikel im Filter kann aus der Differenz der Scharfeinstellungen zwischen Filteroberfläche und Partikel abgeschätzt werden.
In Einzelfällen macht eine zu große Spurenzahl die Unterscheidung der einzelnen Spuren unmöglich. In einem solchen Fall ist auch der Mittelpunkt der Sterne zu schwarz, um das darunter liegende Partikel noch erkennen zu können. Behandelt man jedoch die entwickelten Silberbromidkristalle mit einer Lösung von rotem Blutlaugensalz und Fixiersalz in destilliertem Wasser, verschwindet die Schwärzung und das Partikel wird sichtbar (Abbildung 6).

Auf diese Weise sind - abhängig vom Auflösungsvermögen des Mikroskops - nur Teilchen größer als ungefähr 0,5 µm sichtbar zu machen. Mittels eines speziellen Präparationsverfahrens [13] [14] können auch Teilchen mit viel kleineren Durchmessern elektronenmikroskopisch sichtbar gemacht werden. Außerdem sind dabei gleichzeitig α-Spuren und Teilchen zu sehen, ohne daß der Film nach der Entwicklung noch speziell behandelt werden muß, wie bei der Strippingfilm-Methode.

Kernspurplatte

Die Anwendung der Kernspurplatten ist wesentlich einfacher als die der Strippingfilme. Die aktiven Partikel können aber nicht mikroskopisch sichtbar gemacht werden. Die Emulsion befindet sich auch hier auf einer Glasplatte, kann jedoch nicht als Schicht von dieser entfernt werden; die Platte wird als Ganzes auf den zu untersuchenden Filter gelegt. Zur Anfertigung der Probe wird das Filterstück auf einer ebenen Unterlage befestigt. Unmittelbar darauf legt man die Kernspurplatte. Stark kontaminierte Filter werden zuvor mit einer Mylar-Folie abgedeckt, um eine Kontaminierung des Films, der nach dem Exponierungsprozeß wieder vom Filter entfernt wird, zu vermeiden. Während der Exponierung wird die Probe in einem lichtdichten Kasten aufbewahrt.

B.V. ANDERSEN [15] setzt eine Reihe von Kernspurplatten mit in Dekaden ansteigenden Exponierungszeiten von 12 Minuten bis 80 Tagen der Bestrahlung einer zu untersuchenden Filterprobe aus. Partikel, die mehr als 50 Spuren erzeugen, werden mittels einer um eine oder mehrere Dekaden abnehmende Exponierungszeit analysiert, da das Zählen so vieler Spuren aufgrund der intensiven Schwärzung praktisch unmöglich ist. Die Bestimmung der Aktivität erfolgt wie bei der Strippingfilmmethode aus Spurenzahl und Exponierungszeit. Da die α-Teilchen hier im Filter weniger abgebremst werden als bei der Strippingfilmmethode im präparierten Filter, ist die Spurenlänge entsprechend größer, und die Sterne sind leichter aufzufinden. Eine ca. 300-fache Vergrößerung reicht in den meisten Fällen aus.

Flüssige Kernspuremulsion

Diese Methode ist im wesentlichen die gleiche wie die vorhergehenden. Hierbei wird jedoch der Filter in die Emulsion getaucht oder mit der Emulsion durchtränkt. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, daß auch tief in den Filter eingedrungene, durch die anderen Methoden nicht mehr wahrzunehmende Partikel, erfaßt werden können und daß deren Eindringtiefe im Filter bestimmt werden kann.

Bestimmung der Aktivität

Bei den Kernspurmethoden mit Strippingfilm und Kernspurplatte kann die Aktivität (A_α) eines Partikels aus der während der Exponierungszeit (T) erzeugten Spurenzahl (S_α) berechnet werden. Die Ausbeute

$$\eta = \frac{S_\alpha}{A_\alpha \cdot T}$$

ist eine Funktion folgender Größen:

a) Selbstabsorption der Alpha-Strahlung im Partikel
b) Reichweite (R_α) der Alpha-Strahlung im Filtermaterial bzw. im Araldit
c) Eindringtiefe (E) des Partikels im Filter

Der Selbstabsorptionsfaktor S kann nach SHERWOOD und STEVENS [16] nach folgender Formel berechnet werden:

$$S = \frac{O_\alpha}{A_\alpha} = \frac{3}{2} p \left(1 - \frac{1}{3} p^2 \right) \quad \text{für } p \leq 1 \quad .$$

$$p = \frac{\text{Reichweite der } \alpha\text{-Strahlung im Material des Partikels}}{\text{Durchmesser } D_p \text{ des Partikels}}$$

O_α = Zählrate der aus der Oberfläche des Partikels austretenden α-Strahlung

Die Absorption von α-Teilchen in Partikeln mit einer Dichte von ungefähr 10 g . cm^{-3} ist für Durchmesser bis 10 µm praktisch vernachlässigbar [16] .

Wenn alle in die Emulsion eintretenden α-Teilchen eine Spur erzeugen, ist für Partikel mit einem Durchmesser ≤ 10 µm η gleich dem von der Eindringtiefe E des Partikels im Filter und R_α bestimmten relativen Raumwinkel, so daß

$$\eta = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{E}{R_\alpha} \right) \quad .$$

Da sowohl E als R_α von vielen Faktoren abhängen, kann ein allgemeiner Wert für η kaum gegeben werden. Die Eindringtiefe E ist abhängig von der Dichte des Filtermaterials, von der kinetischen Energie, mit der die Partikel das Filter erreichen und von der Größe der Partikel.

Für die von uns verwendeten Glasfaserfilter kann E bei einer linearen Geschwindigkeit der Partikel von 30 cm . sec^{-1} bis zu 50 µm betragen. Die Reichweite R_α wird bei der Strippingfilmmethode durch die Absorption in Araldit und im Fasermaterial des Filters bestimmt und beträgt ungefähr 30 µm. Bei der Verwendung von Kernspurplatten wird R_α nur durch die Absorption im Fasermaterial bestimmt und kann 80 bis 100 µm betragen.

Die Ausbeute η ist also keine feste, von der autoradiographischen Methode unabhängige Zahl. Es ist aber möglich, für jede Methode einen Mittelwert anzugeben, womit die Aktivität der Partikel bis auf einen Faktor 2 genau berechnet werden kann. Deshalb ist im Durchmesser der nachgewiesenen Partikel, der der dritten Wurzel der Aktivität proportional ist, noch ein Fehler von höchstens 30 %; für die Strippingfilmmethode liegt der Mittelwert erfahrungsgemäß bei $\bar{\eta} = 0{,}2$, für die Kernspurplattenmethode bei $\bar{\eta} = 0{,}4$.

Nachweisgrenze

Wir definieren die Nachweisgrenze $(A_\alpha)_{min}$ als die geringste Aktivität eines Partikels, die noch während einer Exponierungszeit T mittels der Kernspurfilmmethode auf einer Luftfilterprobe nachgewiesen werden kann.

Setzen wir voraus, daß ein Partikel dann vorhanden ist, wenn auf dem Film mindestens 5 Spuren in Sternform erzeugt worden sind, dann ist die Nachweisgrenze durch folgende Beziehung bestimmt:

$$(A_\alpha)_{min} = \frac{5}{\eta \cdot T \cdot 2{,}2 \cdot 10^{12}} \text{ Ci} .$$

In Abbildung 7 sind die Nachweisgrenzen für Kernspurplatten ($\bar{\eta} = 0{,}4$) und für Strippingfilme ($\bar{\eta} = 0{,}2$) als Funktion der Exponierungszeit aufgeführt. Auf der Ordinate sind für eine Anzahl Aktivitätswerte die entsprechenden Durchmesser von $^{239}PuO_2$-, $^{241}AmO_2$- und $^{242}CmO_2$-Partikel aufgetragen. Man sieht daraus, daß für den Nachweis eines $^{239}PuO_2$-Partikels von 0,1 µm eine Exponierungszeit von einem Monat nötig ist; ein gleich großes $^{241}AmO_2$-Partikel kann in 13 Stunden und ein $^{242}CmO_2$-Partikel von 0,1 µm in weniger als einer Minute nachgewiesen werden.

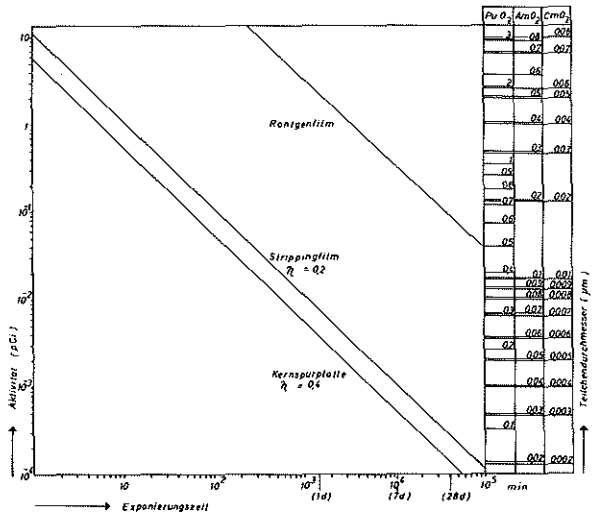


Abb. 7

Die Nachweisgrenze (Aktivität von Partikeln, die fünf α-Spuren in Sternform auf einem Kernspurfilm erzeugen) als Funktion der Exponierungszeit.
Auf der rechten Ordinate sind die der Aktivität entsprechenden Durchmesser für $^{239}PuO_2$- $^{241}AmO_2$- und $^{242}CmO_2$-Partikel aufgeführt

Instrumente zur selektiven Staubprobenahme

Mit einem in England (A.E.R.E., Harwell) entwickelten "größenselektiven Staubsammler" [17] kann die potentielle relative Lungenbelastung eines eingeatmeten Aerosols aus der auf einem ausgewählten Teil des Staubfilters niedergeschlagenen Radioaktivität berechnet werden.
Die Wirkung dieses Instrumentes beruht auf etwa dem gleichen Prinzip wie die des ebenfalls in Harwell entwickelten "Cascade Centripeter" [18] ; die Strömungslinien der Luft werden durch ein System von Öffnungen bestimmter Abmessungen so beeinflußt, daß Teilchen verschiedener aerodynamischen Durchmesser sich auf verschiedenen Teilen des Sammelfilters niederschlagen. Dieses Prinzip wurde schon von K.R. MAY in einem Staubsammelgerät für groben Staub [19] verwendet.

Das in [17] beschriebene Instrument wurde später von D.C. STEVENS und J. STEPHENSON weiterentwickelt [20].

In der endgültigen Fassung wird die Luft mit einer Rate von etwa 2 l/min durch einen Filter von 20 mm Ø angesaugt.
Die nach dem neuen Lungenmodell in dem Lungentrakt deponierte Fraktion wird auf den inneren konzentrischen Teil des Filters deponiert; aus dem Vergleich zwischen der Radioaktivität auf dem gesamten Filter und der auf dem inneren Teil, kann die potentielle relative Lungenbelastung für das untersuchte Aerosol berechnet werden.

Aufgrund der kleinen Abmessungen und des geringen Gewichtes (12 x 9 x 5 cm ; ca. 600 g) kann das batterie-betriebene Instrument ohne Behinderung während der Arbeit am Körper getragen werden.

4. Praktische Beispiele

Das Ergebnis einer im Europäischen Institut für Transurane ausgeführten Studie über Teilchengrößen verschiedener Verbindungen radioaktiver Nuklide [21] zeigt, daß die Kenntnis der Partikelgröße einen wichtigen Beitrag zum Verstehen des Risikos der Handhabung α-aktiver Nuklide verschiedener spezifischer Aktivität liefern kann.

In dieser Studie wurden Filterproben von Plutonium-, Americium- und Curium-Aerosolen aus Handschuhkästen, sowie aus Laboratorien, in denen nach Zwischenfällen Radioaktivität in die Luft freigesetzt wurde, gezogen.
Für jede Probe wurde die Größenhäufigkeitsverteilung der Partikel anhand von Kernspurfilmen bestimmt; mit diesem Ergebnis wurde dann anhand des neuen Lungenmodells die Verteilung der Aktivität im Atmungstrakt berechnet, wenn das betreffende Aerosol eingeatmet würde.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 in zwei Kategorien zusammengefaßt; die erste umfaßt durch Eindämpfen von Lösungen, die zweite aus Metallen oder Oxyden entstandene Aerosole. Obwohl man intuitiv erwarten würde, daß Lösungen kleinere Aerosole erzeugen als feste Stoffe, weisen die Meßergebnisse nicht allzu überzeugend in diese Richtung.

Es ist jedoch deutlich, daß der AMAD eine Funktion der spezifischen Aktivität ist, und zwar nimmt er ab mit zunehmendem Wert der spezifischen Aktivität der aerosolbildenden Nuklide.

Es gibt also drei Ursachen für das wachsende Risiko von Handhabung α-aktiver Nuklide bei zunehmender spezifischer Aktivität:

1. Die Radioaktivität von Teilchen gleichen Durchmessers nimmt mit zunehmendem Wert der spez. Aktivität zu .
2. Die relative Lungenbelastung nimmt mit der spez. Aktivität der aerosolbildenen Nuklide zu.

3. Mit einigen Ausnahmen nimmt das Risiko für äußere Bestrahlung (ß, Y, Neutronen) mit der spez. Aktivität zu.

Tabelle 2 Partikelgröße (AMAD) und prozentuale Ablagerung im Atmungstrakt für Aerosole, die aus Lösungen bzw. aus festem Material entstanden sind

Lösungen Probe Nr.	Spez.Akt. ($Ci.g^{-1}$)	AMAD (μm)	Relative Ablagerung (%)		
			Nuklid	Lunge	Nase
3	3250	1,2	Cm-242	20	35
4	3250	0,05	Cm-242	55	≈ 0
6	4,1	2,5	Am-241/Cm-244	15	55
10	0,1	1,0	Pu-239/240	25	30
11	0,1	5	Pu-239/240	12	80
2	0,07	5,6	Pu-239/240	10	75
Metall/Oxyd					
1	72	0,8	Cm-244	24	25
9	72	0,8	Cm-244	23	25
13	0,27	6,0	Cm-244	11	80
12	0,16	12,5	Am-241	7	93
8	0,08	9	Pu-239/240	9	90
14	0,068	9,5	Pu-239/240	9	90
5	0,06	1,6	Pu-239/240	20	40
7	0,06	18	Pu-239/240	5	95
15	0,06	4,0	Pu-230/240	14	70

Literatur

[1] Fumifugium, or the Inconvenience of the Aer and Smoke of London dissipated, together with some Remedies humbly proposed by John EVELYN, Esq.; to His Sacred Majestie and to the Parliament Now Assembled
Re-published 1961 by the National Society for Clean Air

[2] TYNDALL, J., Essays on the Floating Matter in the Air
D. Appleton and Company, New York, 1882

[3] DRINKER, P., THOMPSON, R.M. and FINN, J.L.
Quantitative Measurements of the Inhalation, Retention and Exhalation of Dust and Fumes by Man. I. Concentration of 50 to 450 mg per cubic meter
J. Ind. Hyg. Toxicol. 10 : 13 (1928)

[4] Report of ICRP Committee II on Permissible Dose for Internal Radiation
ICRP Publication 2; p. 33; 1959

[5] Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract (Task Group on Lung Dynamics, Report of Committee II of the International Commission on Radiological Protection), Health Physics 12, 173 (1966)

[6] VAANE, J.P., DE RAS, E.M.M., VON BRANDENSTEIN, Chr.
Die Autoradiographie als Hilfsmittel bei der Analyse der Verteilung α-aktiver Stoffe im menschlichen Körper nach einer Luftkontamination
Atompraxis, 4, 1970

[7] FUCHS, N.A., The Mechanics of Aerosols
Pergamon Press, Oxford 1964

[8] DAVIES, C.N., Aerosol Science
Academic Press, London, N. York (1966)

[9] HATCH. T.F. and GROSS, P.
Pulmonary Deposition and Retention of inhaled Aerosols
Academic Press. N. York - London (1964)

[10] DRINKER, P. and HATCH, T.F., Industrial Dust
Mc. Graw-Hill Book Company, New York (1936)

[11] SHERWOOD, R.J., STEVENS, D.C.
A Phosphor-Film Technique to Determine the Activity of Individual Particles on Air Sample Filters
AERE - R 4310 (1963)

[12] STEVENS, D.C., Location and Examination of Alpha Active Airborne Dust Particles Collected on Glass Fiber Filter Paper
A.E.R.E. - M - 989 (1962)

[13] HEARD, M.J., WIFFEN, R.D., Alpha Track Autoradiography of Submicron Aerosol Particles Using the Electron Microscope
A.E.R.E. - R - 5715 (1968)

[14] RIEDEL, G., Elektronenmikroskopische Präparation radioaktiv markierter Aerosole
Staub 23 (1963) Nr. 4

[15] ANDERSEN, B.V., Plutonium Aerosol Particle Size Distributions in Room Air
Health Physics, 10, 897 (1964)

[16] SHERWOOD, R.J., STEVENS, D.C.
Some Observations on Nature and Particle Size of airborne Plutonium in the Radiochemical Laboratories
Harwell - AERE - R 4672 (1964)

[17] STEPHENSON, J., A size-selective dust sampler which conforms to the Lung Model proposed by the I.C.R.P. Task-Group on Lung Dynamics
2nd I.R.P.A. Congress;Health Physics, 19 (1970), p.68

[18] HOUMAN, R.F., The Cascade Centripeter. A Device for Determining the Concentration and Size Distribution of Aerosols
A.E.R.E.M. 1328 (1964)

[19] MAY, K.R., The Cascade Impactor; an Instrument for Sampling Coarse Aerosols
J. Sci. Instrum. 22, 187, 1945

[20] STEVENS, D.C., STEPHENSON, J.
A Size Selective Dust Sampler which Conforms to the Lung Model Proposed by the ICRP Task Group on Lung Dynamics
A.E.R.E. 6749 (1971)

[21] VAANE, J.P., DE RAS, E.M.M., and VON BRANDENSTEIN, Chr.
Particle Size Distributions of Some Transuranium Element Compounds and their Deposition in the Respiratory Tract after Inhalation
Proceeding of the Seminar on Radiation Protection Problems Relating to Transuranium Elements
Karlsruhe, Sept. 1970 ; and EUR 4594

DISKUSSION

JACOBS: Ich habe das Gefühl, als wenn die Teilchengrößenbestimmung doch noch ein sehr heikles Problem ist und noch etwas in den Kinderschuhen steckt. Aber ich bin kein Spezialist.

JACOBI: Herr Vaane, haben Sie einmal ausprobiert, ob man auch die Ätzspurentechnik mit Zellulosenitratfolien verwenden kann, um die Teilchengrößenverteilung von α-Strahlern zu ermitteln?

VAANE: Nein, das haben wir noch nicht. Ich glaube, daß man in Harwell jetzt damit angefangen hat. Ich weiß nicht, ob es überhaupt möglich ist.

JACOBI: Ich frage, ob der Ätzgrubendurchmesser funktionell mit der Teilchengröße und der Aktivität zusammenhängt.

VAANE: In diesem Fall bleibt natürlich immer die Schwierigkeit, daß man über die Aktivität der Teilchen die Teilchengröße bestimmen muß. Das bedeutet immer wieder, daß man die aerodynamischen Eigenschaften eigentlich nicht kennt, wie ich das im ersten Bild gezeigt habe. Die aerodynamischen Eigenschaften eines Bleistifts sind bestimmt anders als die eines Steins gleichen Gewichtes.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

DIE ISO-NORM "EMPFEHLUNG FÜR DIE PROBENAHME VON IN DER LUFT ENTHALTENEN RADIOAKTIVEN STOFFEN"

H.-U. BERGER

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE,
ABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT/
ÜBERWACHUNG

Zusammenfassung

Der Vortrag gibt einen Oberblick über den Inhalt der ISO-Empfehlung.

Die ISO-Empfehlung umfaßt mit ihren drei Anhängen 75 Schreibmaschinenseiten. Daher kann in diesem Rahmen nur eine sehr gedrängte Inhaltsübersicht gegeben werden, bei der viele Einzelheiten nicht erwähnt werden können.

Der Entwurf wurde 1968 vorgelegt, die in Hauptteil und Anhängen zitierte Literatur stammt mit einer Ausnahme aus den Jahren 1949 bis 1967. Die ISO-Empfehlung ist daher so aktuell, wie sie es in Anbetracht der zeitraubenden Verabschiedungsprozedur sein kann.

Die ISO-Empfehlung beschränkt sich nach dem erklärten Willen der Herausgeber auf die Probenahme zum Zwecke der Luftaktivitätsbestimmung. Dabei richtet sich das Hauptaugenmerk auf den Schutz beruflich strahlenexponierter Personen am Arbeitsplatz, die Emissionsüberwachung, Wirksamkeitskontrolle der sicherheitstechnischen Einrichtungen und die Lokalisierung von Kontaminationsquellen. Als weitere Ziele, die die Probenahme in Verbindung mit der anschließenden Aktivitätsmessung erreichen soll, werden die Erfüllung gesetzlicher Auflagen und die vorbeugende Beweissicherung für den Fall späterer Schadenersatzansprüche angeführt. Auf die Probleme der Aktivitätsmessung wird nur soweit eingegangen, wie es für die sachgerechte Aufstellung eines Probenahme-Programms erforderlich ist.

In der Empfehlung werden Grundsätze für die Probenahme aufgestellt und Methoden und Geräte vorgeschlagen. Als anzustrebende Nachweisgrenze wird 1/10 der jeweils anzuwendenden MZK postuliert. Aus dieser Festlegung ergeben sich in Verbindung mit der Nachweisgrenze der zur Aktivitätsmessung benutzten Methode und Apparatur Anforderungen an die Mindestgröße der Luftprobe, auf die die ISO-Empfehlung ausdrücklich hinweist. Außerdem erwähnt die Norm, daß zur Erfüllung dieser Forderung u.U. Aktivitätskonzentrationen gemessen werden müssen, die um Größenordnungen unter dem Pegel der natürlichen Luftaktivität liegen. Neben dem Hinweis auf spezielle Verfahren der Aktivitätsbestimmung wie α-β-Pseudokoinzidenzmessung und quantitative α-Spektroskopie wird hier die Benutzung korngrößendiskriminierender Aerosol-Probenahme empfohlen. Dieses Verfahren zur Unterdrückung der natürlichen Luftaktivität beruht auf der Erkenntnis, daß beispielsweise Pu-Aerosole wesentlich größere und dichtere Partikel aufweisen, als man sie im natürlichen Schwebstoffgehalt der Luft findet.

Im Zusammenhang mit dem Umfang des für die Überwachung einer Anlage aufzustellenden Probenahmeprogramms wird der Grundsatz aufgestellt, daß das Probenahmeprogramm sowohl in der Inbetriebnahmephase einer Anlage wie auch nach jeder Umstellung der Anlage oder der angewandten Verfahren qualitativ und quantitativ umfangreicher sein muß, als es während des Routinebetriebes derselben Anlage erforderlich ist. Beispielsweise empfiehlt die Norm, bei der Inbetriebnahme und nach jeder Umstellung die Korngrößenverteilung des Aerosolgehalts der zu überwachenden Luft neu zu bestimmen.

Für die Oberprüfung der Wirksamkeit des Luftüberwachungsprogramms schlagen die Herausgeber den kritischen Vergleich der Luftüberwachungsergebnisse mit den Inkorporationsbefunden und den Resultaten der Umgebungsüberwachung vor.

Im einzelnen enthält die ISO-Empfehlung:

1. Ein Glossar, in dem u.a. eine Reihe von Begriffen aus der Aerosol-Meßtechnik erklärt werden.

2. Ein Kapitel, das in Verbindung mit drei Anhängen die Repräsentativität von Luftproben aus Arbeitsräumen und Abluftkanälen behandelt. In beiden Fällen erweisen sich Kompromisse zwischen der Forderung nach Repräsentativität und praktischen Erwägungen als unvermeidbar. Diese Kompromisse können im allgemeinen nur von Anlage zu Anlage getroffen werden.

   Bei der Raumluftüberwachung müßte die Luftprobe eigentlich aus dem Atemeinzugsbereich der Arbeitskräfte gewonnen werden, was in der Praxis meist unmöglich ist. Für den Umgang mit Stoffen höchster Radiotoxizität wird als Ausweg die Benutzung batteriegetriebener Staubsammler vorgeschlagen, die von den Überwachten zu tragen wären. Daneben werden ortsfeste Probenahmegeräte an sorgfältig ausgesuchten Standorten und Vergleichsmessungen mit echten Atemzonensammlern verwendet. Die ortsfesten Geräte sollten so dicht wie möglich an der Atemeinzugszone aufgestellt werden, z.B. etwas über Kopfhöhe an Abzügen, Handschuhkästen oder dergleichen. Die Raumluftüberwachung durch Überwachung des Abluftkanals wird für nicht ausreichend repräsentativ gehalten.

   Der Wahl des Probenahmeortes und der Festlegung der Zahl der Probenahmestellen in einem Abluftkanal oder einem Kamin ist ein Anhang von 16 Seiten mit drei Tabellen und 5 Abbildungen gewidmet. Außerdem enthält dieser Anhang einige Vorschläge für die Konstruktion von Probenahmesonden. Wenn irgend möglich, sollte der Kollektor direkt im überwachten Luftstrom angeordnet sein. Gefahren für die Repräsentativität werden einmal in der Wahl eines falschen Probenahmepunktes oder in der Wahl von zu wenigen Probenahmepunkten in Verbindung mit unvollständiger Homogenität der überwachten Luft gesehen. Der Probenahmepunkt sollte mindestens 5 Kanaldurchmesser stromabwärts von Krümmern usw. liegen. Sollen auch Aktivitätsabgaben kontaminierter Kanal- und Kaminwände erfaßt werden, so ist repräsentative Probenahme nur an der Kaminmündung gewährleistet.

   Eine weitere Gefahr für die Repräsentativität der Probe wird in der Verfälschung der Korngrößenverteilung durch korngrößenabhängige Aerosolverluste in Probenahmeleitungen oder korngrößenabhängige Sammelwirkungsgrade von Kollektoren oder Sonden gesehen. Diese Verfälschungen sind einmal deshalb von Bedeutung, weil bestimmte Nuklide vorzugsweise in bestimmten Korngrößenfraktionen des Aerosolgemisches auftreten, worauf in der ISO-Empfehlung besonders hingewiesen wird. Den Fehlerquellen durch Probenahmeleitungen und durch anisokinetische Probenahme (d.h. Probenahme mit einer Sondeneintrittsgeschwindigkeit, die von der Strömungsgeschwindigkeit im Kanal abweicht) sind zwei Anhänge gewidmet. Der Parameterbereich, den die Tabellen in diesen Anhängen

Überdecken, wird zwar leider nicht zur Beurteilung aller in der Praxis auftretenden Konstellationen ausreichen, die ISO-Empfehlung wird sich aber trotzdem auch in dieser Hinsicht als eine wertvolle Informationsquelle erweisen. Aus ihnen geht immerhin hervor, daß für bestimmte Partikelgrößen und Durchsatzraten schon "Probenahmeleitungen" zwischen 1 m und 20 m Länge zu einer fast quantitativen Fernhaltung der Schwebstoffe vom Sammler führen können.

Eine dritte Quelle von Probenverfälschungen stellt die Norm mit den chemischen und physiko-chemischen Reaktionen zwischen Probenahmeleitung oder Sonde und dem Kontaminationsstoff heraus. Hier wird besonders auf Fehlerquellen bei der Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Radiojod hingewiesen.

3. Einen Abschnitt, in dem noch einmal die Notwendigkeit betont wird, das Probenahmeprogramm auf die speziellen Bedürfnisse der jeweiligen Arbeit, die zu Luftkontaminationen führen könnte, abzustimmen. Wichtig im Zusammenhang mit der Vorsorge für Unfallsituationen ist der Rat, zur Erfassung unfallbedingter Freisetzungen ein zweites Probenahmesystem zu installieren, um so größere Freiheit in der Wahl von Meßbereich und Sammelmethode zur meßtechnischen Abdeckung zweiter grundverschiedener Situationen (Normalbetrieb und Störfall) zu gewinnen.

4. Ein Kapitel über die Entnahme von Schwebstoffproben, in dem verschiedene Filtertypen, elektrostatische und thermische Abscheider sowie korngrößenfraktionierende Abscheider behandelt werden. Es wird darauf hingewiesen, daß die Herstellerangaben für die Abscheidungswirkungsgrade von Filtern im allgemeinen für Partikel von 0,3 µm Durchmesser gelten. Ein Filterwirkungsgrad von 100 % wird nicht für erforderlich gehalten, aber es wird darauf hingewiesen, daß die Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Partikelgröße das Ergebnis der Luftprobenahme um so weniger beeinflußt, je höher der Sammelwirkungsgrad ist. Für die Wahl des Filtermaterials wird auf die unterschiedlichen Eigenschaften hinsichtlich des Strömungswiderstandes, der Festigkeit in trockenem und feuchtem Zustand und der chemischen Löslichkeit hingewiesen. Bei Zellulosefiltern wird auf die Geschwindigkeitsabhängigkeit des Sammelwirkungsgrades und auf das Eindringen der Partikel in tiefe Filterschichten hingewiesen, das die direkte Ausmessung der Filter auf α-Aktivität verhindert.

Zelluloseasbestfilter haben gegenüber reinen Zellulosefiltern einen verbesserten Sammelwirkungsgrad, sie sind wenig geeignet, wenn eine radiochemische Auswertung der Filter vorgesehen ist.

Bei den Glasfaserfiltern werden hoher Sammelwirkungsgrad und kleinere Eingrabungsverluste bei geringem Strömungswiderstand gerühmt. Als Hauptnachteil werden Zerbrechlichkeit und Empfindlichkeit gegenüber Flußsäure erwähnt.

Bei den Membranfiltern werden als Hauptnachteile die geringe mechanische Festigkeit und der hohe Strömungswiderstand aufgeführt. Ihr Hauptvorteil wird darin gesehen, daß die zurückgehaltenen Partikel an der Filteroberfläche abgeschieden werden. Die Benutzung großporiger Membranfilter wird vorgeschlagen, da diese wesentlich geringeren Strömungswiderstand aufweisen.

Daneben werden für spezielle Anwendungsfälle noch Filter aus synthetischem Material und aus porösen Metallfilmen erwähnt.

Der Hauptvorteil elektrostatischer Sammler wird darin gesehen, daß ihr Strömungswiderstand nicht mit der Sammlerstandzeit zunimmt. Ihr Nachteil sind die Wartungs- und Sicherheitsprobleme, die durch die Verwendung von Hochspannung entstehen.

Die thermischen Abscheider werden nicht als Routinesammler, sondern nur zur Sammlung von Partikeln unter 1 µm für eine anschließende elektronenmikroskopische Untersuchung empfohlen. Bei ihnen tritt die aerosolhaltige Luft mit sehr geringer Durchsatzrate zwischen einem heißen Draht und dem Sammler durch.

Zur Bestimmung der Korngrößenverteilung werden die korngrößenfraktionierenden Aerosolsammler empfohlen. Bei den Impaktoren wird aus einer Düse eine senkrecht im Luftstrom stehende Platte angeströmt. Teilchen, deren Masse einen bestimmten Minimalwert überschreitet, prallen auf die Platte auf, die leichteren Partikel werden von der Strömung um die Sammlerplatte herumgeführt. Es werden 4 Literaturstellen mit Gerätebeschreibungen angeführt. Eine Spezialform des Impaktors ist auch der in der ISO-Empfehlung zum Nachweis von Pu-Aerosolen in Gegenwart natürlicher α-Luftaktivität vorgeschlagene Kreisringimpaktor. Vor dem Einsatz dieses Gerätes wird eine Bestimmung des Sammelwirkungsgrades für die jeweils zu sammelnden Aerosole für erforderlich gehalten. Ebenfalls auf der unterschiedlichen Masse der Partikel beruhen die Zyklonsammlervorsätze, bei denen ein kleiner Zyklonabscheider die Aerosole in zwei Fraktionen aufteilt, von denen die schwerere, im Zyklon abgeschiedene bei Inhalation in den oberen Luftwegen abgelagert würde und die leichtere, die hinter dem Zyklon auf einem Filter aufgefangen wird, bei Inhalation tief in die Lunge eindringen würde. Auch für dieses Gerät werden 5 Literaturstellen angeführt. Auf der unterschiedlichen Sedimentationsgeschwindigkeit beruhen schließlich die Schwerkraftvorsammler, bei denen die Luft durch geeignet dimensionierte Sinkkammern geführt wird, bevor sie das Filter erreicht.

5. Ein Kapitel, in dem die Probenahme zum Nachweis gas- oder dampfförmiger Aktivität behandelt wird. Es wird besonders darauf hingewiesen, daß sich die hierfür erforderlichen Methoden von den Probenahmeverfahren in der Aerosolüberwachung unterscheiden. Bei der Anwendung anreichernder Methoden wird eine genaue Kenntnis der chemischen und physikalischen Eigenschaften der zu überwachenden Luft für erforderlich gehalten, wenn Probenahmefehler vermieden werden sollen.

   Als mögliche Sammelmethoden werden Adsorption an festen Adsorbern, Gaswaschung, Kondensation und chemische Reaktionen mit dem Sammler erwähnt. Bei den Adsorbern wird insbesondere Aktivkohle besprochen. Die Möglichkeit, ihren Abscheidewirkungsgrad für Jod durch Imprägnierung zu erhöhen, wird ebenso erwähnt wie die Adsorberkühlung zu diesem Zweck. Auf die Fehlermöglichkeiten durch Adsorbererschöpfung durch inaktive Begleitstoffe wird aufmerksam gemacht. Die Notwendigkeit einer ausreichenden Verweilzeit der Luft im Adsorber wird nur bei der Besprechung von Silikagel erwähnt. Die Möglichkeit des Jodnachweises mit kohlehaltigen Filterpapieren wird erwähnt, es wird jedoch auf einen veränderlichen Wirkungsgrad derartiger Filter hingewiesen und bei ihrer Verwendung die Benutzung eines Sicherheitsbettes aus Aktivkohle angeraten.

   Als Verfahren zum Nachweis von elementarem Jod wird die Benutzung von Reinsilber- oder Reinkupfergewebe erwähnt. Diese Gewebe müssen völlig fett- und korrosionsfrei sein und halten keine organischen Jodverbindungen zurück.

   Die Gaswaschung in einer basischen Lösung wird als Verfahren zur Abscheidung von molekularem Jod und von Ruthentetraoxid angeführt.

   Die Probenahme durch Kondensation wird als Ausfrieren in Kühlfallen bei tiefen Temperaturen vorgeschlagen. Sie wird nach Ansicht der Herausgeber nur selten in der Routineüberwachung benutzt.

Als weiteres Verfahren zur Probenahme wird die Entnahme eines Gasvolumens in einem evakuierten Probenahmegefäß oder in einem Durchfluß-Probenahmegefäß erwähnt.

6. Einige Abschnitte über Zubehör wie Filterhalter, Durchflußmeßgeräte, Durchflußregler, Pumpen und Gebläse. In diesen Abschnitten wird auf eine Vielzahl wichtiger Kleinigkeiten hingewiesen, die zur einwandfreien Durchführung eines Luftüberwachungsprogrammes beachtet werden müssen, von gratfreien Filterhalterungen über die Frage, ob Durchflußmesser vor oder hinter den Sammlern sitzen sollten bis zu dem leidigen Problem der Gerätekorrosion. Auch der Hinweis auf exotische Pumpen wie Dampfstrahlgebläse mag in manchen Situationen nützlich sein.

Eine Würdigung der ISO-Empfehlung ist zur Zeit noch nicht möglich. Es mag sein, daß sie für ganz überragende Kenner der Materie nichts Neues bringt, der Durchschnitts-Strahlenschutzfachmann und vor allem der Neuling wird in ihr eine Fülle von Denkanstößen finden. Allerdings wird sie kaum als "Kochbuch" zu benutzen sein, doch dies liegt an der überaus komplizierten Struktur der behandelten Materie, die sich solchen generalisierenden Lösungen entzieht.

DISKUSSION

KÖNIG: Die ISO-Norm, von der Herr Berger berichtet hat, wird z.Z. in eine DIN-Norm umgearbeitet. Diese Arbeit ist recht mühsam, da diese ISO-Norm sprachlich nicht den Vorstellungen von einer DIN-Norm entspricht. Ich halte diese Norm für sehr wichtig. Meiner Meinung nach besteht ein grobes Mißverhältnis zwischen dem Aufwand für die Meßtechnik und jenem für die Probenahme. Die schönste Luftüberwachungsanlage nützt nichts, wenn man sie an das Ende einer 50 m langen Probenahmeleitung hängt!

JACOBS: Herr König, ich kann Ihnen voll beipflichten. Ich hatte mir das für eine der provokativen Fragen, die wir vielleicht nachher in der Diskussion noch stellen wollen, notiert. Ich halte das wirklich für ein großes Problem im Strahlenschutz. Wenn ich eben höre, daß wir zur Beweissicherung eine Stichprobenmessung pro Jahr machen, dann frage ich mich: Ist das noch Beweissicherung? Aber ich möchte das in diesem Augenblick nicht vertiefen.

FRITZE: Welches Rohrmaterial ist nach Ihrer Meinung für die Probenahmeleitungen besonders geeignet?

BERGER: Die Norm gibt darüber keine umfassende Auskunft, es wird eigentlich nur darauf hingewiesen, daß bestimmte Rohrmaterialien für bestimmte Überwachungsaufgaben besonders ungünstig sind, beispielsweise wird das schon von Herrn Wilhelm zitierte Beispiel der Kupferleitung für Halogenüberwachung erwähnt. Es wird in der Norm überhaupt relativ wenig - wie ich ja schon sagte - an fertigen Lösungen geboten, die für alle Fälle anwendbar sind, und dies ist wohl auch kaum möglich. Für viele Zwecke ist beispielsweise sicher eine Edelstahlleitung vorzüglich. Wenn Sie aber einen hohen Salzsäuregehalt in der zu überwachenden Abluft haben, ist die Edelstahlleitung sicherlich nicht geeignet. In der Norm wird immer wieder betont, daß man die Wahl des Materials ganz auf die jeweiligen Verhältnisse der Anlage abstimmen muß, und daß also die Kenntnis der chemischen Eigenschaften der zu überwachenden Abluftströme unerläßlich ist.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

III. E R F A H R U N G E N

3.-5. SITZUNG

VORSITZENDE: H. JACOBS, J. SCHWIBACH, R. MAUSHART

EXPERIENCE IN ROOM AND EXHAUST AIR MONITORING AT HIGH ENERGY ACCELERATORS

J. BAARLI

HEALTH PHYSICS DIVISION, C.E.R.N.,
GENF

1. Introduction

Particle accelerators produce high energy charged particles in a vacuum tube. The length of the vacuum tube depends on the energy to which the charged particles are to be accelerated. At CERN three large particle accelerators are in operation and a super proton synchrotron of 400 GeV (SPS) with a vacuum tube in the form of a ring 2200 m in diameter is under construction. The main characteristics of the accelerators in regular use for high energy nuclear physics experiments are given in Table 1.

Induced radioactivity is produced in the accelerators when particles are lost from the beam and penetrate absorbers. Experience has shown that this occurs during acceleration, and at places where the beam is ejected out of its circular orbit or allowed to hit a target inside the circular vacuum tube, or in an external beam line. At these locations and in particular downstream these points the major concentration of induced radioactivity builds up in machine parts, shielding, and other materials[1,2,3]. The radioactivity is produced by the lost primary protons or the various secondary particles created in the nuclear cascade or evaporation processes following high energy nuclear reactions. The production of gas and aerosol radioactivity takes place at the same locations where also the greatest intensity of high energy radiation traverses the air.

Care is normally taken to avoid that a primary beam of high energy particles traverses air, although this might happen accidentally.

The accelerator itself, the ejected beam line and target area are located inside heavy shielding to protect the surroundings from the danger of stray radiation. In some cases this shielding is also desirable to reduce background radiation for experiments. The gas and aerosol radioactivity is produced inside these shielding enclosures, where the air is normally ventilated. In the following some of our present knowledge about the risk of this radioactivity is summarized for the CERN high energy accelerators.

2. The production of air and aerosol radioactivity

The quantity of air and aerosol radioactivity produced at the high energy accelerator installations depends on the intensity of the radiation traversing the air. For the CERN ISR this intensity is extremely low since the installation requires the minimum loss of high energy particles and for this reason operates with a vacuum which on the average is $3\ 10^{-11}$ torr. Figure 1 shows a schematic layout of the ISR. Up to 10 A, i.e. $2\ 10^{14}$ protons of 26 GeV is stored in either of these rings, clockwise in one and counter-clockwise in the other. The beams can be made to intersect with each other at 8 points, one of which is used to dump the beams. Any radioactivity which is produced near these places will be rapidly diluted due to the ventilation system which has a capacity of 600,000 m^3/h for the total air volume of 140,000 m^3. Air leaves the tunnel at 8 points through a filter at a rate of 5000 m^3/h. Figure 2 shows the general layout of the 28 GeV PS. Places where the principal production of air and aerosol radioactivity occurs are indicated. This accelerator is also airconditioned to provide stable temperature and humidity. It represents a closed system where a slight overpressure is maintained. Air is taken in at 8 places at a rate of 40,000 m^3/h, which corresponds to about three complete air changes per hour. Air escapes through a number of cable holes, doors, and other openings. There is no main release point for the air from the PS. The air loss into the environment through holes, doores, etc., is estimated to be about 30% of the total. Extracted beam lines and target areas of the PS are also ventilated.

Figure 3 shows the 600 MeV SC (synchro-cyclotron) with its extracted undergrownd ISOLDE (Isotope Separator On Line) area. The air space inside this accelerator is ventilated as a closed system with filters. The main hall with a volume of 3000 m^3 has a recycling of 55% of the air. The ventilation capacity is 16,800 m^3/h. The ISOLDE area, with a volume of 400 m^3, does not recycle the air, but is ventilated through absolute filtering at a rate of 3000 m^3/h. The production of air and aerosol radioactivity takes place principally close to the SC vacuum chamber and near the target area of the ISOLDE beam in the extracted proton hall.

The problems of the radiation hazard from air and aerosol radioactivity are complex, requiring measurements at the different installations and studies of the factors influencing production, dilution and rejection of radioactivity to the outside. In the first place, knowledge about the hazard at the location of the accelerator has to be provided to allow access for maintenance and repair work on the accelerator itself; secondly, knowledge is also required about the influence of the air and aerosol radioactivity which is released into the environment. Such studies have been carried out by the CERN Health Physics Group for several years[4,5,6].

3. Air and aerosol radioactivity at the CERN accelerator installations

Measurements of the total air and aerosol radioactivity are made with γ-compensated ion chambers*) through which the activated air can pass. These chambers have been calibrated using samples of ^{3}H, ^{14}C, ^{85}Kr and ^{135}Xe of known specific activity[8]. Typical values of the total specific activity of air samples at various locations near the accelerators are given in Table 2. As shown, these values vary greatly from one location to another.

---

*) Johnston Type Triton 955B,
Alcatel Type CD 23.

In Figure 4 is shown the time variation of the radioactivity in the air from the neutrino area of the CERN PS after the extracted beam has been turned off. It is seen that the concentration of radioactivity initially decreases very rapidly, indicating the presence of short-lived isotopes. The curve also shows the influence from ventilation which decreases with time after machine stop. If a sample of the air is enclosed in the ion chamber and allowed to decay, the upper curve is obtained.

Figure 5 shows the same measurements of air from inside the hall of the 600 MeV SC. Comparing this figure with the preceding one, there seems to be great similarities in the composition of the radioactivity of the air at these two places.

Analyses of observed decay curves such as those shown in Figures 4 and 5 give information about the composition of the air and aerosol radioactivity produced. Table 3 shows such a series. Due to the existence of very short-lived isotopes like ^{16}N and ^{10}C with half-lives of 7 and 19 sec and a transfer time of the sample to be measured of 1-2 min, it is to be expected that the values are difficult to compare. It can however be concluded that the principal isotopes responsible for the air and aerosol radioactivity inside the accelerator shield is ^{15}O, ^{13}N and ^{11}C, with traces of ^{38}Cl and ^{41}A. The latter is thought to be produced by thermal neutron capture by the ^{40}A in air (1.3%), ^{38}Cl is the result of spallation reactions of the same elements, and the other isotopes are produced by such reactions on oxygen and nitrogen in the air. Isotopes with half-lives of more than 5 days are found to contribute less than 10^{-3} per cent of the specific activity at these places and can therefore be ignored. It is rather interesting to notice that the composition of the activated air is about the same at the various CERN high energy accelerators.

In Table 4 are listed the $(MPC)_a$ for the isotopes identified and of greatest concern. The values are those given in the

Swiss*) and the French**) radiation protection rules. The $(MPC)_a$ values not stated in these national rules have been calculated [9]. However, studies of $(MPC)_a$ for the same isotopes carried out by Höfert has shown that when taking the skin as the critical organ and considering submersion of the whole body and the diameter of the radioactive cloud, the $(MPC)_a$ for the radioactivity identified is about 40 pCi/cm^3 [9]. It appears therefore that the values quoted in Table 4 might be conservative.

When the time variation of the specific activity of air and aerosol radioactivity is considered, the $(MPC)_a$ for radiation exposed personnel will be reached in all cases after a waiting period of 30 min after the beam has been turned off. Ventilation helps to reduce this time, as can be seen from Table 5, where two locations of the 600 MeV SC have been chosen as an example. On the other hand, comparing the dose-rate from the ambient γ and β radiation at the same location, it is found that this dose-rate exceeds that of air and aerosol radioactivity. Consequently a general waiting period of 5 min is applied for radiation protection reasons before access is permitted to regions near targets or beam loss points of the accelerators and their external beam areas. The specific radioactivity is then reduced normally to a few pCi/cm^3.

4. Radioactive gas and aerosol release in the environment

The other part of the problem concerns the release of radioactive gas and aerosols from the accelerator into the environment. This problem has been subject to extensive studies and is of particular importance in connection with the plans to increase the intensities of the high energy accelerators at CERN.

---

*) Ordonnance du Conseil Fédéral concernant la protection contre les radiations (19 avril 1963).

**) Décret général du 11 décembre 1963 sur les installations nucléaires et Décrets N° 66.450, 67.228 et Arrêtés du 18 au 24 avril 1968 sur la Protection du Travailleur contre les Rayonnements Ionisants.

Continuous measurements of the stray γ and neutron radiation on the site of CERN are currently made, as well as measurements of air and dust radioactivity. Figure 6 shows a plan of the Laboratory indicating the points of such measurements.

Direct measurements of gas and aerosol radioactivity in the range of 10^{-2} pCi/cm^3 or less are difficult due to the lack of instruments with sufficient sensitivity. Measurements for determining specific activities of air for environmental problems have therefore been made using a normal air sampling technique with filters (Microsorban 98/99). Gamma-ray spectroscopy has been done using a 55 cm^3 Ge(Li) detector and determination of β emitters by analysis of decay curves.

Irradiation at the 600 MeV SC for several days of air samples in airtight containers showed that the isotopes ^{7}Be, ^{24}Na, ^{32}P, ^{33}P and ^{3}H in addition to ^{41}A were produced[10]. All these isotopes have half-lives exceeding 30 min and are consequently of importance for the environment and environmental contamination. By making measurements of exhaust air as well as calculations for the ISOLDE area of the 600 SC it was possible to obtain a good correlation between the measured and calculated radioactivity[10]. This comparison is shown for some of the most important isotopes in Table 6. The concentrations of radioactivity in the released air are two or more orders of magnitude lower than the $(MPC)_a$ for all isotopes except ^{7}Be and ^{41}A. This means that the releases, which in addition will be diluted due to the climatic conditions, raise no problem of radiation protection of the public inside or outside the Laboratory. A dose-rate of 5 mrem/year corresponds to concentrations of 2 10^{-4} pCi/cm^3 of the activity measured. Releases for example from the ISR have been measured and found to have a concentration of 8 10^{-8} pCi/cm^3 [11] and measurements of the total β radioactivity of air samples from five different locations within the Laboratory showed values not exceeding 0.18 10^{-6} pCi/cm^3 [7]. Measurements inside the Laboratory have in addition failed to correlate measured air radioactivity to

the operation of the accelerators[12]. From the point of view of environmental contamination there seem only to be ^7Be and ^3H which are of concern, primarily because of their half-lives. Studies of the influence of the climatic conditions seem to show that ^7Be might be found in concentrations of $2\ 10^{-7}$ and $5\ 10^{-9}$ pCi/m^3 at distances of 100 and 1000 m from the Laboratory[10]. These values are to be compared to 10^{-7} pCi/cm^3, which is the concentration produced by cosmic radiation. It is therefore difficult to make measurements of the contribution to the environmental ^7Be concentration caused by the CERN accelerators.

Studies of ^7Be in drain water and air within the Laboratory have confirmed this[13]. It has been estimated that the total release of ^7Be and ^3H per year in air and aerosol radioactivity from the CERN installations is of the order of 2000 mCi and 30 mCi respectively.

5. Conclusion

Studies of the air and aerosol radioactivity produced by the CERN high energy accelerators show that substantial concentrations of relatively short-lived isotopes are produced. Normally the risk from ambient γ and β radioactivity in machine parts is the dominant hazard for repair and maintenance work on the accelerators. With respect to the release of radioactivity into the environment it is shown that the specific activity is about 2 or more orders of magnitude lower than the $(MPC)_a$ for the population at large. In addition, contamination of the environment seems to be limited to ^7Be and ^3H. For ^7Be the concentrations will be comparable to those produced by cosmic rays and would consequently be difficult to measure. This has been confirmed by studies of air and aerosol radioactivity near the accelerators where no correlation could be made of this radioactivity to accelerator operation. However, the problem will have to be followed up in the future due to the increased intensity which is planned for the CERN 600 MeV SC and 28 GeV PS.

REFERENCES

1. A.H. Sullivan, Health Physics, 23, 253 (1972).
2. J. Baarli et al., Proc. Int. Symp., Bournemouth, 1966.
3. M. Höfert, CERN 71-16, p. 935 (1971).
4. A. Rindi and S. Charalambus, Nucl. Inst. Methods, 47, 227 (1967).
5. M. Höfert, Proc. 4th Annual Meeting of the Fachverband für Strahlenschutz, Berlin, 1969.
6. A. Peetermans, CERN DI/HP/157 (1972).
7. F.A. Prantl and J. Baarli, Ann. Occup. Hyg., Vol. 11, p. 191 (1970).
8. A. Peetermans, CERN 72-12 (1972).
9. M. Höfert, Proc. Conf. on High Energy Accel., Stanford, 1969.
10. A. Peetermans and J. Baarli, Proc. of IAEA Symp., Warsaw, 1973. In press.
11. J.W.N. Tuyn, Private communication.
12. F.A. Prantl and J. Baarli, CERN 72-15 (1972).
13. A.H. Sullivan, Private communication.

FIGURE CAPTIONS

Fig. 1. The CERN ISR tunnel showing some radiation restricted areas.

Fig. 2. The CERN PS ring tunnel with external beams. The stars indicate major points of beam loss (targets).

Fig. 3. The CERN SC with the underground ISOLDE area.

Fig. 4. Decay of air radioactivity produced in the PS neutrino target area.

Fig. 5. Decay of air radioactivity produced in the SC machine hall.

Fig. 6. The CERN site showing the locations of the site monitoring stations.

Table 1

The CERN high energy accelerators

	SC	PS	ISR
Energy	600 MeV	28 GeV	Up to 31.4 GeV
Diameter	2.2 m	200 m	300 m (2 rings)
Particles	Protons	Protons	Protons
Beam currents	1 μA	10^{12} p/s	10 A
External beams	1	3	2 beam dumps
Internal targets	1	Several	Colliding beams

SC = Synchro-cyclotron

PS = Proton Synchrotron

ISR = Intersecting Storage Rings

Table 2

Examples of measured stationary values of total gas radioactivity in the CERN accelerators

Location	Beam intensity		Concentration (in pCi/cm^3)
600 MeV SC	1 μA	Ventilated	27
50 MeV Linear Accelerator	35 mA	Ventilated	6700
28 GeV Neutrino beam External target	3.5 10^{11} p/s	Unventilated	400
28 GeV PS Ring	3.5 10^{11} p/s	Ventilated	< 2
26 GeV ISR	6 10^{11} p/s	Ventilated	4

Table 3

The measured composition of air and aerosol radioactivity at the CERN SC and PS

Isotopes	Half-life	SC ISOLDE	SC Hall	PS Neutrino	PS Hall
^{16}N ^{10}C ^{14}O	<1 min	1%	2%	20.9%	-
^{15}O	~2 min	25%	31%	43.1%	59%
^{13}N	~10 min	21.8%	29.7%	14.5%	8%
^{11}C	~20 min	51%	34.0%	20.8%	31%
^{38}Cl	~37 min	0.2%	0.3%	-	-
^{41}A	~110 min	1.0%	3%	0.7%	2%
Longer lives	> 5 days	< 0.001%	< 0.001%	-	-

Table 4

Maximum permissible concentration of isotope formed in air at accelerators

Element	Half-life	Radiation	$(MPC)_a$ 40 h/week pCi/cm^3	$(MPC)_a$ 168 h/week pCi/cm^3
^{16}N *)	7.13 sec	β,γ	0.34	0.008
^{10}C *)	19.3 sec	$\beta^+\gamma$	1.0	0.025
^{14}O *)	1.2 min	$\beta^+\gamma$	0.63	0.015
^{15}O *)	2.0 min	$\beta^+(\gamma)$	1.6	0.004
^{13}N	10.0 min	$\beta^+(\gamma)$	2.0	0.005
^{11}C *)	20.3 min	$\beta^+(\gamma)$	2.4	0.006
^{38}Cl	37.1 min	β,γ	2.8	0.007
^{41}A	1.83 h	β,γ	1.6	0.004
^{7}Be	53.3 days	γ	1.6	0.004
^{3}H	12.3 years	β	8.	0.2

*) Values for the five isotopes indicated are not given in the Swiss or French radiation protection laws.

Table 5

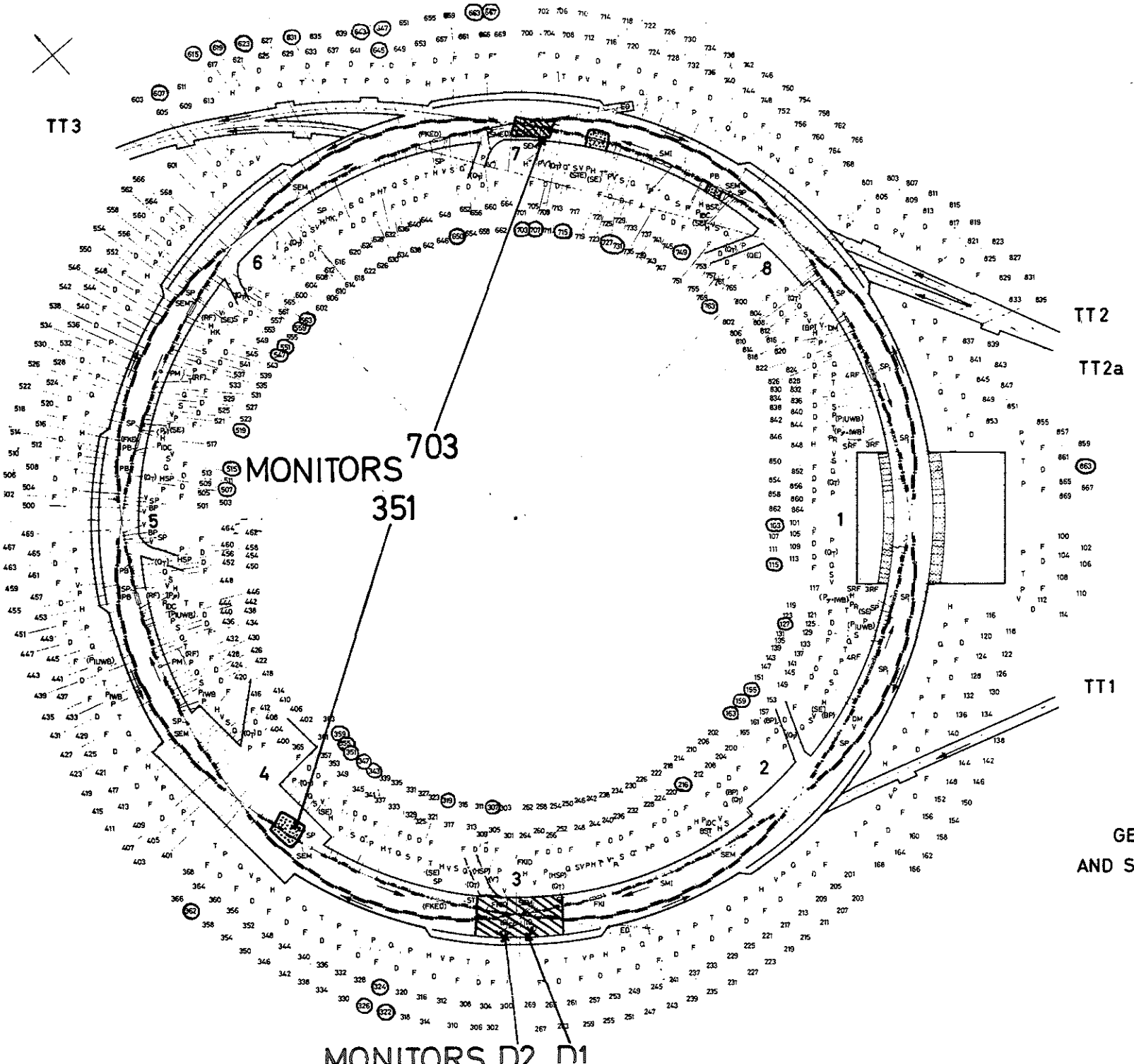
Variation of air radioactivity with time in two places at the 600 MeV SC

Time (min)	ISOLDE	MSC Hall
2	50%	70%
5	20%	45%
10	10%	25%
20	1%	10%
35	0.1%	3%

Table 6

Measured and calculated specific activity in air of some long-lived isotopes leaving the SC ISOLDE area (in pCi/cm^3)

Isotope	Half-life	Measured	Calculated
^{3}H	12.26 years	-	$1.6\ 10^{-5}$
^{7}Be	53.6 days	$2.7\ 10^{-4}$	$3.2\ 10^{-4}$
^{24}Na	15 days	$3.6\ 10^{-5}$	$4.8\ 10^{-5}$
^{32}P	14.3 days	$6.0\ 10^{-6}$	$8.4\ 10^{-6}$
^{33}P	25 days	$2.0\ 10^{-6}$	$4.5\ 10^{-6}$
^{41}A	1.83 h	-	$2.5\ 10^{-2}$

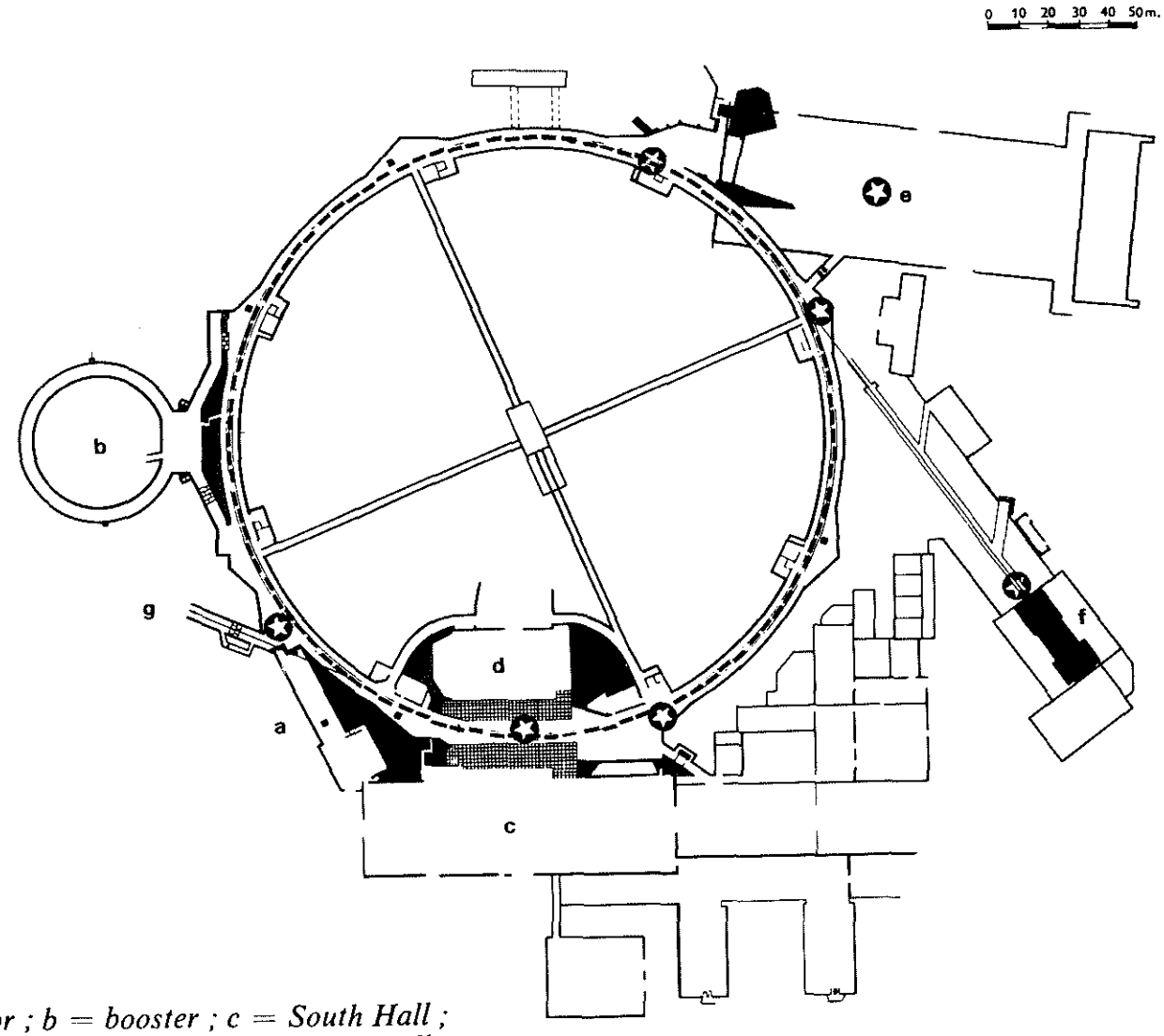


F	Radially focusing unit
D	Radially defocusing unit
H	Horizontal field magnet
T	Terwilliger quadrupole
Q	Skew quadrupole
S	Sextupole
V	Vacuum sector valve
P	Beam position pick-up station
P_φ+IWB	Phase & wide band intensity pick-up station
PB	Secondary emission probe scanner
P_{IDC}	DC intensity pick-up
P_{IWB}	Wide band intensity pick up
P_{IUWB}	Ultra wide band intensity pick-up
RF	RF cavity
BST	Beam stopper for first turn
SMI	Steel septum magnet for injection
FKI	Fast kicker for injection
QE	Special quadrupole for slow integral ejection
SE	Sextupole for slow ejection
STE	Thin septum magnet for ejection
SME	Thick septum magnet for ejection
FKID	Fast kicker internal beam dumping
FKED	Fast kicker external beam dumping
SMED	Septum magnet external beam dumping
ID	Internal beam dump
ED	External beam dump
FKE	Fast kicker for ejection
*	Special design
F*	Must be with reversed yoke for ejection and external beam dumps
ST	Scraping target
P_R	Radial position pick-up
HSP	High sensitivity pick-up for betatron frequency measurements
HK	Horizontal kicker
BP	Beam profile indicator
Q_T	Tuning quadrupole
SEM	Secondary emission grid for first turn observation
SRF	Scanning RF-cavity
( )	Space reserved for later additions
SP	Sputter pump (long straight sections only)
DM	Damping magnet (injection errors)
PM	Microwave pick-up station
SP_1	Small sputter pump
MD	Monitor for beam dump

FIG. 1

GENERAL LAYOUT OF MAGNETS AND STRAIGHT SECTIONS IN THE ISR

SCALE 50 m



a = linac and pre-injector ; b = booster ; c = South Hall ;
d = North Hall ; e = East Hall ; f = South-East Hall ;
g = beam to ISR and West Hall.

Fig. 2

CERN 600 MeV Syncrocyclotron – Beams used for radiobiology

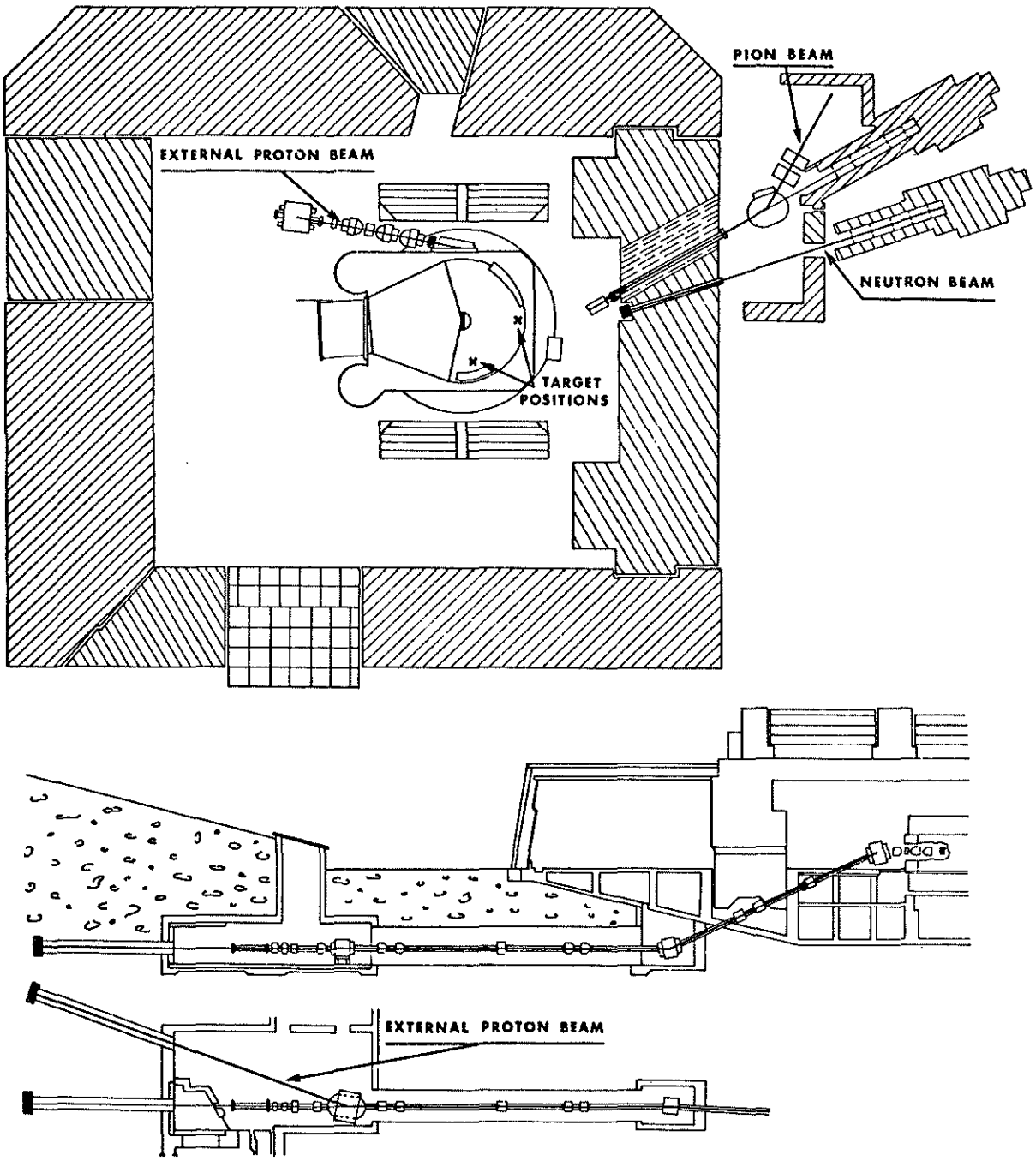


Fig. 3

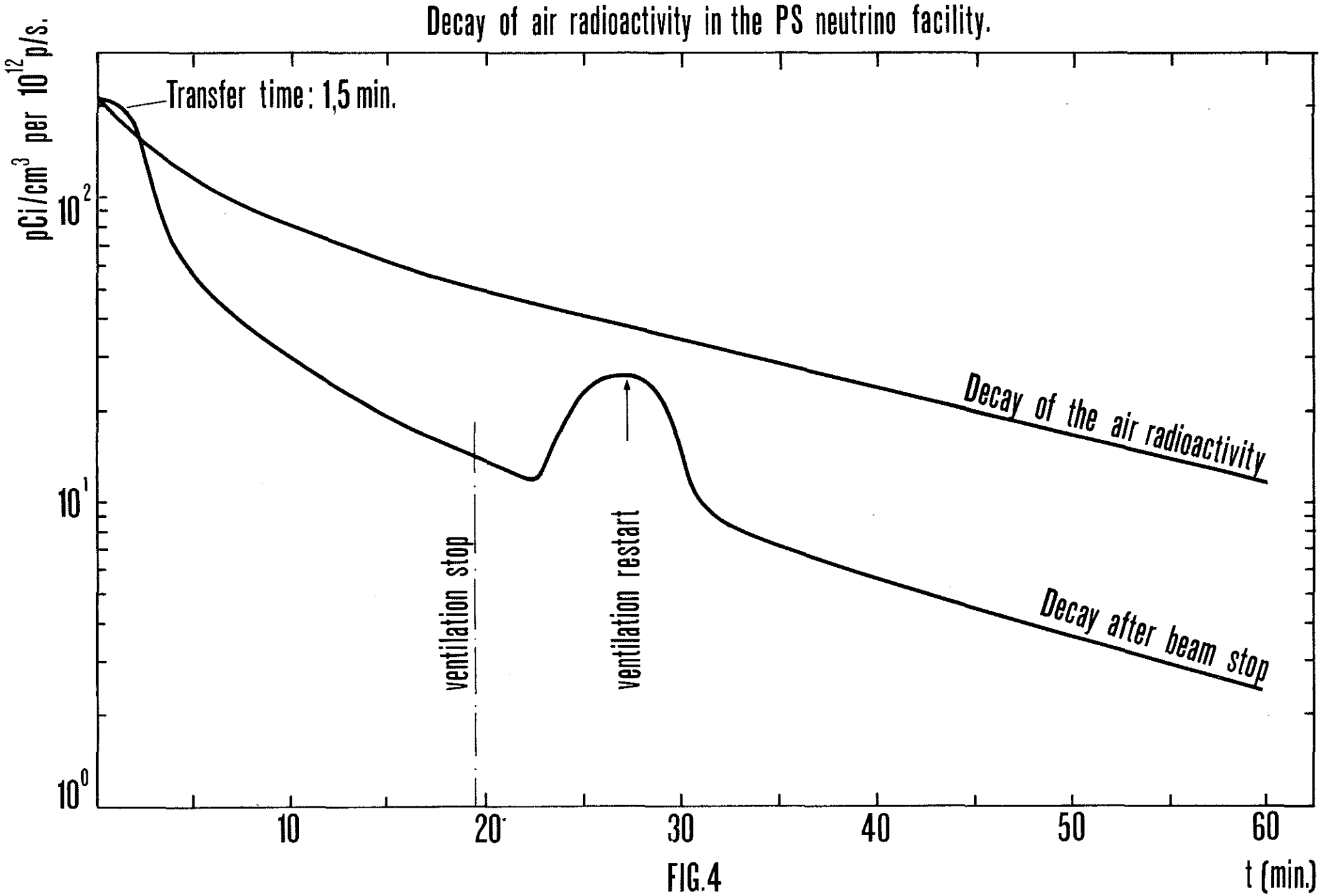

Decay of air radioactivity in the PS neutrino facility.
pCi/cm^3 per 10^{12} p/s.
Transfer time: 1,5 min.
10^2
10^1
10^0
ventilation stop
ventilation restart
Decay of the air radioactivity
Decay after beam stop
10
20
30
40
50
60
t (min.)

FIG.4

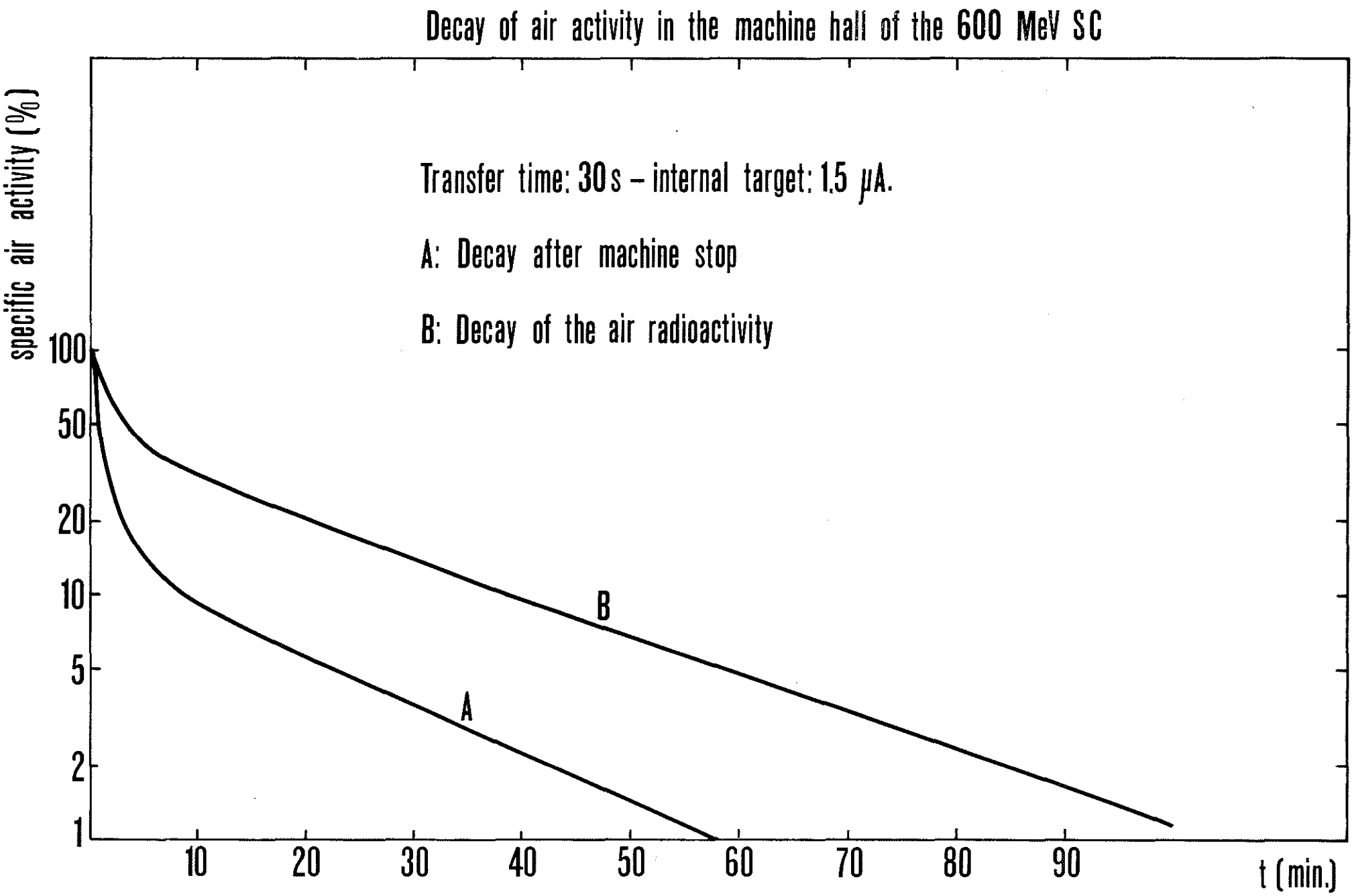

Decay of air activity in the machine hall of the 600 MeV SC
Transfer time: 30 s – internal target: 1.5 μA.
A: Decay after machine stop
B: Decay of the air radioactivity
specific air activity (%)
100
50
20
10
5
2
1
10
20
30
40
50
60
70
80
90
t (min.)
A
B

FIG. 5

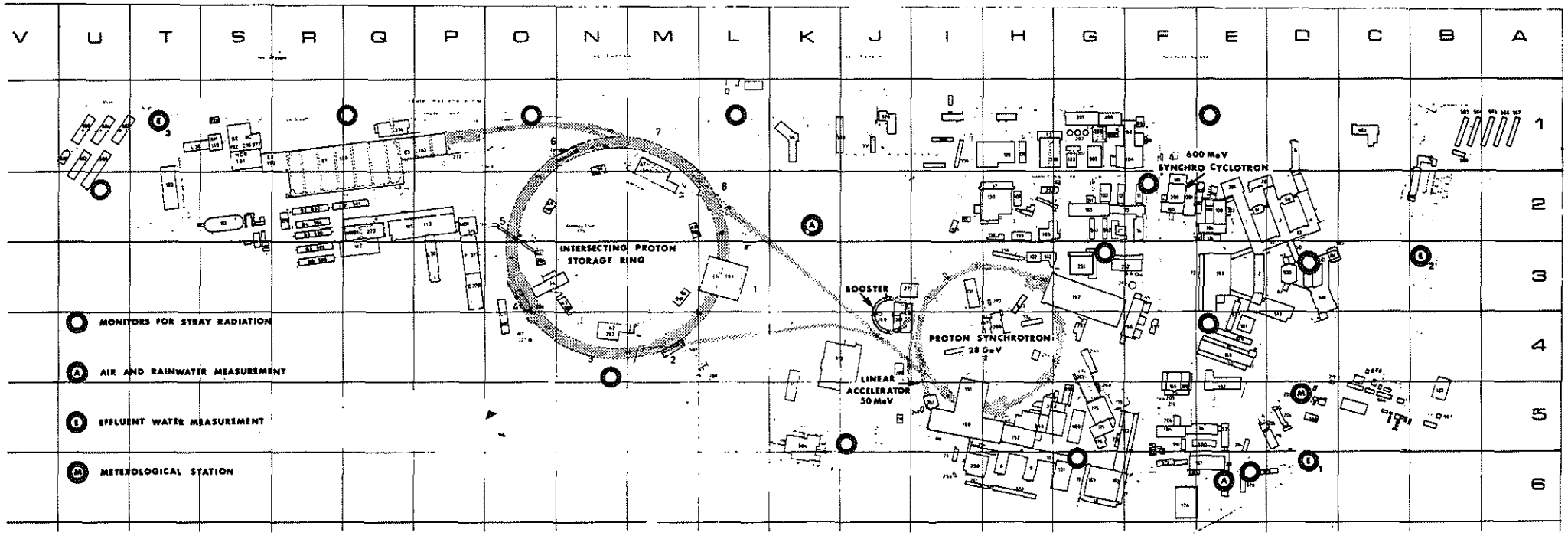


FIG. 6

Plan general du CERN

DISKUSSION

DE RAS: I should like to ask Mr. Baarli the following question: Of all the machines you have mentioned the lowest energy machine, namely the 50 MeV LINAC, has the highest specific activity in the air. What could be the reason for this?

BAARLI: The reason for this is first of all: In this machine we have about 50 mA of protons at 50 MeV and we are loosing a very great amount of these fast particles when the beam is injected into the 28 GeV machine. The concentration is very local around the vacuum chamber. Both the intensity of the secondary radiation and of the specific activity decrease very rapidly, with the inverse square law, from the point of loss at the vacuum chamber where these measurements have been made.

VON RÖNNE: Herr Baarli, wenn ich mich recht erinnere, haben Sie in Ihrem Dia für die maximal zulässige Konzentration für ^{13}N 2 pCi/cm^3 angegeben, also 2.10^{-6} µCi/cm^3. Ich kann mich an andere Autoren und auch an frühere Entwürfe zur Beschleunigerverordnung in Deutschland erinnern. Dort war immer die Größenordnung von 10^{-7} angegeben. Haben Sie dafür eine Erklärung?

BAARLI: Leider habe ich keine Erklärung dafür. Aber die Werte, die ich habe, stammen aus der schweizerischen und der französischen Verordnung. Und für Isotope, die wir dort nicht finden, haben wir selbst Berechnungen durchgeführt. Ich weiß, daß unsere Ergebnisse ein bißchen konservativ sind, weil z.B. der ganze Körper in der radioaktiven Wolke angenommen wurde. Dann bekommt man ungefähr zehnmal höhere maximal zulässige Konzentrationen.

MAUSHART: Ich glaube, es kommt auf die Konfiguration an. Man kommt auf die niedrigeren Werte von 2.10^{-7}, wenn man annimmt, daß die Belastung durch die äußere Bestrahlung aus einer Wolke, die unendlichen Durchmesser hat, erfolgt. Natürlich ist es bei den kurzlebigen Radionukliden fast ausgeschlossen, daß je eine solche Wolke erreicht wird, und deshalb wird in der Praxis dann oft zu den höheren maximal zulässigen Werten gegriffen. Wenn Sie gar in einem geschlossenen Raum nicht die γ-Belastung, sondern nur die β-Belastung der Haut von außen nehmen, dann kommt es zu noch höheren zulässigen Werten von einigen 10^{-5}.

BAARLI: Das ist ganz richtig, Herr Maushart. In unserem Falle haben wir eine Wolke mit einem Durchmesser von etwa 8 m an diesem Ort. Wir wenden dies in der Praxis sehr oft auf die Zutrittsregelung zur Maschine an.

SAUERMANN: Herr von Rönne, die 4.10^{-7} µCi/cm^3 sind ja der Wert, der in der Ersten Strahlenschutzverordnung für ^{41}Ar steht. Nach ICRP ist dieser Wert der für 168 Stunden pro Woche. Der 2.10^{-6} µCi/cm^3-Wert ist der 48 Stunden-Wert nach ICRP und - wie Herr Maushart eben sagte - für die unendlich ausgedehnte Halbkugel berechnet. Ich werde gleich zu diesem Thema noch ein Dia bringen. Herr Höfert hat nämlich vor einigen Jahren den Vorschlag gemacht, doch etwas realistischer zu sein und von der unendlich ausgedehnten Halbkugel abzugehen und in Rechnung zu stellen, daß es sich um β-Strahler handelt, die nur eine Hautbestrahlung bewirken. Herr Höfert hat für diesen Fall und für kleinere Räume bis maximal 4 - 6 m Durchmesser, wie sie in der Praxis vorkommen, diese Werte berechnet und kam noch eine Zehnerpotenz höher.

JACOBI: Herr Baarli, haben Sie irgendwann einmal beobachtet, ob Ihre kurzlebigen radioaktiven Gase an Filtern adsorbiert werden?

BAARLI: Wir haben diese Untersuchung nicht durchgeführt. Wir haben aber die Durchlässigkeit der Filter untersucht und diese beträgt ungefähr 99,8 %.

ERFAHRUNGEN BEI DER RAUM- UND ABLUFTOBERWACHUNG AN NIEDERENERGETISCHEN TEILCHENBESCHLEUNIGERN

P.F. SAUERMANN

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH,
ZENTRALABTEILUNG FORSCHUNGSREAKTOREN

1. Einleitung

Bei der Beurteilung der Strahlenschutzprobleme an niederenergetischen Teilchenbeschleunigern (Betatrons, Zyklotrons und Neutronengeneratoren), welche in den vergangenen zehn Jahren eine weite Verbreitung, insbesondere in der Nuklearmedizin, gefunden haben bzw. zur Zeit finden (Kompakt-Zyklotrons), hat bisher die Frage der Abschirmung dieser Strahlenquellen hoher Strahlleistung gegenüber der Frage nach der Aktivierung der Raum- und Abluft sowie der Bauelemente der Beschleuniger eindeutig im Vordergrund gestanden.

Eine von uns durchgeführte Untersuchung zu diesem Fragenkomplex, bei welcher die gesamte einschlägige Literatur der Jahre 1960 bis 1973 überprüft wurde, hat ergeben, daß über Ergebnisse von Messungen der Raum- und Abluft der niederenergetischen Teilchenbeschleuniger bisher wenig berichtet wurde.

Im folgenden wird ein Überblick über das uns hiernach vorliegende experimentelle Material gegeben.

Im Anschluß daran berichten wir über einige Ergebnisse der von uns an unserem Neutronengenerator Dynagen durchgeführten Tritium-Emissions- und Immissionsmessungen.

In der Raum- und Abluft von niederenergetischen Teilchenbeschleunigern findet man vornehmlich die in Tabelle 1 aufgeführten radioaktiven Gase vor. Hinzu kommt - im Falle der Neutronengeneratoren - das aus den Tritiumtargets entweichende Tritiumgas. Während bei Elektronenbeschleunigern ^{13}N und ^{15}O durch (γ,n)-Reaktionen erzeugt werden, sind bei Zyklotrons und Neutronengeneratoren (n,2n)- und (n,p)-Reaktionen sowie thermischer Einfang vorherrschend.

Bei der Beurteilung der in der Raum- und Abluft von Teilchenbeschleunigern gemessenen Konzentrationen radioaktiver Gase spielt der maximal zulässige Konzentrationswert eine wichtige Rolle. Von den in Tabelle 2 enthaltenen Radionukliden ist in der Ersten Strahlenschutzverordnung nur ^{41}Ar aufgeführt (MZK-Wert: 4.10^{-7} $\mu Ci.cm^{-3}$). Für die anderen Gase, welche wesentlich kurzlebiger sind als ^{41}Ar, müßte der MZK-Wert nach der Ersten Strahlenschutzverordnung zu 1.10^{-9} $\mu Ci.cm^{-3}$ angenommen werden.

Da dies offenbar unsinnig wäre, sollten die von George et al. [1] nach den ICRP-Empfehlungen berechneten MZK-Werte (Spalte 2 der Tabelle 2) angewendet werden.

Nuklid	Halbwert-zeit	Ausgangs-nuklid	Anteil Gew. %	Reaktion
^{13}N	10.1 min	^{14}N	0.755	(γ,n) (n,2n)
^{15}O	2.1 min	^{16}O	0.23	(γ,n) (n,2n)
^{16}N	7.3 s	^{16}O	0.23	(n,p)
		^{15}N	0.003	th.Einfang
^{41}A	1.8 h	^{40}A	0.013	th.Einfang
Radioaktive Gase in der Luft von niederenergetischen Teilchenbeschleunigern				

Tab. 1

Nuklid	MZK - Werte		
	ICRP II	Rindi u. Ch.	Höfert
^{13}N	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-5}$
^{15}O	$2.0 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-5}$
^{16}N		$5 \cdot 10^{-7}$	
^{41}A	$2.0 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-5}$
Maximal zulässige Konzentrationswerte für die bei niederenergetischen Teilchenbeschleunigern auftretenden radioaktiven Gase			

Tab. 2

Die Frage, welcher Satz von MZK-Werten bei der Strahlenschutzüberwachung von Teilchenbeschleunigern sinnvollerweise zur Anwendung kommen sollte, ist von Höfert [3] ausführlich diskutiert worden.

Höfert macht mit Recht darauf aufmerksam, daß das ICRP-Modell den unendlich ausgedehnten Halbraum (der in Bestrahlungsräumen nicht vorhanden ist) zugrundelegt und außerdem nicht berücksichtigt, daß die β^+-Strahlung der radioaktiven Gase nur eine endliche Reichweite hat.

Höfert hat diese Mängel des ICRP-Modells korrigiert und kommt so zu den wesentlich höheren MZK-Werten in Spalte 4 der Tabelle 2. Wie bereits oben erwähnt, ist in der einschlägigen Literatur bisher nur sehr wenig über Raum- und Abluftmessungen an niederenergetischen Teilchenbeschleunigern berichtet worden. Die Leistungsdaten der Beschleuniger, an denen nach unserer Kenntnis Messungen durchgeführt wurden, sind in Tabelle 3 zusammengefaßt.

Beschleuniger	Endenergie MeV				Maximale Ionenstromstärke µA			Maximale Strahlleistung kW	Neutronenausbeute s^{-1}
	e	p	d	α	p	d	α	e	n
Elektronenlinearbeschleuniger Universität Yale, RPI	50	-	-	-	-	-	-	25	-
Isochron-Zyklotron Jülich	-	45	9o	180	45	50	25	-	$\sim 2\cdot 10^{12}$ (Be-Target, E_d = 90 M A_d = 10µA
IPCR-Zyklotron Yamato-machi, Saitama-Ken (Japan)	-	15	18	36	50	30	20	-	-
Neutronengenerator Dynagen, Jülich	-	-	0.3	-	-	10^4	-	-	$5\cdot 10^{11}$

Leistungsdaten einiger Teilchenbeschleuniger

Tab. 3

Physikalische Eigenschaft	^{15}O	^{13}N
(γ,n)-Schwelle MeV	15.6	10.5
σ_{max} barn	$1.14\cdot 10^{-2}$	$2.84\cdot 10^{-3}$
$t_{1/2}$ min	2.1	10.1
E_{β^+} MeV	1.68	1.24

Physikalische Eigenschaften der Bestandteile des radioaktiven Gasgemisches an Elektronenbeschleunigern

Tab. 4

2. Ergebnisse der Raum- und Abluftüberwachung an niederenergetischen Teilchenbeschleunigern

2.1 Elektronenbeschleuniger

An Elektronenbeschleunigern treten - neben dem inaktiven Ozon - nur die radioaktiven Gase ^{13}N und ^{15}O auf, deren relevante physikalische Eigenschaften in Tabelle 4 zusammengefaßt sind.

In [1] wurde über Messungen berichtet, welche an den Elektronen-Linearbeschleunigern der Universität Yale und des polytechnischen Institutes Rensselaer (RPI) bei Beschleunigungsenergien von 50 MeV, verschiedenen Strahlleistungen und Targetmaterialien, durchgeführt wurden. Die Gleichgewichtskonzentrationen der durch (γ,n)-Reaktionen erzeugten radioaktiven Gase, die in Spalte 5 der Tabelle 5 eingetragen sind, hängen hiernach nicht nur sehr stark von der Strahlleistung, sondern auch vom Targetmaterial ab. Die Messungen wurden in der Nähe der Targets bei abgeschalteter Abluftanlage mit Gasmonitoren (Empfindlichkeit: 0,1 CPM $\hat{=}$ 2.10^{-7} $\mu Ci.cm^3$) durchgeführt. Die Autoren berichten, daß bei abgeschalteter Abluftanlage, wenn also die Verteilung des Gases im wesentlichen durch Diffusion erfolgt, wegen der kurzen Halbwertszeiten sehr starke Konzentrationsgradienten innerhalb der Bestrahlungsräume auftreten. Die höchste in Spalte 5 der Tabelle 5 angegebene Konzentration beträgt 5.10^{-4} $\mu Ci.cm^{-3}$ (Wolframtarget, Strahlleistung 22 kW). Legt man den nach ICRP (siehe Spalte 2 von Tabelle 2) für ^{13}N geltenden MZK-Wert von $2,3.10^{-6}$ $\mu Ci.cm^{-3}$ zugrunde, wird also maximal in Targetnähe etwa das 20-fache der für kurzzeitigen Aufenthalt in Kontrollbereichen zugelassenen Konzentration erreicht.

Beschleuniger	Target	Ort	Strahlleistung kW	Konzentration $\mu Ci \cdot cm^{-3}$
Yale	Al	A	9.0	$5.0 \cdot 10^{-5}$
	Al	A	7.0	bis $8.0 \cdot 10^{-5}$
	Al	A	17.0	bis $6.0 \cdot 10^{-4}$
	Wolfram	A	4.0	$1.6 \cdot 10^{-4}$
	Wolfram	A	22.0	$5.0 \cdot 10^{-4}$
	Analysator	B	0.4	$1.1 \cdot 10^{-5}$
		B	5.0	$4.0 \cdot 10^{-4}$
RPI	Wolfram	A	4.0	bis $5.5 \cdot 10^{-6}$
	Wolfram	A	7.0	$7.5 \cdot 10^{-6}$
	Wolfram	A	23.0	bis $4.0 \cdot 10^{-5}$
	Tantal	B	0.7	bis $2.0 \cdot 10^{-4}$
	Blei	B	4.0	$1.1 \cdot 10^{-5}$

Gleichgewichts-Konzentration radioaktiver Gase an Elektronen-Linearbeschleunigern; Beschleunigungsenergie E_β= 50 MeV

Tab. 5

Berücksichtigt man weiter die Zusammensetzung des radioaktiven Gasgemisches (siehe Tabelle 6) und die Halbwertszeiten der Mischungskomponenten, so ist bei 10-fachem Luftwechsel je Stunde eine Wartezeit von etwa 15 Minuten einzuhalten, ehe der Targetbereich betreten werden darf. Die mittleren Konzentrationswerte in den Bestrahlungsräumen beider Elektronenbeschleuniger liegen wesentlich (etwa um eine Zehnerpotenz) unter den in Tabelle 5 angegebenen Höchstwerten. Daher liegen die maximalen Abluftkonzentrationen, über welche bei [1] keine näheren Angaben gemacht werden, ebenfalls wesentlich tiefer, aber möglicherweise über einem Zehntel der MZK-Werte der Tabelle 2 (ICRP II).

Betriebs-dauer min	Zusammensetzung %	
	^{15}O	^{13}N
10	69	31
40	57	43
50	45	55
60	44,5	55,5

Zusammensetzung des Gemisches radioaktiver Gase an Elektronenbeschleunigern als Funktion der Betriebsdauer

Tab. 6

2.2 Ionenbeschleuniger (Zyklotrons)

Ergebnisse von Raum- und Abluftmessungen an niederenergetischen Ionenbeschleunigern (z.B. Kompaktzyklotrons) sind weder uns noch den Herstellern derartiger Beschleuniger bekannt.

Daher waren wir gezwungen, auf Messungen und Abschätzungen zurückzugreifen, welche am Isochron-Zyklotron des Instituts für Kernphysik der Kernforschungsanlage Jülich [4, 5] durchgeführt worden sind. Die Endenergie der beschleunigten Deuteronen ist mit E_d = 90 MeV wesentlich höher als bei den Kompakt-Zyklotrons (E_d < 20 MeV), jedoch sind die erreichbaren maximalen Ionenströme kleiner als bei diesen (50 µA gegenüber 100 µA).

Am Isochron-Zyklotron Jülich wurde bei E_d = 90 MeV, A_d = 50 µA (Beryllium-Target) mit großvolumigen β-γ-Zählrohren die Sättigungskonzentration von ^{41}Ar gemessen und für ^{13}N, ^{16}N und ^{15}O berechnet (siehe Tabelle 7). Die Meßeinrichtung ist in [6] beschrieben.

Die gemessenen Konzentrationen liegen in der Größenordnung der MZK-Werte der Tabelle 2, jedoch um mehrere Größenordnungen über den nach der Ersten Strahlenschutzverordnung anzuwendenden MZK-Werten.

Nuklid	Sättigungskonzentration µCi ·cm^{-3}		
	Zyklotron-bunker	Targetraum 1	Targetraum 2
^{13}N	$9.0 \cdot 10^{-6}$	$6.0 \cdot 10^{-6}$	$6.0 \cdot 10^{-6}$
^{16}N	$9.0 \cdot 10^{-6}$	$11.7 \cdot 10^{-6}$	$6.5 \cdot 10^{-6}$
^{15}O	$2.2 \cdot 10^{-6}$	$1.5 \cdot 10^{-6}$	$1.5 \cdot 10^{-6}$
^{41}A	$4.5 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-5}$	$3.0 \cdot 10^{-5}$

Maximale Sättigungskonzentrationen in verschiedenen Räumen des KFA-Zyklotrons bei abgeschalteter Abluftanlage

Tab. 7

Nuklid	Wochenemission Ci · w^{-1}	
	Maximalwert	Mittelwert
^{13}N	2.65	1.06
^{16}N	4.31	1.72
^{15}O	0.91	0.36
^{41}A	3.23	1.29

Wochenemissionen aus dem Schornstein des KFA-Zyklotrons E_d= 90 MeV, A_d = 50µA, Be-Target

Tab. 8

Abschätzungen der am Kompakt-Zyklotron CV-28 der Cyclotron-Corporation zu erwartenden maximalen Aktivitätskonzentrationen haben ergeben [7], daß diese Konzentrationen von der gleichen Größenordnung sind wie am Isochron-Zyklotron Jülich. Für die Bestrahlungsräume wurden z.B. ^{41}Ar-Sättigungskonzentrationen von etwa 7.10^{-5} µCi/cm^{-3} berechnet. Die ^{15}O-Komponente fehlt am Kompakt-Zyklotron wegen der hohen Energieschwelle der (n,2n)-Reaktion mit ^{16}O (16,6 MeV). Die mittleren und maximalen Wochenemissionen des Isochron-Zyklotrons Jülich sind in Tabelle 8 enthalten. Die maximalen Abluftkonzentrationen für ^{41}Ar lagen bei 5.10^{-6} µCi.cm^{-3}.

Wenn das Vakuum-System eines Beschleunigers, z.B. des Kompakt-Zyklotrons, nach längerem Betrieb geöffnet werden muß, ist das Wartungspersonal der Gefahr einer möglichen Inhalation von radioaktiven Aerosolen und Staubpartikeln ausgesetzt, welche durch mechanische Abnutzung, Erosion und Verdampfung aktivierter Maschinenteile entstehen und zu einer starken inneren Kontamination des Zyklotrons führen.

In [8] wurde kürzlich über Messungen der Konzentration radioaktiver Aktivierungsprodukte berichtet, welche an einem kleinen Festfrequenz-Zyklotron durchgeführt wurden. Diese Ergebnisse sind in grober Annäherung auch repräsentativ für die an einem Kompakt-Zyklotron vom Typ CV-28 möglichen Atemluft-Kontaminationen, da die Leistungsdaten beider Zyklotrons sowie die Konstruktionsmaterialien vergleichbar sind.

Diese Messungen, deren Ergebnisse in Tabelle 9 zusammengefaßt sind, wurden unmittelbar nach dem Öffnen der Beschleunigungskammer 18 Tage nach Betriebsende des Zyklotrons durchgeführt. Hierbei wurden in der Atemzone des Betriebspersonals mit Aerosol-Sammelgeräten (Luftdurchsatz 15 l . min^{-1}, Millipore-Filter) Luftstaubproben genommen, welche 20 Tage nach der Sammlung mit einem Ge(Li)-Detektor ausgemessen wurden. Tabelle 9 enthält also nur die Konzentrationswerte der längerlebigen radioaktiven Aktivierungsprodukte.

Da Kompakt-Zyklotrons, z.B. das CV-28, wesentlich höhere interne Stromstärken liefert, sollten die Werte in Spalte 4 der Tabelle 9 mit dem Faktor 10 multipliziert werden, damit sie zur Beurteilung der Gefährdung des Wartungs- und Reparaturpersonals beim Öffnen des Vakuumsystems des Beschleunigers geeignet sind.

Nuklid	Halbwert-zeit	Reaktion	Konzentration $\mu Ci \cdot cm^{-3}$	MZK $\mu Ci \cdot cm^{-3}$
^{54}Mn	303 d	Fe(d,αn), Fe(p,α)	$2 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-8}$
^{56}Co	77 d	Fe(d,xn), Fe(p,n)	$3 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-8}$
^{57}Co	271 d	Fe(d,xn), Fe(p,n)	$2 \cdot 10^{-10}$	$6 \cdot 10^{-8}$
^{58}Co	71 d	Fe(d,n)	$4 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-8}$
^{60}Co	5.3 a	$^{63}Cu(n,\alpha)$, $^{60}Ni(n,p)$	$3 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-9}$
^{65}Zn	245 d	Cu(p,n)Cu(d,2n) Cu(α,pn)	$1.4 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-6}$
^{182}Ta	115 d	$^{184}W(d,\alpha)$, $^{182}W(n,p)$	$5 \cdot 10^{-10}$	$7 \cdot 10^{-9}$
^{183}Re	71 d	W(p,xn), W(d,xn)	$\sim 10^{-8}$	$5 \cdot 10^{-8}$
^{185}Os	94 d	W(α,xn)	$3 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$

Konzentration radioaktiver Aktivierungsprodukte an einem Niederenergie-Zyklotron, $E_p < 15$ MeV, $E_d < 18$ MeV, $E_\alpha < 36$ MeV, $A_p < 50$ µA, $A_d < 30$µA, $A_\alpha < 20$ µA

Tab. 9

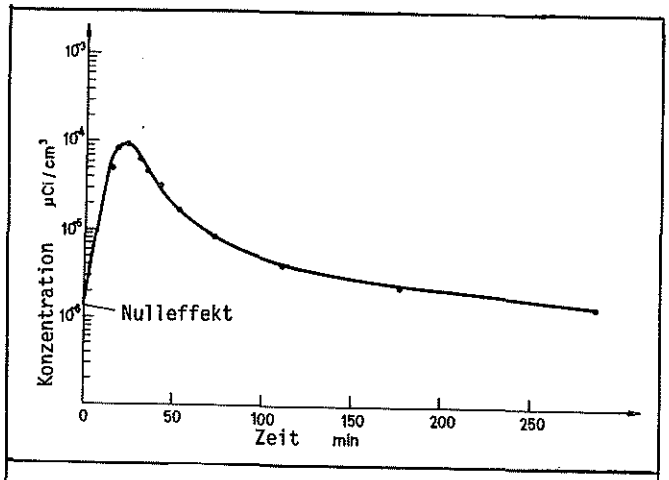
Der Vergleich mit den MZK-Werten in Spalte 5 ermöglicht diese Abschätzung. Der nach § 31 der Ersten Strahlenschutzverordnung zugelassene Konzentrationswert von 10 MZK wird nur im Falle des ^{185}Os geringfügig überschritten.

2.3 Neutronengeneratoren (15 MeV-Neutronengenerator)

Im Institut für Nuklearchemie der Kernforschungsanlage JÜlich wird im Kellergeschoß ein Neutronengenerator (Kaskaden-Generator Dynagen der Firma Radiation Dynamics mit einer maximalen Beschleunigungsspannung von 300 kV und einer maximalen Ionenstromstärke von etwa 10 mA) betrieben, mit welchem schnelle Neutronen mit einer Energie von etwa 15 MeV erzeugt werden. Hierbei wird aus dem Tritium-Target gasförmiges Tritium freigesetzt, welches in das Vakuumsystem des Generators und über die Vakuumpumpen in das Abluftsystem gelangt. Die maximale Tritiumaktivität der Targets liegt bei 100 Ci. Aufgrund der Ergebnisse der von uns durchgeführten kontinuierlichen AbluftÜberwachung kann damit gerechnet werden, daß etwa 70 % der ursprünglich vorhandenen Tritiumaktivität in die Abluft freigesetzt werden.

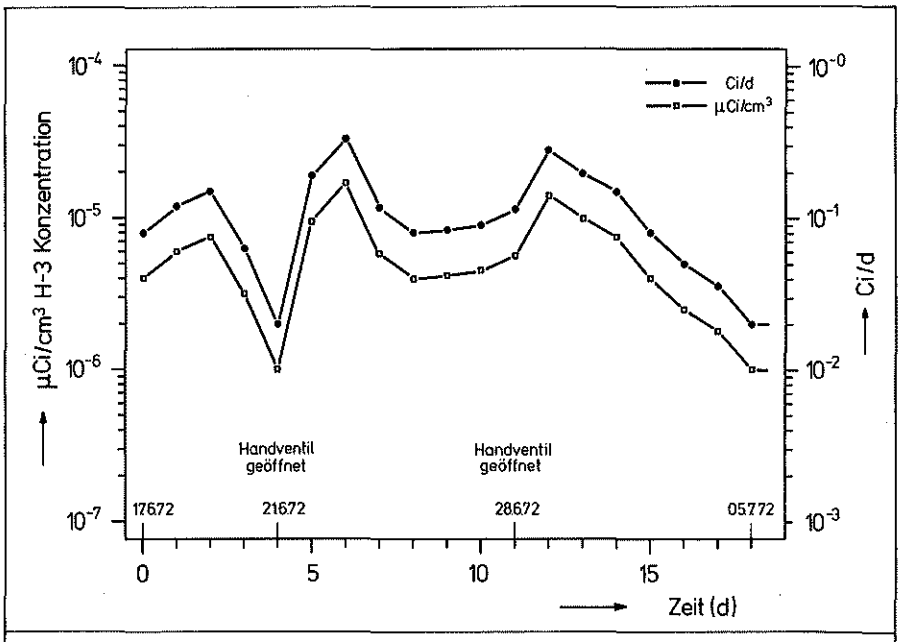
Insbesondere beim Targetwechsel werden größere Mengen Tritium an die Umgebung abgegeben. Deshalb wird jeder Targetwechsel besonders überwacht. Kürzlich wurde nach einer Betriebszeit von 47 Stunden ein Target gewechselt, welches ursprünglich eine Tritiumaktivität von 78 Ci hatte.

Beim Öffnen des Vakuumsystems trat erwartungsgemäß gasförmiges Tritium aus. In Abb. 1 sind die Tritiumkonzentrationen in der Luft des Beschleunigerraumes gegen die Zeit aufgetragen. Die Konzentration erreicht maximal etwa 10^{-4} $\mu Ci/cm^{-3}$ zu Beginn des Targetwechsels und damit etwa das 50-fache des Normalwertes, jedoch konnte sie durch die Anordnung eines LÜftungsschachtes über dem Targetbereich auf das fünffache des für kurzzeitige Exposition festgelegten Wertes beschränkt werden.



Tritium-Kontamination der Luft im Beschleuniger-Raum
während eines Targetwechsels
Ursprüngliche Aktivität des Targets: 80 Ci

Abb. 1



Tritium-Konzentrationswerte (untere Kurve)
und tägliche Tritium-Emissionen (obere Kurve) im Abluftschornstein
des Neutronengenerators Dynagen

Abb. 2

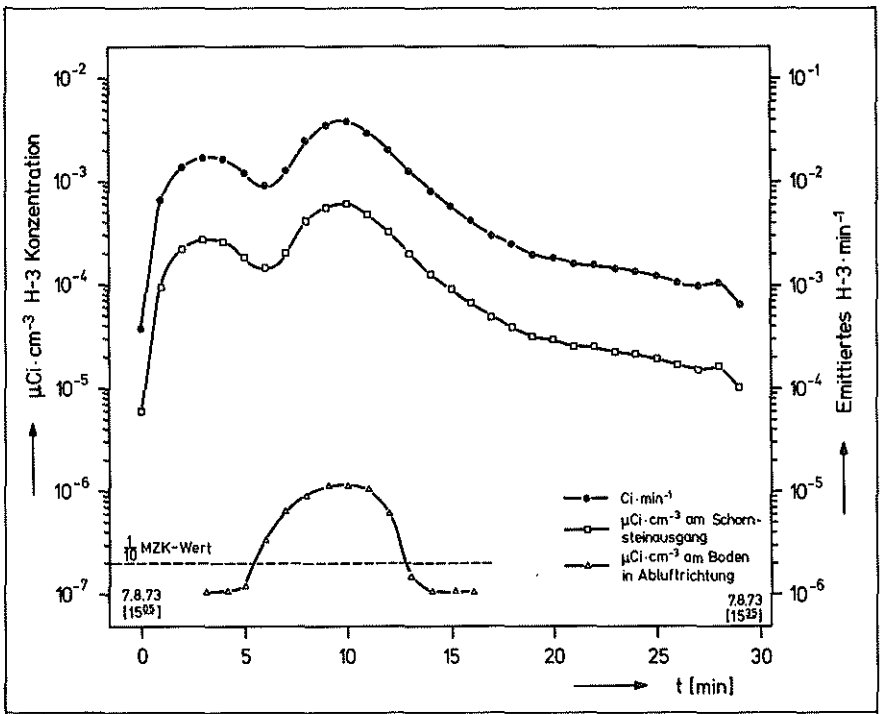
Die mit Tritium kontaminierte Raumluft und die Abluft der Vorvakuumpumpe wird in die Abluftanlage des Neutronengenerator-Laboratoriums (Abluftmenge: 830 $m^3.h^{-1}$) eingeleitet und mit der Abluft zweier weiterer Laboratorien verdünnt (Abluftmenge insgesamt: 3830 $m^3.h^{-1}$). Die Gesamtabluft wird über einen zusätzlich errichteten, 6 m über das Dach des Institutes für Nuklearchemie sich erhebenden Abluftschornstein abgegeben.

Im Abluftschornstein wurde eine Tritiummeßstelle eingerichtet, mit welcher die Tritiumkonzentration der Abluft kontinuierlich gemessen wird. Die Meßstelle ist ausgerüstet mit dem Tritiummonitor LB 106 K der Firma Berthold.

Die Ergebnisse der Emissionsmessungen bei Normalbetrieb enthält Abb. 2. Die täglichen Tritiumabgabe liegen - je nach Betriebszustand des Neutronengenerators - zwischen 20 und 200 mCi. Die Anmerkung "Handventil geöffnet" in Abb. 2 markiert den Beginn einer neuen Betriebsperiode des Neutronengenerators.

In Abb. 2 sind weiterhin die Konzentrationswerte im Schornstein eingetragen. Die höchsten Konzentrationswerte liegen bei etwa 2.10^{-5} $\mu Ci/cm^{-3}$ bei Normalbetrieb.

In Abb. 3 sind die Ergebnisse von Messungen angegeben, welche während eines Targetwechsels durchgeführt wurden.



Ergebnisse der Emissions- und Immissionsmessungen am Neutronengenerator Dynagen
Minütliche Tritium-Emission (obere Kurve), Tritium-Konzentrationswerte am Schornsteinausgang (mittlere Kurve) und Tritium-Immission am Erdboden (untere Kurve)

Abb. 3

Die oberste Kurve zeigt die minütlichen Tritium-Abgaben, die mittlere Kurve den Konzentrationsverlauf. Der Höchstwert der Tritium-Abgabe betrug etwa 40 mCi pro Minute, die Gesamtabgabe etwa 290 mCi. Der Höchstwert der Konzentration am Schornsteinausgang betrug 6.10^{-4} µCi/cm^3, also das 3000-fache des zulässigen Wertes von 2.10^{-7} µCi/cm^3.

In Abb. 3 sind weiterhin die Ergebnisse von Immissionsmessungen angegeben, welche bei Westwind und einer Windgeschwindigkeit von 7 m/s in 50 m Abstand von der Emissionsstelle am Erdboden durchgeführt wurden (Diffusionskategorie D).

Die Immissionsmessungen wurden mit dem tragbaren Tritiummonitor TMH 2 der Firma Münchener Apparatebau Kimmel KG durchgeführt.

Der 1/10 MZK-Wert für Tritium (2.10^{-7} µCi/cm^3) wurde etwa 7 Minuten lang um maximal das Fünffache, der der Dauerbelastung nicht beruflich strahlenexponierter Personen (30 mrem/a) entsprechende Konzentrationswert um das maximal Achtzigfache überschritten.

Trotz der beträchtlichen Oberschreitungen der zulässigen Konzentrationswerte am Schornsteinausgang ist die Immissionsbelastung am Erdboden jedoch sehr gering (< 0,1 mrem).

Bei den Neutronengeneratoren mit Tritium-Target steht die Gefährdung von Mitarbeiter und Umgebung durch Tritium weit im Vordergrund. Dennoch ist es von Interesse, die Konzentration der durch die schnellen Neutronen aktivierten Luftbestandteile in der Raumluft zu kennen. Für den Neutronengenerator Dynagen der Kernforschungsanlage Jülich haben wir die Gleichgewichtskonzentration der radioaktiven Gase in der Luft des Beschleunigerraumes (Raumvolumen: 60 m^3) berechnet (siehe Tabelle 10). Das wichtigste Nuklid ist ^{13}N mit einer Halbwertszeit von etwa 10 Minuten.

Nuklid	Halbwert-zeit	Reaktion	Wirkungs-querschnitt barn	Konzentration µCi · cm^{-3}
^{13}N	10.1 min	$^{14}N(n,2n)^{13}N$	0.007	$2 \cdot 10^{-5}$
^{16}N	7.3 s	$^{16}O(n,p)^{16}N$	0.045	$3 \cdot 10^{-5}$
^{37}S	5.1 min	$^{40}A(n,\alpha)^{37}S$	0.002	$3 \cdot 10^{-8}$
^{41}A	1.8 h	$^{40}A(n,\gamma)^{41}A$	0.350	$2 \cdot 10^{-6}$
Gleichgewichts-Konzentration radioaktiver Gase in der Luft des Beschleunigerraumes des 14 MeV-Neutronengenerators Dynagen bei abgeschalteter Abluftanlage; $S_n = 2 \cdot 10^{11}$ s^{-1}				

Tab. 10

Die Sättigungskonzentration ohne Lüftung des Raumes entspricht etwa dem Zehnfachen des MZK-Wertes nach ICRP [1] (siehe Tabelle 2). Deshalb darf der Beschleunigerraum unmittelbar nach Abschaltung des Neutronengenerators betreten werden.

3. Literatur

[1] George, A.C. et al.: Proc. USAEC First Symposium on Accelerator Radiation Dosimetry and Experience, CONF. 651109, p. 513 (1965)

[2] Rindi, A. and Charalambus, St.: Nuclear Instruments and Methods, 47, 227 (1967)

[3] Höfert, M.: Proc. 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Berlin (Mai 1969)

[4] Mayer-Böricke, C. et al.: Annual Report 1972, KFA-IKP 10/73

[5] Probst, H.J.: Private Mitteilung, KFA Jülich, Institut für Kernphysik (1972)

[6] Probst, H.J.: GIT-Fachzeitschrift für das Laboratorium, Heft 6 (Juni 1970)

[7] Sauermann, P.F.: Interner Bericht, KFA Jülich (1973)

[8] Kitao, K. and Ohata, T.: Health Physics, 21, 475 (1971)

[9] Porschen, W. und Mühlensiepen, H.: Interner Bericht, KFA Jülich, Institut für Medizin (1970)

[10] Beyer, D. et al.: Proc. 6. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Karlsruhe (Mai 1972)

[11] Sauermann, P.F. et al.: Interner Bericht, KFA Jülich (1973)

DISKUSSION (Niederschrift nach Tonbandaufzeichnung)

VON RÖNNE: Herr Sauermann, Sie sprachen von 70 % Tritiumfreisetzung aus Ihren Tritiumtargets. Darf ich fragen, welche Ionenenergie Sie dabei hatten?

SAUERMANN: 300 keV.

JACOBI: Herr Sauermann, Sie erwähnten vorhin die Notwendigkeit, die MZK-Werte für die Immersionsdosis nicht auf unendlich ausgedehntem Halbraum, sondern auf begrenzte Räume festzulegen. Ich wollte Ihnen dazu nur sagen, daß die ICRP bei ihren zukünftigen Empfehlungen solche Korrekturfaktoren für begrenzte Halbräume auch angibt. Es wird also zunächst einmal der Wert für den unendlich ausgedehnten Halbraum angegeben und zusätzlich für die einzelnen Radionuklide Korrekturfaktoren für Halbräume mit bestimmtem Radius.

JACOBS: Können Sie schon etwas über die Größe dieser Faktoren sagen?

JACOBI: Nein, tut mir leid.

FESTAG: Ich habe noch eine Bemerkung zu dieser Tabelle von den Japanern, die Sie zeigten. Dort waren praktisch Aktivierungsprodukte von den Beschleunigerteilen angegeben. Wenn Sie

jetzt auf die Kompakt-Zyklotrons mit den höheren Stromstärken zu sprechen kommen, müssen Sie damit rechnen, daß Sie - wenn Sie das Vakuumsystem öffnen - alles das nachher finden, was Sie einmal bestrahlt haben. Ich kann Ihnen aus eigener Erfahrung da gewisse Hinweise geben, daß wir in einem kleinen Zyklotron beim Aufmachen dann Sachen gefunden haben, die wir uns nicht erklären konnten. Wir sind dann einmal das Logbuch durchgegangen und dann war es sehr schön klar, daß wir Arsen von der Germanium-Bestrahlung, die ein paar Tage vorher war, gefunden hatten. Wir haben ebenso Wismuth gefunden, das kam von einer Pilebestrahlung. Mit diesen Dingen müssen Sie dann rechnen. Ich kann Ihnen im Moment keine quantitativen Angaben darüber machen.

TOLKSDORF: Geht die ICRP auch von der Empfehlung herunter, daß bei Edelgasen, deren mittlere Dosis ß-Energie größer als 100 keV ist, der Gesamtkörper als kritisches Organ zu nehmen ist?

JACOBI: Die ICRP gibt einmal Werte für die mittlere Hautdosis an, das ist die mittlere im Bereich zwischen 0 und 100 $\mu g/cm^2$ und zweitens die mittlere Körperdosis, bezogen auf den Standard-Menschen. Das letztere wäre also im wesentlichen die β- und γ-Dosis, gemittelt über den ganzen Körper einschließlich des gelösten Anteils.

KÖNIG: Ich habe eine Frage zu den Radionukliden, die durch äußere Bestrahlung wirksam werden: Was ist eigentlich der Nutzeffekt von maximal zulässigen Konzentrationen und was ist der Nutzeffekt von Korrekturfaktoren? Nützt es wirklich etwas, Korrekturfaktoren anzubringen, weil ja schließlich die Dosis, die auf dem Dosimeter ist, zählt. Und man sollte doch sehr wohl darauf bedacht sein, daß - wenn eine Konzentration dauernd herrscht - am Ende der Woche nun nicht die zugelassenen 100 mrem/Woche durch Luftkontamination ausgeschöpft sind.

JACOBI: Ich würde auch sagen: Bezüglich der γ-Strahlung ist die Dosismessung das Entscheidende. Aber wir haben ja eben auch ß-strahlende Edelgase und die Messung der ß-Dosis ist ja mit dem Personendosimetern nicht vernünftig möglich, und in den Fällen ist es zweckmäßig, die Konzentration oder - noch besser - das Zeitintegral der Konzentration zu ermessen.

KÖNIG: Ich meine doch, daß im Laufe der Zeit die ß-Dosis-Messung Routine wird. Wir führen hier ja auch täglich ß-Messungen durch. Dies geht eigentlich recht gut, wenn man gleichzeitig mit Glasdosimetern und Thermolumineszenzdosimetern Dosen mißt oder auch zwei Thermolumineszenzdosimeter benutzt, eines abgedeckt mit 500 mg/cm^2 Plexiglas und das andere nicht abgedeckt. Ich kann mir vorstellen, daß in einigen Jahren doch die ß-Dosimetrie unproblematisch ist.

DE RAS: Ich möchte Sie fragen: Wie, glauben Sie, kommt das Tritium, das aus den Targets diffundiert, vor? Als freies Tritium oder gebunden an Wasserdampf oder vielleicht absorbiert an Titanteilchen? Für die Bestimmung der maximal zulässigen Werte geben die ICRP und die Strahlenschutzverordnung Werte für freies und gebundenes Tritium an, aber nicht für Tritium gebunden an Titanteilchen.

SAUERMANN: Wenn das Tritium an Titanteilchen gebunden wäre, dann würde es im Targetgehäuse zurückbleiben. Wir haben dort Wischproben genommen, sie aber nicht nach dieser Frage ausgewertet. Wir haben sie nur auf Tritiumaktivität ausgewertet und haben da Wischproben bis zu 55 mCi festgestellt. Das Tritium, das wir oben am Kamin messen, ist sicher Gas mit vielleicht ganz geringen Prozentsätzen an HTO. Wir haben durch Wischproben in unseren Räumen festgestellt, daß das Tritium mit der Schmiere, die auf der Wand ist in so einem Generatorraum nach einem halben Jahr in Betrieb, austauscht. Man kann das Tritium aus einer Wischprobe gewinnen, aber das ist sicher nur ein kleiner Prozentsatz des Gesamttritiums.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

ABSCHLUSSDISKUSSION - 1. TAG (LEITUNG: H. JACOBS)

JACOBS: Wir haben heute morgen von Herrn Jacobi gehört, daß nach den neuen ICRP-Vorstellungen im Hinblick auf den Menschen nicht mehr die Konzentrationen in Luft und Wasser interessieren, sondern nur noch die inkorporierten Aktivitäten. Um nun die Diskussion einzuleiten, könnte man einmal ganz kühn die These aufstellen: Die bisherigen Raumluftüberwachungsgeräte sind nicht geeignet, Aussagen über die vom Menschen inkorporierte Aktivität zu machen. Das können allenfalls die kleinen tragbaren "personal air samplers", die der Beschäftigte in der Brusttasche trägt und mit denen in Mundnähe die gleiche Luftmenge durch Filter gesaugt wird, wie sie der Träger einatmet. Man wertet die Filter von Zeit zu Zeit aus und kommt damit zu einer guten Abschätzung der inkorporierten Aktivität.-Das hieße also: Weg mit den herkömmlichen Luftüberwachungsgeräten! Ich stelle diese These in den Raum.

SCHWIBACH: Es kann sich ja nur auf Aerosole beziehen, also dann würde ich sagen: Weg mit den Aerosolen!

KÖNIG: Ich muß sagen, daß ich Ihnen außerordentlich dankbar bin für diese These, die Sie in den Raum gestellt haben. Ich bin durchaus der Meinung, daß - wenn man in Zukunft nur noch die jährliche Aufnahme von Radioaktivität zu messen hat - man dann in vielen Fällen gar nicht mehr sehr hoch entwickelte Aerosolüberwachungsanlagen braucht, einfach, weil die augenblickliche Aerosolüberwachung doch vielfach Selbstbetrug ist. Ich habe hier schon einmal behauptet, daß man immer nur einen kleinen Teil eines Raumes überwacht. Man kann sich z.B. einmal die Frage stellen: Was muß man eigentlich tun, wenn man ein vorgegebenes Labor zu überwachen hat? Soll man nun in dieses Labor - um eine Zahl zu nennen - z.B. fünf Pseudokoinzidenzanlagen hineinstellen, um nun den ganzen Raum tatsächlich überwachen zu können? Ich glaube, daran kann niemand ernsthaft denken. Schon von dieser Seite her betrachtet, glaube ich, daß es sich lohnt, die Überwachungsphilosophie zu überdenken. Zum anderen, das wolle ich morgen vortragen, haben wir die Beobachtung gemacht, daß sehr viele Inkorporationen unter der Nachweisgrenze der kontinuierlichen Luftüberwachung stattfinden. Das bedeutet aber, daß uns bei sehr vielen Inkorporationen unsere Anlagen gar nichts genutzt haben. Aber ich will diese Diskussion nicht alleine bestreiten.

JACOBS: Wir haben vorhin den Vortrag von Herrn Maushart gehört. Ich möchte ihn jetzt fragen: Möchte er als Vertreter der Industrie sprechen oder als der Strahlenschützer Maushart?

MAUSHART: Natürlich als beides, denn das ist sehr schwer zu trennen. Ich wollte gerade sagen, ich kämpfe ja an einer ganz anderen Front und möchte deshalb auch ein paar andere Gesichtspunkte zur Debatte stellen. Provokativ formuliert: Wollen Sie Ihre personal air samplers dann auch all den Leuten umhängen, die in der Umgebung des Kernkraftwerks wohnen? Wir müssen hier, glaube ich, sehr stark unterscheiden zwischen der Raumluft-, also der Arbeitsplatzüberwachung, der Überwachung der Beschäftigten, und der Abluftüberwachung. Ich glaube, es wird niemand ernsthaft bestreiten, daß die Abluftüberwachung auch in Zukunft notwendig sein wird und in vielen Fällen ist die Abluft- und die Raumluftüberwachung wieder nicht ganz so scharf zu trennen, denn die Abluft kommt ja aus einem Raum. Die Abluftüberwachung stellt in irgendeiner Form nun doch eine Raumluftüberwachung dar, man wird vielleicht mit dem personal air sampler sehr viel Ergänzendes und Verbesserndes tun können, aber ich möchte bestreiten, daß ein kompletterer Satz auch bei der Beschäftigung in dieser Gesamtluftmessung möglich ist.

JACOBS: Wenn das erste eine Frage an mich war: Ich wollte natürlich nur von der Atemluft der Beschäftigten innerhalb eines Labors oder innerhalb einer Anlage sprechen, selbstverständlich nicht von der Umgebung. Ich würde sowieso ganz gerne bei diesem Kolloquium getrennt haben zwischen Raumluft (= Atemluft der Beschäftigten) und Abluft, denn für mein Gefühl ist es doch etwas Verschiedeneres, als hier zum Ausdruck kommt. Die Abluft, zumindest in Laboratorien, setzt sich ja zusammen aus der Atemluft und aus der Luft aus Glove-Boxen und Abzügen und ich glaube nicht, daß man da mit Ergebnissen der Abluftüberwachung überhaupt etwas Sinnvolles über die Atemluftkonzentration sagen kann.

SCHWIBACH: Es scheint also bei der oberflächlichen Betrachtung so zu sein, daß das, was aus dem Kamin der meisten Anlagen herausgeht, umgerechnet ziemlich genau MZK-Wert "Betriebsräume" ergibt.

JACOBI: Ich glaube, man sollte jetzt Ihre provokative Frage auch wieder unter zwei Gesichtspunkten betrachten und nicht das Kind mit dem Bade ausschütten. Im Normalfall will man über die Inhalationsbelastung des Beschäftigten oder über die Gesamtemission in der Abluft über eine längere Zeit bilanzieren. Im Störfall wird Aktivität in einen Raum freigesetzt und die dort Beschäftigten müssen gewarnt werden. Im letzteren Fall braucht man in jedem Fall einen kontinuierlichen Monitor, der so schnell wie möglich ein Warnsignal gibt, d.h. man muß ein direkt anzeigendes Instrument haben und dasselbe gilt natürlich auch für die Abluftüberwachung. Dort braucht man auch für die Emission einen Monitor, der direkt anzeigt und Alarm gibt. Aber gerade für die Bilanzierung - und das gilt sowohl für die Beschäftigten als auch für die Emissionsüberwachung als auch für die Umgebungsüberwachung - da sollte man doch, glaube ich, mehr auf integrierende Meßgeräte zurückgreifen. Und da gibt es nun zwei Möglichkeiten oder zwei Fälle wiederum: Einmal, wenn man langlebige Radionuklide hat, da braucht man nicht unbedingt einen integrierenden Detektor über dem Filter anzuordnen, sondern kann das Filter später ausmessen. Bei kurzlebigen Radionukliden sollte man dagegen direkt über dem Filter einen integrierenden Detektor anbringen, sei es z.B. eine fotografische Folie bei β-Strahlern oder ein Thermolumineszenzmaterial oder ein Glas oder bei α-Strahlern ein Zellulose-Acetat-Film, um die α-Spuren später direkt auswerten zu können. Also, man muß immer unterscheiden: Normalfall-Bilanzierung oder Warnung im Störfall.

KÖNIG: Ich stimme natürlich vollständig mit Herrn Maushart überein, daß die Abluft mit den besten zur Verfügung stehenden Monitoren überwachung werden muß. Und ich gehe noch einen Schritt weiter und behaupte, daß es sogar nützlich ist, die Aerosolfilter aus Abluftüberwachungsanlagen nochmals mit langen Meßzeiten, vielleicht auch mit Autoradiographie, nachträglich auszumessen, um die Nachweisgrenze weiter zu senken. Was aber die Luftüberwachung im Labor angeht, möchte ich doch zu bedenken geben, daß man sich in der Praxis vielfach gar nicht auf die Luftüberwachungsanlagen verlassen kann. Wenn ich weiß, daß in einem Raum ein Zwischenfall stattgefunden hat und daß der Raum kontaminiert ist, würde ich niemals eine Luftstaubmessung machen, um allein anhand dieser Messung zu entscheiden, ob in dem Raum mit oder ohne Atemschutz gearbeitet werden darf. Ich muß ja damit rechnen, daß die Leute, die den Raum betreten, Aktivität aufwirbeln und daß dann die Konzentration eine ganz andere ist. Das aber erfahre ich erst nachträglich aus den Ausscheidungsmessungen. Also das scheint mir wiederum ein Gesichtspunkt zu sein, um an dem Nutzen der kontinuierlichen Aerosolüberwachung in einem Labor zu zweifeln.

DOBIASCH: Herr Dr. König, das widerspricht sich aber nun etwas. Auf der einen Seite sagen Sie, Sie wollen eine integrierende Gesamtmessung. Sie wollen feststellen, welche Dosis der arbeitende Mann dort bekommt. Auf der anderen Seite sagen Sie aber, daß Sie den Raum nicht betreten lassen würden mit entsprechenden Schutzmaßnahmen. Sie setzen also voraus, daß Sie wissen, daß ein Ereignis eingetreten ist. Ich bin der Meinung, daß man unterscheiden sollte zwischen Monitoren und Warngeräten. Warngerät heißt, daß es das Ereignis oder kurz nach dem Eintritt eines Ereignisses eine Meldung abgibt. Man sollte diese niemals irgendwie zur Bilanzierung heranziehen.

KÖNIG: Zum Thema Warnung muß ich sagen, nach unserer Erfahrung, die ich natürlich nur für das Kernforschungszentrum Karlsruhe formulieren kann, erhalten wir Warnungen, daß irgendwelche Ereignisse stattgefunden haben, die zu Kontaminationen geführt haben, auf eine andere Weise - nämlich durch die Oberflächenkontaminationsüberwachung. Spätestens wenn ein Mann einen Kontaminationsmonitor betritt, aber auch u.U. auch früher durch das Ansprechen eines Großflächenzählers, der in dem betreffenden Raum vorhanden ist, erfahren wir, daß eine Kontamination stattgefunden hat. Unsere Erfahrung sagt eindeutig, daß wir die Warnung auf diese Weise immer ungleich früher erhalten haben als durch die Luftüberwachungsanlagen. Wir haben schon Zwischenfälle erlebt, bei denen ganze Labors gleichmäßig mit Aktivität bedeckt waren, aber der kontinuierliche Monitor, der in dem Labor gestanden hat, hat den Vorfall überhaupt nicht bemerkt.

JACOBS: Ich möchte das unterstützen, Herr König. Wir haben bei uns in Jülich einen Bereich, in dem festinstallierte, kontinuierlich arbeitende Luftüberwachungsanlagen vorhanden sind. Der Strahlenschutzverantwortliche, den ich um seine Erfahrungen mit diesen Anlagen bat, hat mir gesagt: "Wir vergewissern uns, daß die Anlagen funktionieren. Aber gewarnt werden wir vom Hand-Fuß-Monitor, der ständig eingeschaltet ist, entweder durch die Direktstrahlung oder über die Kontamination von Schuhen und Kleidung". Ich meine, das deckt sich mit Ihren Erfahrungen, Herrn König.

NARROG: Ein Teil meiner Ausführung wurde jetzt schon vorweggenommen, aber ich wollte doch zu bedenken geben, selbst wenn so ein Monitor nicht immer seinen Zweck erfüllt und selbst wenn man es meistens an anderen Stellen eher merkt, so dürfte doch in einigen Fällen auch dieser Kontaminationsmonitor seinen wahren Zweck erfüllen. Und kann man nun ganz darauf verzichten, auch in diesen Fällen die Warnung zu erhalten? Wenn man ihn ganz ausließe, hätte man zweifellos wieder eine Verminderung der Sicherheit, das ist doch wohl kaum abzustreiten, meine ich. Aber, wie gesagt, das steht ja hier zur Diskussion. Ich bin jedenfalls der Auffassung, daß das eine gewisse Verminderung der Sicherheit bedeuten würde.

EDELHÄUSER: Ich möchte das gleiche unterstreichen wie Herr Narrog. Es ist sicher, es haben schon sehr kuriose Störfälle stattgefunden, bei denen aerosolbedingte Freisetzungen über Kontaminationsmonitoren oder über Hand-Fuß-Monitoren festgestellt wurden. Ich würde aber daraus noch nicht den Schluß ziehen, daß man deswegen auf eine kontinuierliche Raumluftüberwachung auf Aerosole und auch auf eine entsprechende Abluftüberwachung verzichten kann. Im übrigen möchte ich zum allgemeinen Trend der Diskussion vorschlagen, um die Gefahr der Mißverständnisse zu verringern, daß man zwischen dreierlei Arten der Oberwachung unterscheiden sollte: dem personal monitoring, der Arbeitsplatzüberwachung und der Umgebungsüberwachung. Man sollte die beiden Begriffe Personenüberwachung und Arbeitsplatzüberwachung nicht so sehr durcheinanderwerfen und ich bin durchaus der Meinung, daß insbesondere die Arbeitsplatzüberwachung durch Messungen im Gesamtableitungskanal, wie es Herr Dr. König heute vormittag bei der Begrüßung auch schon erwähnt hat, durchaus eine Methode ist, um einen Mittelwert über die Aktivitätskonzentration in einem gesamten Raum zu bekommen. Und ich würde den Vorzug insofern in

dieser Methode sehen, als das personal monitoring sich nur mit einer kontinuierlichen Probenahme, aber erst mit nachträglicher, möglicherweise erst 24 Stunden späterer Auswertung dieser Probe sich befaßt.

DOBIASCH: Ich glaube, bei den meisten Aerosolmonitoren ist doch der Fehler, daß es eine Maximumsschwelle gibt, d.h. also, daß man eine zu lange Zeit warten muß oder vergeblich wartet, bis irgendein Alarm kommt. Es ist doch nur eine Frage, welches Kriterium ich zum Warnen anziehe, z.B. die Anstiegsgeschwindigkeit. Ich glaube, daß das der Fall war, den Herr Dr. König vorhin angesprochen hatte, daß die Aerosolmonitoren nichts von dem Ereignis bemerkt haben, nur die Kontaminationsmonitoren, weil vielleicht die Maximumsschwelle zu hoch war.

KÖNIG: Ich möchte gerne eine direkte Frage an das Auditorium stellen, nämlich, ob unter den hier anwesenden Praktikern einer dabei ist, der einmal eine Warnung durch einen Aerosolmonitor bekommen hat und vorher nicht auf andere Weise davon erfahren hatte, daß in seinem Labor etwas nicht in Ordnung ist?

JAHN: Wir zum Beispiel. In der Reaktorhalle bei uns sind die Verhältnisse, meine ich, verhältnismäßig günstig; erstens wird die Luft dauernd umgewälzt. Wir haben einen sehr großen Luftdurchsatz und ich kann also nur bestätigen, daß also die ersten Warnungen - wir überwachen ja Aerosole, Argon und Tritium - von uns immer von den Luftüberwachungsanlagen gekommen sind. In ganz großen Ausnahmen höchstens bei örtlichen echten Kontaminationen vom Monitor draußen. Aber wenn irgendetwas los war, eine Undichtigkeit eines Experimentes oder am Reaktor selbst, dann hat als erstes der Aerosolmonitor angesprochen, der allerdings wirklich einen sehr niedrig liegenden Grenzwert hat - er liegt ungefähr um den Faktor 2,5 oberhalb des in der Halle befindlichen Normalwertes. Und diese Geräte geben sofort akustische und optische Warnungen an den Reaktoroperateur, und das oft, der Tritiummonitor sowieso, der Argonmonitor auch. Diese Informationen erhalten wir jedenfalls, nach meinen Erfahrungen, zuerst in der Halle von der Luftüberwachung. Also ich kann eigentlich das umgekehrte bestätigen, ohne daß ich sagen möchte, daß das andere nicht richtig ist. Ich glaube, es hängt einfach zusammen, um welche Anlage es sich handelt.

JACOBS: Herr Jahn, ich hatte meine These auf Laboratorien bezogen und Herrn Königs Frage, so habe ich ihn verstanden, war auch auf Laboratorien bezogen.

JAHN: Also pauschal kann man sicher überhaupt keine Antwort geben, da diskutieren wir heute abend noch. Es kommt wirklich darauf an, daß ich betrachte, welche Verhältnisse vorliegen. Also, ich würde nicht sagen können, man erhält die ersten Informationen über Kontaminationen - ob es nun Luftkontaminationen oder Oberflächenkontaminationen sind - grundsätzlich über die Hand-Fuß-Kleider-Monitoren oder man bekommt die ersten Informationen über die Luft, es hängt wirklich sehr von den Verhältnissen ab. Ich möchte auf die Luftüberwachung keinesfalls verzichten.

SCHULZE-PILLOT: Ich kann das eigentlich auch bestätigen. Ich möchte sagen, wir sind da mitten in einer Abschlußdiskussion, zu der wir morgen noch eine ganze Menge Beiträge bekommen, die in dieser Richtung liegen. Das kann man im Augenblick noch gar nicht abschliessend diskutieren.

JACOBS: Unsere Zeit nähert sich sowieso nun dem Ende. Herr Jacobi, wir hatten versucht, das Kind mit dem Bade auszuschütten. Es ist ganz erfreulich, daß es uns nicht gelungen ist, aber ich glaube, es sind doch einige Denkanstöße gekommen, zumindestens - und das

war mein Anliegen - beschränkt auf den normalen Laboratoriumsbereich. Da scheint es mir doch so, daß wir unsere Situation kritisch überdenken sollten, ob wir da mit den vorhandenen und bis heute praktizierten Methoden eigentlich ganz richtig liegen.

(Niederschrfit der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

RAUM- UND ABLUFTÜBERWACHUNG IN WIEDERAUFARBEITUNGS-ANLAGEN ODER SONSTIGEN GROSSTECHNISCHEN ANLAGEN

L. FINSTERWALDER
GESELLSCHAFT ZUR WIEDERAUFARBEITUNG VON
KERNBRENNSTOFFEN MBH, KARLSRUHE

Zusammenfassung

Der Beitrag beschreibt das in der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) angewandte System der Raum-, Abluft- und Abgasüberwachung. Nach einer Darstellung der angewandten Meßprinzipien wird über Betriebserfahrungen berichtet und Anregungen für künftige Neuinstallationen gegeben.

1. Einleitung

In Wiederaufarbeitungsanlagen werden abgebrannte Brennelemente von Kernreaktoren nach mechanischem und chemischem Aufschluß in verwertbare Produkte und Abfälle getrennt. Man hat es daher mit einem breiten Spektrum radioaktiver Stoffe zu tun. Neben Uran mit den Transuranelementen Neptunium, Plutonium, Americium und Curium, die als α-Strahler besonders niedrige zulässige Grenzkonzentrationen aufweisen; dann mit der Gruppe der Spaltprodukte, bei denen besonders die flüchtigen wie Krypton, Jod, Ruthen, Tritium für die Luftüberwachung von Bedeutung sind; schließlich sind noch die aktivierten Strukturmaterialien und die an den Brennelementen haftenden aktivierten Korrosionsprodukte zu erwähnen. Die Tabelle gibt eine Vorstellung über die Konzentration einiger Nuklide in typischen LWR-Brennstoffen mit ca. 180 Tagen Kühlzeit.

Tabelle "Konzentration einiger Nuklide in Ci/t in typischen LWR-Brennstoffen mit 180 Tagen Kühlzeit

Nuklid	Aktivitätskonzentration Ci/t
Kr-85	11 000
H - 3	700
J-131	2
J-129	0,04
Sr-90	$8 \cdot 10^4$
Cs-134/137	$3 \cdot 10^5$
Pu	$2 \cdot 10^5$
Am-Cm	$5 \cdot 10^4$

2. Luftüberwachung

Die Luftüberwachung in Wiederaufarbeitungsanlagen dient mehreren Funktionen:

1. der Überwachung der MZK-Werte in Arbeitsräumen
2. der Überwachung der an die Umwelt abgegebenen Aktivitäten
3. der Überwachung der Integrität normalerweise nicht zugänglichen Prozeßeinheiten.

Die Überwachung wird mit beweglichen u. fest installierten Geräten durchgeführt. Die fest installierten Geräte sind an strategischen Punkten im Lüftungssystem angeschlossen und mit Meßeinrichtungen für die dort zu erwartenden Nuklide oder Nuklidgruppen ausgerüstet.

Zum besseren Verständnis der strategischen Punkte ist es notwendig, kurz auf das Lüftungssystem in der Anlage einzugehen. Die gefilterte Zuluft wird in mehreren parallelen Strängen durch mehrere abgestufte Unterdruckzonen geführt. Geordnet nach dem Kontaminationspotential durchströmt die Luft Verkehrswege, Arbeitsräume, Interventionszonen und schließlich die Prozeßzellen. Von dort wird die Luft über die Filterbänke abgesaugt und über den Abluftkamin abgegeben. Die Prozeßapparaturen hängen an getrennten Systemen, die einen Teil ihrer Zuluft aus den Prozeßzellen erhalten. Es sind dies das Auflöserabgassystem und das Prozeßabgassystem. Die Abgase, die nach der Reinigung mit Wäschern und Absolutfiltern die gesamten Spaltedelgase, Reste von Aerosolaktivitäten, Stickoxyde, Wasserdampf, Kerosin- und TBP-Dämpfe enthalten, werden in einem eigenen Rohr an das Ende des Abluftkamins geführt. Der Abgasstrom enthält den überwiegenden Teil der an die Atmosphäre abgegebenen radioaktiven Stoffe.

2.1 Zuluftüberwachung

Da die β-empfindliche Strahlenschutzinstrumentierung durch wiederangesaugtes Kr-85 ausser Funktion gesetzt werden kann, muß die Zuluft zumindest zu den Zeiten der Auflösung überwacht werden. In der WAK wird dazu ein Teilstrom aus dem Zuluftkanal entnommen und über einen Kr-Meßtopf geleitet, der zum Schutz gegen Störstrahlung mit Blei abgeschirmt ist. Die Kr-85-Messung erfolgt durch einen in den Topf eingebauten Plastikszintillationszähler.

2.2 Raumluftüberwachung

Die Raumluftüberwachung in der WAK wird mit beweglichen Geräten durchgeführt. Die Messungen erfolgen kontinuierlich oder diskontinuierlich. Für die kontinuierlichen Messungen werden fahrbar α-β-Pseudokoinzidenzmeßplätze eingesetzt, die ihre Meßwerte über ein im Bau fest installiertes Signalnetz in den Zentralen Kontrollraum übertragen.
Die Geräte werden vornehmlich an solchen Arbeitsplätzen eingesetzt, wo aus verfahrenstechnischen oder betrieblichen Gründen mit Aerosol- oder Gasaktivität gerechnet werden muß. In der WAK sind dies z. B. der Reinigungsraum, wo die Brennelementtransportbehälter für den Abtransport dekontaminiert werden. Das Gerät ist außerhalb des zu überwachenden Raumes aufgestellt und über flexible Schläuche angeschlossen, um Kontaminationen der teuren Apparatur zu verhindern.

In der Wasserbeckenhalle, wo die Brennelemente vor der Aufarbeitung zwischengelagert werden, ist ständig eine fahrbare Raumluftüberwachungsanlage für α- und β-Aerosole sowie eine Krypton-85-Überwachung mittels einer einfachen β-Kontaminationssonde in Betrieb.

Die Plutoniumendreinigung und die Plutoniumkonzentrierung und Abfüllung werden ebenfalls durch die kontinuierlich anzeigenden fahrbaren Raumluftüberwachungsanlagen kontrolliert. Auch hier sind die Geräte außerhalb der kontaminationsgefährdeten Bereiche aufgestellt. Für die warme Werkstatt ist ebenfalls ein solches Gerät vorgesehen. In der Chemikalienvorbereitung werden unter anderem rückgewonnene Prozeßchemikalien verwendet, die mit Tritium kontaminiert sind. Da der Raum wegen der organischen Lösungsmittel explosionsgefährdet ist, mußte der zur Überwachung vorgesehene Tritiummonitor an einem anderen ungefährdeten Raum aufgestellt werden.

Das Gros der Raumluftüberwachung wird jedoch diskontinuierlich über Staubsammler durchgeführt. Die bei 40 m^3/h bestaubten 200 mm ϕ Glasfaserfilter werden in einer beim Strahlenschutz aufgestellten α-β-Pseudokoinzidenzmeßeinrichtung ausgewertet. Vorteile der Staubsammler sind ihre große Mobilität bei verhältnismäßig geringen Stückkosten. Nachteilig ist, daß sie als modifizierte Industriestaubsauger mit Kommutatormotoren ausgerüstet nicht für einen Dauerbetrieb gebaut sind. Durch Einbau von Betriebsstundenzählern und regelmäßigen Wechsel der Kommutatorkohlen alle 500 Betriebsstunden konnte das Problem der durchgebrannten Motoren in den Griff bekommen werden. Störend ist ferner der verhältnismäßig hohe Geräuschpegel, der besonders im Labor unangenehm empfunden wird.

Für den Einsatz in explosionsgefährdeten Räumen wurde ein explosionsgeschützter Staubsammler mit regelbarer Drehschieberpumpe und Rotameter zur Luftmengenmessung zusammengebaut.

2.3 Abluftüberwachung

Wie schon erwähnt, wird die Luft in Wiederaufarbeitungsanlagen vor der Abgabe in den Kamin über Absolutfilter geleitet. Die Filterbänke, in denen diese Filter eingebaut sind, werden ständig durch γ-Pegelwächter überwacht. Im Falle eines Alarms können an die einzelnen Abluftstränge der Prozeßzellen an vorgesehenen Stutzen Staubsammler angeschlossen werden, um die Quelle der Aerosolaktivität zu lokalisieren. Auf diese Weise können Leckagen an sonst schlecht zugänglichen Apparaturen in Prozeßzellen bemerkt werden. Die über die Abluft abgegebene Aktivitätsmenge wird über eine fest installierte α-β-Pseudokoinzidenzmeßeinrichtung überwacht. Dazu wird ein kleiner Teilstrom von 20 m^3/h vom Hauptstrom, der ca. 80 000 m^3/h beträgt, abgezweigt und über den Meßfilter geleitet. Die Bestimmung der abgegebenen Aktivitätsmenge erfolgt durch Ausmessen der gewechselten Meßfilter, bei denen die natürliche Aktivität abgeklungen ist.

Die Abgabe von Krypton mit der Abluft wird durch einen bleiabgeschirmten Kryptonmeßtopf überwacht, der der Aerosolmeßstelle nachgeschaltet ist. Jod- und Tritiummessungen werden in der Abluft nicht vorgenommen, da die dort möglichen Mengen gegenüber dem Abgasstrom unbedeutend sind.

2.4 Abgasmessung

Über das Abgassystem sind Auflöser, Prozeßbehälter und die Lagertanks für die hochaktiven Abfälle entlüftet. Es enthält daher alle gasförmigen Spaltprodukte, einen Teil der flüchtigen Spaltprodukte, radioaktive Aerosole und Prozeßchemikalien wie Wasserdampf, nitrose Gase, Tributylphosphat und Kerosin. Im Vergleich zur Raumluft sind die Aktivitätskonzentrationen um einige Größenordnungen höher:
Die Kr-85-Aktivität im Abgas kann bei einer Auflösung bis zu 2 Ci/m^3 betragen, die α-Aerosol-

aktivität bis einige 10^{-9} Ci/m³, während die β-Aerosole bis zu 10^{-6} Ci/m³ gehen.

Zur Messung wird ein Teilstrom von 20 m³ vom Hauptstrom, der etwa 500 m³ beträgt, abgezweigt und durch Meßapparatur geschickt. Diese besteht aus einer fest installierten α-β-Pseudokoinzidenzaerosolmessung und einem nachgeschalteten Kryptonmeßtopf. Wegen der wesentlich höheren α-Aerosolkonzentration ist es nicht unbedingt notwendig, die natürliche α-Aktivität zu kompensieren. Zur Zeit der Auflösung von Brennstoff wird die β-Aerosolmessung durch die hohe Kr-85-Konzentration gestört und durch einen Grenzwertgeber abgeschaltet. J-131 wird selektiv durch einen Aktivkohlefilter oder durch silberimprägnierten Katalysatorträger aus einem Teilstrom absorbiert und die Beladung mit einem NaJ/Tl Szintillationszähler überwacht, dessen Diskriminatorfenster auf die 0,36 MeV Linie des J-131 eingestellt ist. Die elektronische Kompensation der Kr-85-Aktivität hat sich nicht bewährt. Statt dessen wird jetzt periodisch auf dem Filter gesammelt, dann mit Luft gespült und das absorbierte Jod gemessen.

Dem Vorteil der Methode, nämlich der vollständigen Ausschaltung des Kr-85-Einflusses, steht der Nachteil der nicht echt kontinuierlichen Messung gegenüber.

Beim wechselseitigen Betrieb von 2 Jodmeßstellen, die wegen der geforderten Redundanz ohnehin notwendig sind, könnte dieser Nachteil vermieden werden.
Tritiummessungen werden in der WAK im Abgasstrom nur stichprobenweise durch Sammeln von Kondensat und anschließender Laboranalyse auf Tritium durchgeführt. Da das Abgas mit Wasserdampf gesättigt ist, kann über die Abgastemperatur auf die abgegebene Wasserdampfmenge geschlossen werden.

Die Schwierigkeiten bei der Abgasmessung werden hauptsächlich durch die mitgeführten Prozeßchemikalien verursacht, gegen die auf die Dauer nur Edelstahl beständig ist. Die im Kondensat gebildete Salpetersäure greift die üblichen Materialien wie C-Stahl, Messing und Blei schnell an, während Tributylphosphat und Kerosin die organischen Materialien wie Kunststoffe oder Anstriche aufweicht bzw. zerstört. Ganz allgemein kann man sagen, daß in jeder Anlage auch mit noch so gutem Abgasreinigungssystem im Abgas mit den eingesetzten bzw. neu gebildeten Prozeßchemikalien gerechnet werden und dies konsequent bei den eingesetzten Werkstoffen berücksichtigt werden muß. Ferner ist es zweckmäßig, die zu einer Abgasüberwachung zugehörige wertvolle Elektronik getrennt von den medienberührten Teilen in einen anderen Raum aufzustellen. Sind 2 parallele Anlagen vorgesehen, so sollten diese ebenfalls in getrennten Räumen untergebracht sein, um gegenseitige Beeinträchtigungen zu vermeiden und ungestörte Einzelreparaturen zu ermöglichen.

Das Probenahmesystem muß sorgfältig ausgelegt sein. Die Entnahme wie auch die Rückführung müssen am Hauptgasstrang an geeigneten Stellen angeschlossen sein, so daß kein Kondensat eindringen kann und ein Druckaufbau vermieden wird, der die empfindlichen Zählrohrfenster gefährden kann. Neu gebildetes Kondensat muß durch richtiges Gefälle abgeleitet und an den tiefsten Stellen über Entwässerungsmöglichkeiten abgeführt werden. Über Dekont-Anschlüsse muß eine Spülung der Leitungen möglich sein, um die sich an den Innenwänden der Rohrleitungen aufbauende Kontamination von Zeit zu Zeit abzuspülen.

3. Schlußfolgerungen

Das in der WAK angewandte System der Luftüberwachung hat sich allgemein gut bewährt.

Schwierigkeiten traten hauptsächlich bei mechanischen Komponenten oder medienberührten Teilen auf, die entweder der Dauerbelastung nicht gewachsen waren, durch Kontaminationsaufbau unbrauchbar oder durch Korrosion zerstört wurden.

Abgesehen von den im Meßprinzip der α-Aerosole liegenden Schwierigkeiten, die mit der zeitlichen Änderung der natürlichen Aktivität zusammenhängen, hat sich die Meßelektronik, was die Zuverlässigkeit angeht, sehr gut bewährt.

RAUM- UND ABLUFTÜBERWACHUNG AM KERNKRAFTWERK OBRIGHEIM

W. STEPHAN
KERNKRAFTWERK OBRIGHEIM GMBH, OBRIGHEIM

Zusammenfassung

Die einzelnen Gesichtspunkte für die Raum- und Abluftüberwachung im Kernkraftwerk werden erläutert. Die möglichen Quellen für luftgetragene Aktivität und die auftretenden Radionuklide werden genannt. Zum Verständnis der Wahl der Meßpunkte wird eine kurze Beschreibung der in den einzelnen Gebäudeteilen befindlichen radioaktiven Systeme und des Abluftsystems gegeben. Die einzelnen Meßgeräte und Meßverfahren für luftgetragene Aktivität und die jeweils gewonnenen Erfahrungen werden ausführlich besprochen.

1. Allgemeines

1.1 Meßaufgabe

Die Meßaufgabe der Raum- und Abluftüberwachung wird einmal bestimmt durch die in der Raum- und Abluftüberwachung auftretenden Radionuklide. Weiter gehen in die Meßaufgabe die Forderung für eine Raumluft- und Arbeitsplatzüberwachung zum Schutze des Personals ein sowie die Forderung, die über den Kamin abgegebenen Radionuklide quantitativ zu erfassen. Neben der Aufgabe der Erfassung der abgegebenen Aktivität am Kamin ist es bei einem Kernkraftwerk aus Gründen des Schutzes des Personals sowie der Betriebsüberwachung und -Kontrolle von großer Wichtigkeit, die Quellen der zum Kamin gelangenden Aktivität zu erkennen, d.h. die Messungen der wichtigsten Radionuklide müssen bereits in den einzelnen Sammelsträngen des Abluftsystems erfolgen können oder am Platz ihrer Entstehung (Leckagen, Reparaturstellen) erfaßt werden.

1.2 Quellen für luftgetragene Aktivitäten

Quellen für luftgetragene Aktivitäten sind bei Normalbetrieb vor allem Leckagen an dem unter einem Druck von 145 bar stehenden Primärsystem. Leckagen an unter geringerem Druck stehenden Hilfssystemen, z.B. an Gassammeleinrichtungen oder dem Reinigungssystem für Primärwasser können ebenfalls zur Entstehung luftgetragener Aktivität führen.

Bei Reparatur- und Wartungsarbeiten werden Systemkomponenten geöffnet, in denen sich Aktivität führende Medien befanden, so daß durch das Verdunsten von Restwasser, durch das Freiwerden von an Metalloberflächen haftender Aktivität oder durch das Vorhandensein freier Oberflächen von Primärwasser Aktivität in die Luft gelangen kann. Primärkreiswasser führende Komponenten sowie Komponenten des Abgassystems werden vor dem Öffnen mit N_2 gespült, so daß ein Austreten von größeren Edelgasmengen in die Raumluft in der Regel vermieden werden kann.

Weitere Quellen für luftgetragene Aktivität sind die verschiedenen sonstigen Arbeiten, die vom Personal an Kraftwerkskomponenten und Gegenständen mit offener Radioaktivität durchgeführt werden.

Einige Beispiele für das Auftreten luftgetragener Aktivität beim Brennelementwechsel seien im folgenden noch genannt:

Hier wird der Deckel des Reaktordruckgefäßes abgehoben. Das Primärwasser ist bis zur Höhe des Druckbehälterflansches zu senken, so daß sich im Deckel ein luftgefüllter Hohlraum befindet, in den vom darunterstehenden Primärwasser Aktivität gelangen kann. Obwohl ein Spülen dieses Hohlraumes mit Luft vorgenommen wird, ist beim Abheben des Deckels für eine kurze Zeit mit dem Austritt luftgetragener Aktivität (Edelgase, Jod) zu rechnen.

Bei einem Brennelementwechsel, der durch Unterwassertransport von Brennelementen vom Reaktordruckgefäß zum Brennelementlagerbecken und umgekehrt erfolgt, läßt sich durch die in den Becken entstehende Turbulenz nicht völlig vermeiden, daß die Aktivitätskonzentration in den Oberflächenschichten des Wassers im Reaktorbecken und im Brennelementlagerbecken zunimmt. Durch die Manipulationen in den Becken kann ein Übertritt von Aktivität von hier in die Raumluft erfolgen.

Nach dem Beladen des Reaktors und dem Absenken des Wassers im Reaktorbecken trocknen die Wände des Reaktorbeckens, so daß es bei einer nicht gründlich durchgeführten Reinigung dieser Wände zum Auftreten von Aerosolaktivität kommen kann.

1.3 Auftretende Radionuklide

Infolge von Korrosion der vom Primärwasser benetzten Oberflächen der Primärkreiskomponenten und der Aktivierung dieser Korrosionsprodukte enthält das Primärwasser vor allem ^{58}Co, ^{60}Co, ^{59}Fe, ^{54}Mn, ^{51}Cr, $^{95}Zr/Nb$. Die aktivierten Korrosionsprodukte lagern sich mehr oder weniger stark, vor allem an Stellen geringerer Strömung oder an Stellen mit stehendem Wasser ab. Sie diffundieren aber auch in die Metalloberflächen ein und bilden dabei fester haftende Aktivitäten.

Der Gehalt des Primärwassers an Spaltprodukten ist abhängig von der Stärke der Brennelementleckagen. Da das Primärkühlmittel im Betrieb nicht wie beim Siedewasserreaktor ständig entgast wird, überwiegen bei den Edelgasen - in abnehmender Stärke - das Xe-133, Xe-135, Xe-135^m. Der Anteil des ^{85m}Kr, ^{87}Kr, ^{88}Kr liegt zusammen bei ca. 10 %. Wesentliche weitere Aktivitäten bei Brennelementleckagen sind J-131, J-132, J-133 sowie die Cs-Isotope ^{134}Cs und ^{137}Cs. Bei stärkeren Leckagen ist ^{239}Np nachweisbar.

Wie im folgenden noch gezeigt wird (siehe Abschnitt 2.1), ist der Primärkreislauf beim KWO-Reaktor von luftdichten, unter Unterdruck stehenden Räumen umgeben, in denen die gasförmigen Leckagen vom Primärkreis eine mittlere Verweilzeit von ca. 13 Stunden besitzen. Dadurch gelangen Edelgase kleiner Halbwertszeit und deren Folgeprodukte (diese infolge der Filterung) nicht zum Kamin oder in die Luft von Betriebsräumen.

Die ^{3}H-Aktivität (von der für die Reaktivitätsregelung verwendeten und im Primärwasser gelösten Borsäure sowie von Brennelementleckagen) ist von untergeordneter Bedeutung. Sie liegt beim KWO-Reaktor im Primärwasser zwischen 0,02 ... 0,3 Ci/m^3.

Ar-41, das in der Kühlluft des biologischen Schirmes entsteht, besitzt ebenfalls keine Bedeutung.

2. Gliederung der Aktivität führenden Systeme und des Abluftsystems bei der KWO-Anlage

2.1 Reaktorgebäude

Im Reaktorgebäude befinden sich das Reaktordruckgefäß mit den Brennelementen, die vom Reaktordruckgefäß zu den Wärmetauschern und von dort über die Kühlmittelpumpen wieder zum Reaktordruckgefäß zurückführenden Primärkühlmittelleitungen. Diese Komponenten befinden sich in den sogenannten Anlagenräumen und sind lufttechnisch getrennt von den bei Betrieb betretbaren sogenannten Betriebsräumen des Reaktorgebäudes (Halle des Reaktorgebäudes und weitere Räume in den verschiedenen Stockwerken des Reaktorgebäudes). Die Anlagenräume besitzen gegenüber den Betriebsräumen einen schwachen Unterdruck und ein eigenes Abluftsystem zum Sammelstrang vor dem Kamin. Zur Aufrechterhaltung dieses Unterdruckes wird eine geringe Menge Luft (500 m^3/h) abgesaugt und über Jod- und Aerosolfilter zum Kamin geleitet. Die mittlere Verweilzeit der Luft in den Anlagenräumen beträgt ca. 13 Stunden.

In den Betriebsräumen, zu denen wie gesagt die Halle des Reaktorgebäudes gehört, befindet sich das Lagerbecken für Brennelemente sowie verschiedene Hilfssysteme, Meßumformer, Abwassersysteme, Transportwege, Lagerplätze für während des Brennelementwechsels vom Reaktordruckgefäß abmontierte Teile einschließlich des Druckgefäßdeckels, Prüfvorrichtungen für bestrahlte Brennelemente etc. Beim Brennelementwechsel wird der Raum über dem Reaktordruckgefäß zu den Betriebsräumen hin geöffnet und geflutet, so daß hier freiwerdende Aktivitäten in die Luft der Betriebsräume gelangen können.

Die Betriebsräume besitzen ein von den Anlagenräumen getrenntes Abluftsystem zum Kamin.

2.2 Reaktor-Hilfsanlagengebäude

Zu diesem werden die Reinigungsrate des Primärwassers, Probennahmeleitungen für chemische und radiologische Untersuchungen, Gassammelleitungen zu den Abklingbehältern und aufzubereitendes Abwasser geführt, so daß hier ebenfalls gasförmige Luftaktivität und Aerosole auftreten können. Neben den zu diesen Systemen gehörenden Komponenten befinden sich hier die Verdampferanlage für Abwasser und Aufarbeitungsanlagen für Verdampferrückstände, das chemische Labor, die Dekontwerkstatt, die heiße Wäscherei, der Hygienetrakt am Eingang zum Kontrollbereich sowie verschiedene Nebenanlagen.

Das Reaktorhilfsanlagengebäude besitzt einen eigenen Abluftstrang, der zur Gesamtabluft am Kamin geführt wird. Das Abgas von den Gasabklingbehältern wird in einen getrennten Strang zum Sammelstrang der Gesamtabluft am Kamin geführt.

2.3 Lagergebäude für radioaktive Abfälle

Hier befinden sich Lagertanks für radioaktives Abwasser und Abwasserreinigungsanlagen (Ionentauscher, Anschwemmfilteranlagen) sowie die Abluftfilter und Abluftgebläse. Entweichen von radioaktivem Edelgas z.B. über Undichtigkeiten der teils mit Gas gefüllten Behälter kann prinzipiell nicht ausgeschlossen werden.

Das Lagergebäude für radioaktiven Abfall besitzt einen eigenen Abluftstrang, der zur Gesamtabluft am Kamin geführt wird.

2.4 Sekundäranlage

In den Räumen der Sekundäranlagen ist nicht mit Aktivität zu rechnen, die eine Abluftüberwachung rechtfertigen würden. Bei Dampferzeugerleckagen vom Primärkreis austretende Aktivität bleibt bis auf die Edelgase und durch die Restfeuchte des Dampfes mitgenommene Aktivität in den Dampferzeugern. Die übergetretenen Edelgase werden durch die Unterdruckhaltung im Kondensator abgesaugt und in einer getrennten Leitung zum Abluftkamin geführt.

3. Überwachung der Abluft

3.1 Edelgasaktivität

Edelgasmonitoren

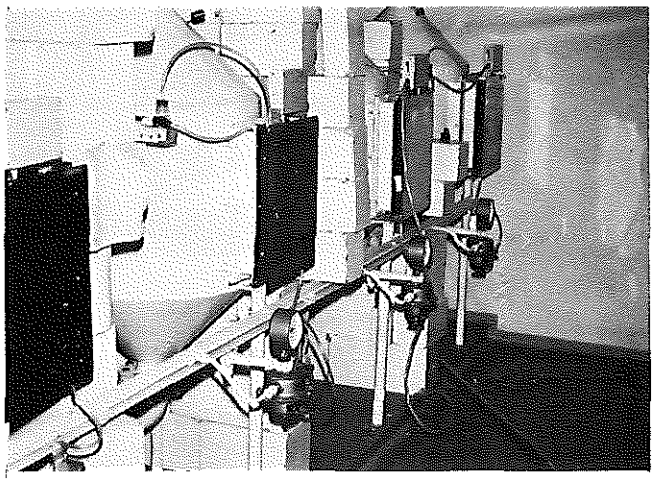
Zum Erkennen der gasförmigen Aktivitätsquellen sind in jeden der genannten Abluftstränge (von den Anlagenräumen des Reaktorgebäudes, den Betriebsräumen des Reaktorgebäudes, dem Reaktorhilfsanlagengebäude, dem Lagergebäude für radioaktive Abfälle und der Kondensatorabluft) kontinuierlich messende Edelgasmonitoren eingebaut. Weiter besitzt der Gesamtabluftstrang vor dem Kamin Edelgasmonitoren zur Überwachung der Gesamtaktivitätsabgabe und zur Messung höherer Aktivitätskonzentrationen für eventuelle Störfälle. Die Durchführung von Bilanzen der Aktivitäten aus den einzelnen Abluftsträngen hat sich als zweckmäßig erwiesen (z.B. Erkennen von Erhöhungen des Nulleffektes). Abbildung 2 zeigt einen Ausschnitt der Zentrale für die Abluftmessung. Gegen Fremdstrahlungen und Strahlungen von kontaminierten Luftleitungen wurden Abschirmungen um die einzelnen Zählrohrmeßstellen aufgestellt. Der Strang aus den Gasabklingbehältern besitzt keine gesonderte Überwachung, da hier die Abgabe kontrolliert erfolgt und die Abgaben am Monitor für Gesamtabluft erkennbar sind. Leckagen aus den Gasabklingbehältern in diesen Strang werden durch eine Luftprobennahme aus dem Strang ermittelt.

Zum Auffinden von Aktivitätsquellen (Leckagen) erscheint es vorteilhaft, Anschlußmöglichkeiten für Edelgasmonitore auch an Teilsträngen der Abluft innerhalb der einzelnen Gebäude zu besitzen. Weiter hatte es sich als zweckmäßig gezeigt, in den Abluftteilstrang von den Probennahmeboxen für Primärwasser im chemischen Labor eine ständige Zählrohrüberwachung einzubauen, um die Xenonabgaben von dieser Stelle bei Probennahmen sofort erkennen zu können.

Außer bei der Meßstelle für die Kondensatorabluft werden die Edelgase mittels Methan-Großflächenzählrohre (700 cm^2 Zählfläche, 0,7 mg/cm^2 Flächenbelegung, Eichwert 1 I/min = $1{,}8 \times 10^{-9}$ Ci/m^3, Sättigung bei $1{,}5 \times 10^7$ Imp/min) gemessen. Die Zählrate dieser Geräte wird auf der Warte angezeigt und geschrieben. Das Betriebsverhalten dieser Geräte ist gut. Als nachteilig hat sich die Kontamination der die Meßluft führenden Stränge, Armaturen und der Meßkammer mit radioaktiven Aerosolen gezeigt. Es wird daher jetzt dazu übergegangen, die Meßstränge mit Aerosolfiltern zu versehen und die Meßgeräte abzuschirmen (auch gegen Strahlung von in der Nähe befindlichen Quellen, siehe Abbildung 1). Zur Zeit wird ein Umbau der Meßstellen auf eine curiegerechte Erfassung der Aktivitätskonzentration durch entsprechende geometrische Gestaltung des Luftvolumens vor dem Detektor durchgeführt.

Wegen der Impulssättigung bei höheren Aktivitätsabgaben tritt bei 1 x 10^6 Impulsen/min eine automatische Umschaltung des Großflächenzählrohres auf ein Endfensterzählrohr ein (Eichwert 1 I/min = 9 x 10^{-7} Ci/m^3). Ein drittes GM-Zählrohr ist noch vorhanden für Aktivitätsmessungen bei Störfällen (Eichwert 1 I/min = 0,27 x 10^{-3} Ci/m^3).

Abbildung 1
Zentrale für Abluftmeßgeräte



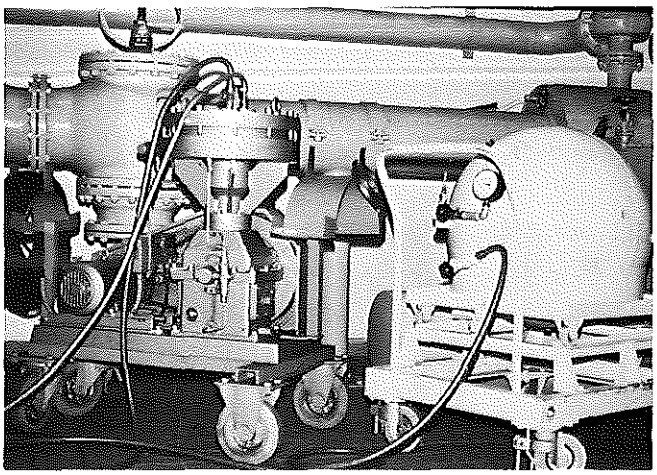
Bei der Meßstelle für die Kondensatorabluft wird ein dünnwandiges Betazählrohr aus Glas verwendet.

Spektroskopie der Edelgase, Messungen hoher Empfindlichkeit

Eine Spektroskopie der abgegebenen Edelgase wird von Zeit zu Zeit durchgeführt, z.B. auf Ar-41-und Xe-135-Anteile. Auch für die Kontrolle der Dichtigkeit der Dampferzeuger zum Sekundärkreis sind Messungen hoher Empfindlichkeit wünschenswert. Für solche Messungen werden an den an den Abluftsträngen befindlichen Probennahmestellen evakuierte Glasgefäße oder eine mittels Kompressor auf 10 atü auffüllbare Stahlkugeln von 200 l Inhalt angeschlossen (Abbildung 2). Diese gefüllten Gefäße werden in einer Stahlkammer am 1000-Kanaler-Impulshöhenanalysator mit GeLi-Detektor ausgemessen. Bei Verwendung der Stahlkugel wurden Nachweisempfindlichkeiten unter 10^{-9} Ci/m^3 erreicht.

Abbildung 2

Stahlkugel mit Kompressor zur Aufnahme radioaktiver Luft bei der Spektroskopie bzw. Messung von Edelgasen bei hoher Empfindlichkeit



3.2 Aerosole und Jod

Aerosole und Jod werden generell durch Verwendung von Staubprobensammlern mit Aerosol- und Jodfiltern und Ausmessen der Aerosol- und Jodfilter auf einem 1000-Kanal-Impulshöhenanalysator bestimmt. An den Abluftsträngen aus den einzelnen Gebäuden befinden sich daher Anschlüsse für Staubproben-Sammelgeräte, an die diese bei Bedarf angeschlossen werden können. Die Erfahrung hat gezeigt, daß Anschlußmöglichkeiten an Teilluftsträngen innerhalb der einzelnen Gebäude beim Suchen nach Aktivitätsquellen von Vorteil sind. Lediglich das Sammelgerät am Sammelkanal vor dem Kamin ist für die Erfassung der an die Umgebung abgegebenen Aktivität ständig in Betrieb.

Als Filtermaterial werden für Aerosole Glasfilter und für Jod Aktivkohlepatronen verwendet. Die Auswertung der Filter durch Gammaspektrometrie erfolgt zur Diskriminierung adsorbierter Edelgase und natürlicher Aktivitätskomponenten. Auch wird festgestellt, daß ein Teil des Jods sich bereits auf dem Aerosolfilter abscheidet und auch Aerosole im Jodfilter (bis zu 10 % der Aerosolfilteraktivität) nachweisbar sind. An den Aerosolfiltern werden nur in größeren Zeitabständen Kontrollen auf Sr-90 und Alphastrahler vorgenommen, die vom KWO-Reaktor nicht abgegeben werden.

Zur Vermeidung von Fehlmessungen wird großer Wert auf eine kontaminationsfreie Handhabung der Filter auf dem Weg zum Probensammelgerät, beim Ein- und Ausbau und beim Weg zum Meßplatz gelegt.

Die Filter werden nicht im Kontrollbereich ausgemessen, da die notwendige Freihaltung der Meßkammer von Kontaminationen für Messungen mit hoher Empfindlichkeit außerhalb des Kontrollbereiches sicherer gewährleistet ist.

Zur Zeit ist eine Verbesserung der Probennahmestellen auf isokinetische Probennahme vorgesehen.

Die Betriebserfahrung zeigte, daß bei den Probennahmen besonders auf die Dichtigkeit des Probennahmesystems zu achten ist.

Durch den Unterdruck im Probennahmekanal und -Gerät kann Raumluft in das Probennahmesystem an verschiedenen Stellen eindringen und zu Fehlmessungen führen.

Am Sammelstrang ist noch ein Schrittfiltergerät mit direkten und verzögerten Anzeigen angeschlossen. Dieses Gerät wird für quantitative Erfassungen der Aerosolabgaben nicht verwendet, da bei der direkten Messung des in Belegung befindlichen Staubfilters die Radon - Thoronfolgeprodukte bzw. bei entsprechender Abgabe adsorbierte Xenonaktivität überwiegen.

Das Zeitintervall für die Schritte des Filterbandes ist auf ca. 10 Stunden eingestellt, so daß auf dem 2. Filter deutlich der Anfall der RaB (Pb^{214}, Hz^{27min}) und ThB (Pb^{212}, 10,6 h-Hz) Aktivität sichtbar ist. Es hat sich gezeigt, daß die Impulsrate der direkt anzeigenden Meßstelle stark von meteorologischen Bedingungen (z.B. Zunahme bei Regen, Sonnenaufgang und Sonneneinstrahlung) abhängt. Ein Teil der auftretenden Peaks kann deshalb nicht den Aktivitätsabgaben vom Kernkraftwerk zugeordnet werden.
Typische Zählratenwerte sind für die Meßstelle 1 (unverzögert) 3×10^3 I/min, Meßstelle 2 (ca. 10 Stunden nach Verzögerungszeit) 2×10^2 Imp/min, Meßstelle 3 (ca. 30 Stunden Verzögerungszeit) 1×10^2 Imp/min.

4. Raumluftüberwachung

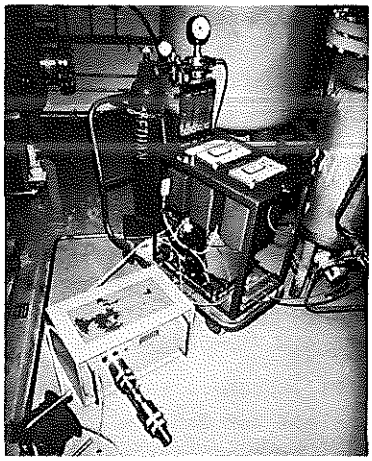
Bei der Raumluftüberwachung werden im Prinzip gleiche Meßgeräte und Meßverfahren wie bei den Messungen der Abluft verwendet. Hier sollen daher vor allem die Besonderheiten des Einsatzes der einzelnen Gerätetypen bei der Überwachung von Arbeiten im Kraftwerk beschrieben werden.

4.1 Edelgase

Als geeignete Überwachungsgeräte haben sich Großflächen-Methandurchflußzählrohre erwiesen, die mit einem Gemisch von 1 Volumenteil der zu messenden Luft auf 2 Volumenanteilen Methan durchflossen werden (siehe Abbildung 3). Der Detektor selbst ist hinter eine Abschirmung zum Schutz von Umgebungsstrahlung aufzustellen. Da der Detektor und die Elektronik wegen der Umständlichkeit des Aufbaues der Abschirmungen und aus Platzgründen nicht laufend an anderen Stellen, z.B. in einer Reaktorhalle aufgestellt werden können, wird in der Reaktorhalle die Luft mittels eines dünnen PVC-Schlauches von 20 m und mehr Länge von der zu überwachenden Stelle zu dem an einem festen Platz aufgestellten Detektor geleitet. Vom Detektor führt eine Klingelleitung zum Arbeitsplatz, so daß das dort befindliche Personal bei Überschreitung des eingestellten Grenzwertes der Luftkontamination gewarnt wird. Das Personal verläßt den Arbeitsplatz bis diese akustische Warnung erlischt. Dieses Verfahren hat sich als sehr praktisch und zuverlässig erwiesen. Auch wird bei dieser Art Überwachung nicht ständig Strahlenschutzpersonal (außer zum Einstellen und der gelegentlichen Überwachung der Geräte) benötigt.

Abbildung 3

Edelgasmonitor und Staubproben-Jodsammelgerät



4.2 Aerosole und Jod

Für die Überwachung der Raumluft auf Aerosole und Jod werden ausschließlich Staubprobensammler verwendet. Als Filter werden Glasfaserfilter für die Aerosole mit nachgeschalteten Aktivkohlepatronen für die Jodbestimmung verwendet. Beide Filter werden im Normalfall mittels Ge-Li-Detektor zur Trennung der Aerosol- und Jodaktivität von der auf den Filtern adsorbierten Xenonaktivität spektroskopiert. Bei geringen Luftaktivitäten wird gelegentlich auch eine Beta-Messung an einem Methandurchflußzähler vorgenommen. Die aus den Zählraten berechnete Aktivitätskonzentration wird dann auf das kritische Nuklid bezogen. Dieses Verfahren ist in der Praxis anwendbar, solange sich dabei keine Werte im Bereich maximal zulässiger Luftkonzentrationen ergeben, die das Tragen von Atemschutz erforderlich machen und damit Arbeitserschwerungen für das Personal bedingen. Vom Strahlenschutzpersonal ist besonders darauf zu achten, daß die Filter bei der Handhabung im Kontrollbereich nicht verschmutzt werden (siehe Abschnitt 3.2). Die Gefahr einer Verschmutzung der Filter ist bei einer Überwachung an Stellen, an denen z.B. Reparaturen an aktiven Komponenten durchgeführt werden und bei denen Kontaminationen der umliegenden Gebiete unvermeidbar sind, in stärkerem Maße als bei der Überwachung in den Abluftsträngen gegeben. Eine Kontrolle auf Alpha-Aktivität wird nur an Stichproben mit Auswertung auf einem Halbleiter-(Silizium-Sperrschicht)-Detektor vorgenommen. Weiter wird an diesen Filtern das Verhältnis der Alpha-Aktivität zu Kobalt-60 bestimmt, so daß bei den Routinemessungen von der gemessenen Kobalt-Aktivität auf den Alpha-Anteil geschlossen werden kann. Zum genauen Erkennen der Peaks der Alpha-Aktivität wird ein elektrostatischer Probensammler verwendet, allerdings zeigt dieser eine starke Abhängigkeit des Wirkungsgrades von der Korngröße der Aerosole. Alpha-Aktivitäten besitzen bei KWO keine Bedeutung. Werte im Bereich maximal zulässiger Konzentrationen wurden nicht erreicht.

Staubprobensammler, bei denen vor Ort die Aktivität durch ein Zählrohr gemessen wird, werden wegen der zumeist störenden Umgebungsstrahlung und aufgrund der Adsorption von Edelgasen auf dem Filtermaterial nicht verwendet. Wünschenswert für den praktischen Betrieb, z.B. bei der Entscheidung, ob vom Reparaturpersonal Atemschutz zu tragen ist, wäre häufig eine schnellere Methode für den Erhalt von Meßergebnissen als

hier angewendet. Zur Zeit ist aber zu erproben, inwieweit neuere Methoden, z.B, einer Spektroskopie vor Ort und der Verwendung besonderer Edelgase nicht absorbierender Filter im praktischen Betrieb anwendbar sind. Die Frage des störenden Einflusses von Umgebungsstrahlung dürfte auch hier ein Problem bleiben.

4.3 Tritium

Beim Druckwasserreaktor wird der Wert der maximal zulässigen Konzentration von Tritium in der Atemluft nicht erreicht. Stichproben durch die Herstellung von Kondensationsproben bei besonderen Arbeiten und in der Abluft werden daher nur monatlich durchgeführt.

4.4 Kontrolle der Wirksamkeit der Raumluftüberwachung durch Inkorporationsmessungen

Das im Kontrollbereich eingesetzte KWO-Personal wird einer ständigen Kontrolle auf Inkorporationen in den Atmungsorganen, insbesondere nach Teilnahme an Reparaturarbeiten, unterzogen. Ebenso wird das Fremdpersonal nach Arbeitsabschluß auf Inkorporationen der Atemwege untersucht. (Bei Fremdpersonal, das vorher Arbeiten in anderen kerntechnischen Anlagen ausführte, wird zusätzlich eine Inkorporationsmessung vor Arbeitsaufnahme durchgeführt). Damit ist eine Kontrolle der Wirksamkeit der Raumluftüberwachung gegeben.

Als Untersuchungsgerät für die Inkorporationen wird der 1000-Kanal-Impulshöhenanalysator mit Ge-Li-Detektor verwendet. Die zu messende Person sitzt auf einem speziellen Stuhl, so daß ein definierter Abstand vom Atemtrakt zum Detektor gegeben ist.
Mittels dieser Untersuchungen wurde festgestellt, daß unzulässige Inkorporationen bisher nicht eingetreten sind.

Herrn Friedrich Wagner, der maßgebliche Entwicklungsarbeiten für die beim Kernkraftwerk Obrigheim angewendeten Meßtechniken durchgeführt hat, danke ich für verschiedene Hinweise zu diesem Vortrag.

ABLUFTOBERWACHUNG AN FORSCHUNGSREAKTOREN

H. JAHN

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH,
ZENTRALABTEILUNG FORSCHUNGSREAKTOREN

Zusammenfassung

Berichtet wird über die bisherigen Erfahrungen bei der Überwachung der Emissionen radioaktiver Stoffe aus den Abluftschornsteinen der Forschungsreaktoren FRJ-1 und FRJ-2 der Kernforschungsanlage Jülich. Zunächst werden die Abluftsysteme und die verwendeten Abluftüberwachungsanlagen beider Reaktoren beschrieben. Überwacht werden die Emissionen an Argon-41 sowie an radioaktiven Aerosolen und Halogenen. Außerdem ist am Reaktor FRJ-2 ein Monitor zur Tritium-Emissionsmessung vorhanden.
In einzelnen wird über die Jahresemissionen sowie über die bei besonderen Vorfällen auftretenden Emissionsspitzenwerte referiert.
Zum Schluß wird eine neu entwickelte Meßanordnung zur Erfassung vorwiegend ß-strahlender Edelgase bei gleichzeitiger Elimination von Argon-41 beschrieben.

1. Einleitung

Um über die Erfahrungen der Überwachung der Emissionen radioaktiver Stoffe an Forschungsreaktoren berichten zu können, sind zunächst die Abluftsysteme und die Abluftüberwachungsgeräte der betreffenden Reaktoranlagen zu betrachten.

Der Reaktor FRJ-1, ein offener Tankreaktor, bei dem Leichtwasser als Kühlmittel und Moderator dient und der mit einer Nennleistung von 10 MW betrieben wird, besitzt 2 Hauptabluftleitungen, wovon durch die eine die Abluft aus der Reaktorhalle mit einem Durchsatz von 7000 m^3/h und durch die andere die Luft unmittelbar über der Tankwasseroberfläche mit einem Durchsatz von 3000 m^3/h abgesaugt werden, so daß sich ein Gesamtluftdurchsatz von 10000 m^3/h ergibt. Zur Herabsetzung der Aerosolemissionen wird die Reaktorabluft über ein Absolutfilter vorgefiltert und erst danach dem Gesamtabluftsystem zugeführt. Die Gesamtabluft wird ihrerseits vor der Weiterleitung zum Schornstein noch einmal gefiltert. Es handelt sich hierbei um Filter mit einem Abscheidegrad von 99,95 % für Aerosole unter 0,3 µm Durchmesser. Jodfilter sind nicht vorhanden. Mit 2 Schnellschlußschiebern kann bei einem Zwischenfall der Luftdurchsatz unterbrochen und damit die gesamte Reaktorhalle gegen die Außenatmosphäre dicht verschlossen werden.
Überwacht wird die Luft nach der Filterung, bevor sie über den Schornstein an die Atmosphäre abgegeben wird. Dabei erfolgt eine kontinuierliche Überwachung der Emissionen an Argon-41 durch ein Zählrohr, das außen an der Abluftleitung angebracht ist und auf die γ-Strahlung des Argon-41 anspricht. Die Impulsrate ist der Argon-41-Konzentration in der Abluftleitung und damit, bei konstantem Luftdurchsatz, der Argon-41-Emissionsstärke proportional. Dieses Meßverfahren, das sich sehr gut bewährt hat, ist

bereits früher [1] näher beschrieben worden.
Für die Überwachung der Emission an radioaktiven Aerosolen und Halogenen wird im Nebenschluß zur Abluftleitung über eine Pumpe ein Aktivkohlepapier-Meßfilter mit einem Luftdurchsatz von 10 m^3/h bestaubt. Die ß-Aktivität des Meßfilters wird durch ein Endfensterzählrohr gemessen.

Der Reaktor FRJ-2, ein geschlossener Tankreaktor, bei dem Schwerwasser als Kühlmittel und Moderator dient und dessen Nennleistung 25 MW beträgt, besitzt nur eine Hauptabluftleitung für die Atemluft innerhalb der Reaktorhalle. In diese Abluftleitung münden die Spülleitungen der Experimentierkanäle, die Luftabsaugung unterhalb der Topplatte, die Entlüftung des Schwerwasser-Pumpenraumes sowie die Kühlluft des inneren Absetzblockes für die Lagerung abgebrannter Brennelemente und aktivierter Experimentiereinsätze. Der Luftdurchsatz beträgt wiederum 10000 m^3/h. Zur Herabsetzung der Aerosolemission sind hier 2 parallel liegende Absolutfilter mit einem mittleren Abscheidegrad von 99,75 % für Aerosole unter 0,3 µm Durchmesser vorhanden. Jodfilter fehlen im Gesamtabluftsystem auch hier. Es sind aber bei beiden Reaktoren in die Entlüftungsleitungen von Experimenten, bei denen radioaktives Jod freigesetzt werden kann, Aktivkohlefilter zur Zurückhaltung des Jods eingesetzt. Bei einem Zwischenfall sorgen 2 hintereinander liegende Schnellschlußklappen dafür, daß die Abluftleitung gegen die Außenatmosphäre abgedichtet wird.
Die Emissionsüberwachung erfolgt wiederum hinter den Absolutfiltern bevor die Abluft dem Schornstein zugeführt wird. Auch hier wird die Emission an Argon-41 sowie an radioaktiven Aerosolen und Halogenen gemessen, wobei dasselbe Meßverfahren wie beim Reaktor FRJ-1 verwendet wird. Da schwerwassermoderierte Reaktoren bekanntlich Tritium enthalten, dessen Austritt in die Luft nicht ausgeschlossen werden kann, muß eine entsprechende Tritiumüberwachung vorhanden sein. Zur Messung der Tritiumemission steht ein Monitor zur Verfügung, der mit einem gegen γ-Störstrahlung kompensierten Methandurchflußzähler ausgerüstet ist und im Nebenschluß zur Abluftleitung liegt.

2. Emissionsüberwachung

In Abb. 1 ist die Emissionsüberwachung an den Reaktoren FRJ-1 und FRJ-2 zusammengestellt. Sowohl am Reaktor FRJ-1 wie am Reaktor FRJ-2 ist eine Meßeinrichtung zur Erfassung der Argon-41-Emission vorhanden. Die Emissionsstärke wird jeweils über einen Linienschreiber und die Gesamtemission durch einen Impulszähler registriert. Mit Sicherheit lassen sich Emissionsstärken von 25 mCi/h bis zu 150 Ci/h mit einer Genauigkeit von etwa ± 10 % messen.
Ebenfalls an beiden Reaktoren ist eine Überwachungsanlage zur Erfassung der Aerosol- und Halogenemission vorhanden. Die Anzeige der Impulsrate des Endfensterzählrohres erfolgt über einen Linienschreiber. Der Meßbereich erstreckt sich von 4,5 µCi/h bis zu 30 mCi/h. Die Gesamtemission über einen vorgegebenen Zeitraum wird durch Multiplikation der gemessenen Emissionsstärke mit der Zeit rechnerisch ermittelt.
Am Abluftsystem des Reaktors FRJ-2 ist zusätzlich noch ein Tritiumabluftmonitor angeschlossen, der mit einem Methandurchflußzähler arbeitet. Die Emissionsstärke wird über einen Linienschreiber registriert. Die Gesamtemission ist an einem Rollenzählwerk ablesbar, dessen Meßmotor in Serie mit dem Zählratenmesser des Methandurchflußzählers liegt. Der Durchsatz der Meßluft durch den Methandurchflußzähler beträgt etwa 10 l/h. Die Kalibrierung des Monitors erfolgt mit einer wässrigen Lösung von bekannter spezifischer Tritiumaktivität unter Beachtung der Wasserdampfsättigung. Eine Tritiumemission von 2 mCi/h bis zu 7 Ci/h läßt sich mit einer Genauigkeit von ± 10 % erfassen.

Abluft-Überwachung

Reaktor FRJ-1	*Reaktor FRJ-2*
Argon-41 *Anzeige: Linienschreiber und Impulszähler* *Meßbereich: 25 $\frac{mCi}{h}$ bis 150 $\frac{Ci}{h}$*	*Argon-41* *Anzeige: Linienschreiber und Impulszähler* *Meßbereich: 25 $\frac{mCi}{h}$ bis 150 $\frac{Ci}{h}$*
Aerosole und Halogene *Anzeige: Linienschreiber* *Meßbereich: 4,5 $\frac{\mu Ci}{h}$ bis 30 $\frac{mCi}{h}$*	*Aerosole und Halogene* *Anzeige: Linienschreiber* *Meßbereich: 4,5 $\frac{\mu Ci}{h}$ bis 30 $\frac{mCi}{h}$*
	Tritium *Anzeige: Linienschreiber und Meßmotor mit Rollenzählwerk* *Meßbereich: 2 $\frac{mCi}{h}$ bis 7 $\frac{Ci}{h}$*

Abb 1:
Übersicht der Abluftüberwachung an den Forschungsreaktoren FRJ-1 u. FRJ-2

Alle Abluftüberwachungsgeräte werden vom Strahlenschutz-Schichtpersonal täglich 2 mal überprüft. Die mittleren Emissionsstärken sowie die innerhalb von 24 Stunden auftretenden Höchstwerte und die Tagesemissionen werden im Strahlenschutztagebuch festgehalten. Bei Überschreitung der Grenzwerte erhält der Reaktoroperateur am Schaltpult eine akustische und optische Warnung. Ist dies der Fall, so wird vom Strahlenschutzpersonal die weitere Emission laufend überwacht. Die Grenzwerte am Argon- und Tritiummonitor entsprechen jeweils den mittleren genehmigten Emissionsstärken, die aus den höchstzulässigen Wochenemissionen errechnet worden sind. Bei den Aerosol- und Halogenmonitoren liegt der Grenzwert etwa um den Faktor 2,5 oberhalb der Impulsrate, die sich infolge der natürlichen Aerosolaktivität einstellt.

3. Argon-41-Emissionen

Die Freisetzung von Argon-41 beruht bei einem Forschungsreaktor in der Regel auf den unvermeidbaren Undichtigkeiten an den Verschlüssen der Strahlrohre. Hierdurch dringt Luft in die Experimentierkanäle ein, was zur Erzeugung von Argon-41 führt, das über die Spülleitungen dem Abluftsystem des Reaktors zugeführt wird. Dieser Effekt wirkt sich bei Leistungsänderungen des Reaktors besonders stark aus, da im Rhythmus der hierbei vorhandenen Temperaturschwankungen Luft in das Spülsystem der Experimentierkanäle gesaugt wird und damit eine entsprechende Argonaktivierung hervorruft. Demzufolge traten beim Reaktor FRJ-2 bei einer diskontinuierlichen Leistungserhöhung von 9 bis 15 MW

Emissionsspitzenwerte von 1 Ci/h bis 1,8 Ci/h auf.

Die Emissionen werden jedoch auch durch die im Reaktor eingebauten Experimente verursacht. Als beispielsweise am FRJ-2 das Rig eines Stahlbestrahlungsexperimentes gespült wurde, traten kurzfristig Emissionsspitzen von 9 Ci/h bis zu 20 Ci/h auf. Beim Einsetzen eines Loopexperimentes kurz nach der Abschaltung des Reaktors wurde sogar eine maximale Emissionsstärke von etwa 35 Ci/h gemessen. Die Gesamtemission bei diesem Vorgang betrug jedoch nur 4 Ci.
Als es klar war, daß die Hauptemissionsbelastung an Ar-41 aus der Spülleitung für die Experimentierkanäle stammt, lag der Gedanke nahe, eine Verzögerungsleitung für das Abklingen des Ar-41 einzubauen und somit die Emissionen wirksam herabzusetzen. Hierzu diente ein aufgewickelter Kunststoffschlauch, den das aus den Experimentierkanälen kommende Spülgas zunächst durchlaufen muß, ehe es in das Abluftsystem gelangt. Bei einer Schlauchlänge von 2000 m und einem Durchsatz von etwa 2 l/min liegt eine Verzögerungszeit von annähernd 4,3 Stunden vor [1]. Eine Gesamtemission von 500 mCi/h geht bei Verwendung der Verzögerungsleitung auf etwa die Hälfte ihres Wertes zurück.

Die Jahresemissionen hängen selbstverständlich stark von der Betriebsweise des Reaktors ab, wie ein Rückblick auf die letzten beiden zurückliegenden Jahre zeigt. Im Jahr 1971 war der Reaktor FRJ-1 wegen Umbauarbeiten für die Leistungserhöhung von 5 auf 10 MW für 20 Wochen außer Betrieb. Die Gesamtjahresemission an Argon-41 betrug nur 37 Ci, entsprechend 3,7 % des genehmigten Jahreswertes. Dabei kamen Wochenemissionen von 1 bis 3 Ci vor. 1972 stieg die Jahresemission auf 322 Ci an, entsprechend 32 % des genehmigten Jahreswertes. Bei dem intensiven Betrieb des Reaktors ist für das Jahr 1973 ein weiterer Anstieg auf voraussichtlich 660 Ci zu erwarten. Die Wochenemissionen liegen zur Zeit zwischen 7 bis 20 Ci.

Der Reaktor FRJ-2 emittierte an Argon-41 im Jahr 1971 470 Ci, entsprechend 34 % des genehmigten Jahreswertes. Dabei lagen die Wochenemissionen zwischen 4 bis 12 Ci. Als eine ausgeprägte Undichtigkeit an einem Experimentierkanal vorlag, wurden in einer Woche 61 Ci emittiert. 1972 war der Reaktor für Umbauarbeiten für die Leistungserhöhung von 15 auf 25 MW wenigstens 10 Wochen außer Betrieb. Dementsprechend niedrig war die Jahresemission von nur 87 Ci, entsprechend 6,2 % des genehmigten Wertes.
Die Wochenemissionen lagen zwischen 1 und 3 Ci. Im Jahr 1973 wird der Reaktor voraussichtlich 270 Ci an Argon-41, entsprechend 20 % des genehmigten Jahreswertes emittieren. Dies ist, verglichen zu 1971, unter Berücksichtigung der erfolgten Leistungserhöhung ein sehr niedriger Wert. Er wurde vor allem erreicht durch erfolgreiche Abdichtungsmaßnahmen an den Experimentierkanälen. Die Wochenemissionen liegen jetzt zwischen 3 bis 8 Ci.

4. Emissionen an radioaktiven Aerosolen und Halogenen

Die Emissionen an radioaktiven Aerosolen und Halogenen sind im allgemeinen außerordentlich niedrig. In den letzten Jahren lagen sie in der Regel unter der Nachweisgrenze. Messbare Emissionen kommen im allgemeinen nur durch den Experimentierbetrieb zustande, beispielsweise durch den Bruch von Bestrahlungskapseln in Rohrpostanlagen, wobei vor etlichen Jahren einmal eine Emission an Brom-82 von etwa 0,9 mCi auftrat. Eine Undichtigkeit an einem Loopexperiment hatte vor 4 Jahren zu einer Jodemission von 127 mCi, verteilt auf 3 Wochen, geführt.
Wenn man die Emissionen an radioaktiven Aerosolen und Halogenen im Jahr 1971 für beide Reaktoren zusammenfaßt, so kann man feststellen, daß es sich dabei nur um radioaktive

Stoffe mit einer Halbwertszeit von weniger als 1 Tag gehandelt hatte, wobei eine Gesamtjahresemission von jeweils 5 . 10^{-4} Ci vorkam, entsprechend 0,1 % des genehmigten Jahreswertes.
1972 wurden am Reaktor FRJ-1 an Jod-131 7 · 10^{-5} Ci, entsprechend 0,08 % des genehmigten Jahreswertes emittiert. Hinzu kam eine Emission an J-133 von 10^{-3} Ci und an Rb-88/Cs-138 von 1,4 · 10^{-4} Ci, wobei beide jeweils 0,3 % des genehmigten Jahreswertes entsprachen.
Etwa dieselben niedrigen Emissionen an J-131 und J-132 sowie an Rb-88/Cs-138 wurden 1972 am Reaktor FRJ-2 festgestellt, wobei die Gesamtemissionen immer unter 1 % der genehmigten Jahreswerte lagen. Durch ein Versehen war nach Beendigung der Umbauarbeiten für die Leistungserhöhung der Kühlkreislauf für die Experimente mit einem chlorhaltigen Reinigungsmittel gereinigt worden. Dies führte zu einer vorübergehenden Cl-38-Emission, wobei eine Emissionsstärke von 4 . 10^{-5} Ci/h erreicht wurde. Die Gesamtemission betrug jedoch nur 1,2 . 10^{-3} Ci, entsprechend 0,24 % des genehmigten Jahreswertes.
Ein demonstratives Beispiel für die Registrierung einer Aerosol- und Halogenemission ergab sich im Herbst 1973 als am Reaktor FRJ-1 ein Brennelement schadhaft geworden war, so daß Spaltprodukte austraten. Dies führte zu einer Emission an J-131, J-132 und an Rb-88/Cs-138.

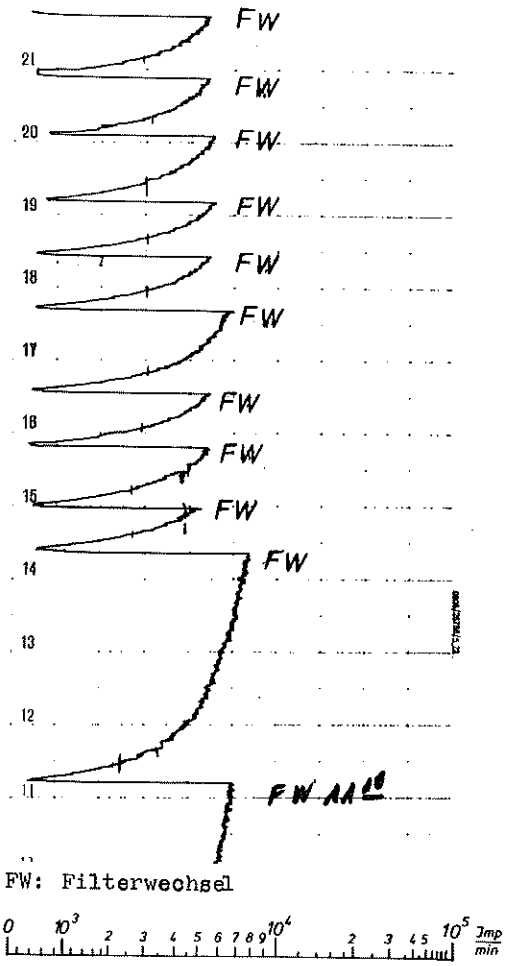


Abb 2: Registrierung einer Emission an radioaktiven Aerosolen und Halogenen am Reaktor FRJ-1

Abb. 2 zeigt die Emissionsmessung über eine Dauer von etwa 11 h, so wie es von dem Linienschreiber des Aerosolmonitors aufgezeichnet wurde. Die Anzeige erfolgt in Imp/min. Eine entsprechende Meßskala ist unten am Bild dargestellt.
Sobald der Grenzwert von 5000 Imp/min überschritten ist, wird vom Strahlenschutzpersonal ein Filterwechsel vorgenommen. Die Anzeige springt damit auf den Nulleffekt von etwa 400 Imp/min zurück. Deutlich sieht man den Anstieg der Impulsrate mit der Beaufschlagung des neu eingesetzten Meßfilters. Aus der Anstiegsgeschwindigkeit der Impulsrate in den ersten 15 min der Bestaubung wird die Emissionsstärke errechnet. Die Werte liegen hier bei 10^{-4} Ci/h. Die bestaubten Meßfilter werden nach ihrer Entnahme γ-spektrometrisch mit einem lithiumgedrifteten Germaniumdetektor ausgewertet. Im vorliegenden Falle ergab sich, daß die Emission zu 16 % aus J-131, zu 77 % aus J-132 und zu 7 % aus Rb-88/Cs-138 bestand. Die Emissionen an J-132 lagen dabei zwischen einigen Milli-Curie pro Woche bis zu maximal 17 mCi/Woche.
Schwierigkeiten bei diesem Meßverfahren bereitet zur Zeit noch die Selektivität der Meßfilter, insbesondere die Filtererschöpfung bei länger anhaltenden Halogenemissionen. Daher muß man sich auf die Meßergebnisse beschränken, die innerhalb der ersten 15 min bei der Bestaubung eines frischen Filters erhalten werden. Nur diese Meßwerte sind einigermaßen repräsentativ, wobei die Meßgenauigkeit bei 20 % liegt. Es wurde bei der hier vorliegenden Emission die Gelegenheit benutzt, die Filterwirkungsgrade für Jod und für Rubidium zu bestimmen. Hierzu sind bis zu 10 hintereinander liegende Meßfilter gleichzeitig bestaubt und anschließend einzeln ausgewertet worden. Setzt man die Summe der Impulsraten, die alle 10 Meßfilter liefern, gleich 100 %, so läßt sich daraus der Wirkungsgrad eines einzelnen Meßfilters ermitteln. Es zeigte sich, daß der Wirkungsgrad eines Meßfilters für Rb-88 99 % erreicht, für radioaktives Jod jedoch nicht mehr als 20 bis 25 % beträgt.

5. Tritium-Emissionen

Die Emissionen an Tritium am Reaktor FRJ-2 sind im Regelfall gering. Sie betragen etwa 100 bis 400 mCi/Woche und treten vor allem dann auf, wenn Tankhelium, das als Schutzgas über dem D_2O-Spiegel liegt, in das Abluftsystem entweicht. Dies ist der Fall, wenn die Trockner- und Adsorberanlage für das Tankhelium während einer Abschaltpause entlüftet wird.
1971 kam eine größere Tritiumemission infolge eines Zwischenfalles vor, bei dem fast 78 kg D_2O aus dem Tank austraten. Dabei wurde das D_2O bei abgeschaltetem Reaktor durch die noch in Betrieb befindlichen Hauptpumpen durch ein offenes Flußmeßrig-Rohr nach oben gedrückt, lief zunächst über die Topplatte und sickerte dann durch deren Stopfenritzen in den Topinnenraum.
Wie bereits früher berichtet [2], stieg die Tritiumkonzentration in der Atemluft innerhalb der Reaktorhalle nach dem Austritt des D_2O von einem Wert von etwa 10^{-6} $\mu Ci/cm^3$ sehr schnell an und erreichte nach ungefähr 90 min ihr Maximum von $1{,}8 \cdot 10^{-4}$ $\mu Ci/cm^3$. Sie fiel anschließend mit einer mittleren Halbwertszeit von etwa 1,7 h wieder ab. Etwa 15 min nach dem D_2O-Austritt begann die Tritiumemission. Sie erreichte erst nach 5 h die maximale Emissionsstärke von 300 mCi/h und fiel sodann mit einer mittleren Halbwertszeit von 9,3 h ab. Neue Emissionsspitzen derselben Größenordnung traten während der anschließenden Dekontaminationsarbeiten auf. Insgesamt sind bei diesem Vorfall über einen Zeitraum von 12 Tagen 23 Ci Tritium emittiert worden.
Trotz dieses Vorfalles betrug im Jahr 1971 die Tritium-Gesamtemission nur 42 Curie, entsprechend 7 % des genehmigten Jahreswertes.
Erhöhte Tritiumemissionen treten im übrigen auf, wenn es notwendig wird, den Reaktor-

tank zu entleeren, um dort Montagearbeiten ausführen zu können. Dies war beispielsweise 1972 während des Umbaues für die Erhöhung der Reaktorleistung von 15 auf 25 MW der Fall. Zur Verbesserung des Notkühlsystems mußten die Tank-Ablaufrohre für das D_2O aufgestockt werden, um damit einen höheren Tankwasserspiegel zu erreichen. Die Arbeiten wurden fernbedient von der Topplatte aus durchgeführt. Durch eine sorgfältige Trocknung des Tankinnenraumes konnte erreicht werden, daß keine erhöhte Tritiumkonzentration in der Atemluft auftrat, wobei der Tank ständig an das Abluftsystem angeschlossen war und damit auf Unterdruck gehalten wurde. Die maximale Wochenemission an H-3 erreichte einen Wert von 16,5 Ci. Die Gesamtemission im Jahr 1972 betrug 98 Ci, entsprechend 16 % des genehmigten Wertes.

6. Emissionsmessung vorwiegend ß-strahlender Edelgase

Die bisher beschriebenen Emissionsmeßverfahren sind in einem wesentlichen Punkt noch unvollständig. Es wurde nämlich noch nichts gesagt über die Emissionsüberwachung vorwiegend ß-strahlender Edelgase, wobei insbesondere an Krypton-85, aber auch an Xenon-133 gedacht sei. Es ist selbstverständlich, daß bei einer Spaltproduktemission auch eine Krypton- oder Xenon-Emission auftreten kann. In diesem Fall sprechen sowohl die Zählrohrsonde des Argonmonitors als auch das Endfensterzählrohr des Aerosolmonitors und der Methandurchflußzähler des Tritiummonitors gleichzeitig, jedoch mit unterschiedlichem Wirkungsgrad an. Als aus einem Loopexperiment vor einigen Jahren einmal eine definierte Menge an Xenon-133 in das Abluftsystem des Reaktors FRJ-2 abgelassen wurde, ergab sich die Möglichkeit, den Aerosolmonitor und den Tritiummonitor auf ihre Ansprechempfindlichkeit gegenüber Xenon-133 zu kalibrieren. Hiernach sind im Jahr 1972 an Xenon-133 insgesamt 0,25 Ci, entsprechend 0,03 % des genehmigten Jahreswertes, emittiert worden. 1971 war eine Xenon- oder Krypton-Emission an beiden Reaktoren nicht nachweisbar.
Inzwischen wurde eine Meßanordnung entwickelt, die es erlaubt, die Emission ß-strahlender Edelgase ohne Störung durch das an den Reaktoren FRJ-1 und FRJ-2 ständig vorhandene Argon-41 zu erfassen. Die Vorversuche *) hierzu sind abgeschlossen. Praktische Erfahrungen für die Emissionsmessung mit dieser neuen Meßapparatur liegen allerdings noch nicht vor.
Krypton-85 und Xenon-133 werden bei dieser Methode nach dem Differenzverfahren gemessen, wobei das Argon-41, das selbst eine ausgeprägte ß-Komponente hat, sich weitgehend eliminieren läßt. Die zu prüfende Abluft wird über eine kleine Pumpe durch eine Meßkammer getrieben, die im Nebenschluß zur Abluftleitung liegt. Als Detektoren dienen 2 ß-empfindliche Szintillationszähler, die an einen Differenzzählratenmesser angeschlossen sind, wie das in Abb. 3 dargestellte Meßschema zeigt.
Es sei P_V die vom Vorwärtszähler herrührende und P_R die vom Rückwärtszähler herrührende Impulsrate. Das Differenzratemeter mißt dann die Differenz

$$P_D = P_V - P_R$$

Der Szintillationszähler des Rückwärtszählers ist mit einer dünnen Aluminiumfolie abgedeckt. Soll nun beispielsweise Xenon-133 neben Argon-41 als Störstrahler gemessen werden, so gilt für die Impulsrate P_D

$$P_D = K_{Xe}\,\eta_{Xe} + K_{Ar}\,\eta_{Xe} - K_{Xe}\,\eta_{Xe}\,S_{Xe} - K_{Ar}\,\eta_{Xe}\,S_{Ar}$$

Dabei bedeuten K_{Xe} und K_{Ar} die Konzentrationen des Xe-133 bzw. Ar-41, η_{Xe} und η_{Ar} die entsprechenden Wirkungsgrade und S_{Xe} und S_{Ar} die durch die Aluminiumfolie verursachte Schwächung der von Xe-133 bzw. Ar-41 emittierten ß-Teilchen.

Eine ideale Messung wird es sicher geben für:

$$P_D = K_{Xe} \; \eta_{Xe}$$

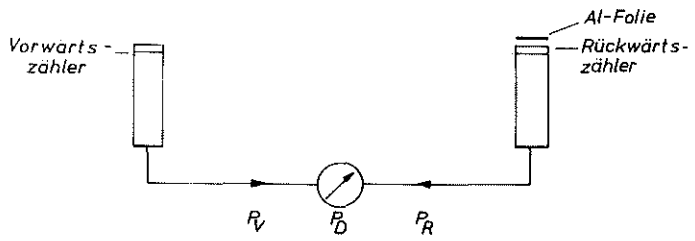
Dies ist erfüllt, wenn:

$$K_{Ar} \; \eta_{Ar} - K_{Xe} \; \eta_{Xe} \; S_{Xe} - K_{Ar} \; \eta_{Ar} \; S_{Ar} = 0$$

wird, was gleichbedeutend mit der Beziehung:

$$\frac{S_{Xe}}{1-S_{Ar}} = \frac{K_{Ar}}{K_{Xe}} \; \frac{\eta_{Ar}}{\eta_{Xe}}$$

ist. Das ist die Bedingungsgleichung für die Schwächungsfunktionen S_{Xe} und S_{Ar} bei einem vorgegebenen Verhältnis der Konzentrationen K_{Ar} und K_{Xe} sowie der zugehörigen Wirkungsgrade η_{Ar} und η_{Xe}.



Es ist $P_D = P_V - P_R$

oder $P_D = K_{Xe} \cdot \eta_{Xe} + K_{Ar} \cdot \eta_{Ar} - K_{Xe} \cdot \eta_{Xe} \cdot S_{Xe} - K_{Ar} \cdot \eta_{Ar} \cdot S_{Ar}$

Für $P_D = K_{Xe} \cdot \eta_{Xe}$

muß gelten $K_{Ar} \cdot \eta_{Ar} - K_{Xe} \cdot \eta_{Xe} \cdot S_{Xe} - K_{Ar} \cdot \eta_{Ar} \cdot S_{Ar} = 0$

oder $\frac{S_{Xe}}{1-S_{Ar}} = \frac{K_{Ar}}{K_{Xe}} \cdot \frac{\eta_{Ar}}{\eta_{Xe}}$

Abb 3:
Schema der Meßanordnung für vorwiegend β-strahlende Edelgase

Die Stärke der den Rückwärtszähler abdeckenden Al-Folie läßt sich so wählen, daß für

S_{Xe} und S_{Ar} die angegebene Beziehung in hinreichend weiten Grenzen gut erfüllt wird.
Zur Erprobung der Meßanordnung befanden sich die beiden Szintillationszähler in einer Meßkammer von etwa 390 l Inhalt, die ihrerseits an ein Schornsteinmodell angeschlossen war.
Der gesamte Rauminhalt, bestehend aus Schornsteinmodell, Schlauchleitungen, Meßkammer und Förderpumpe zur Umwälzung der Meßluft, betrug 950 l. Das benötigte Xe-133 und Ar-41 wurde in einer Bestrahlungseinrichtung des Reaktors FRJ-1 aktiviert. Die bei den Versuchen benutzten Aktivitätswerte lagen in der Größenordnung von 1 mCi. Das in Quarzampullen aktivierte Gas wurde verlustfrei in das Schornsteinmodell eingeblasen, wobei zur Zerstörung der Quarzampullen eine hierfür besonders konstruierte Zertrümmerungseinrichtung diente. Die Meßkammer enthielt einen Stempel, der es ermöglichte, die Luftsäulenhöhe über den Szintillatoren zwischen 1 und 21 cm zu variieren und damit die Wirkungsgrade η_{Ar} und η_{Xe} innerhalb gewisser Grenzen zu ändern. Als geeignet ergab sich eine Luftsäulenhöhe von 4 cm.
Zur Abdeckung des Rückwärtszählers wurde dabei eine Al-Foliendicke von $4{,}5 \cdot 10^{-3}$ cm, entsprechend einer Flächenbelegung von 12,1 mg/cm^2 gewählt. Unter diesen Bedingungen lag die empfindlichste Messung vor, wenn die Konzentration des Ar-41 das 3-fache derjenigen des Xe-133 war. Dabei ließ sich gut Xe-133 in dem Bereich von $1{,}6 \cdot 10^{-6}$ µCi/cm^3 bis $5{,}3 \cdot 10^{-3}$ µCi/cm^3 messen.
Für Krypton-85 liegen die Verhältnisse etwas ungünstiger, da die ß-Energie des Kr-85 sich von der ß-Energie des Ar-41 nur um den Faktor 1,8 unterscheidet, während die ß-Energie des Xe-133 bereits um den Faktor 3,4 geringer ist als diejenige des Ar-41. Es ist selbstverständlich, daß das hier beschriebene Verfahren um so besser geeignet ist, je größer sich die Differenz zwischen der ß-Energie des Meßgases und des Störstrahlengases ergibt. Bei geeigneter Al-Folienwahl ist jedoch auch für Kr-85 eine gute Kompensation gegenüber dem Störstrahlengas Ar-41 möglich.

*) Die Firma Berthold/Frieseke stellte für die Vorversuche die elektronische Ausrüstung zur Verfügung. Es sei die Gelegenheit benutzt, für dieses Entgegenkommen den besten Dank auszusprechen.

Literaturhinweise

[1] H. Jahn: Eine einfache Meßanordnung für die Überwachung der Emission von Argon-41. Tagungsbericht 4. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz e.V., Berlin, 28. - 30. Mai 1969, Seite 113.

[2] H. Jahn: Tritium-Überwachung an einem Forschungsreaktor. Tagungsbericht 6. Jahrestagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Kernforschungszentrum Karlsruhe 17. - 19. Mai 1972, Seite 65.

RAUM- UND ABLUFTOBERWACHUNG IN EINEM INDUSTRIELABORATORIUM

G. SCHULZE-PILLOT

FARBWERKE HOECHST AG.,
RADIOCHEMISCHES LABORATORIUM, FRANKFURT

Z u s a m m e n f a s s u n g

Es wird über Erfahrungen in der Raumluftüberwachung mit einem Schnüffelsystem berichtet, das in den Betalaboratorien mit Durchflußzähler und in den Gammalaboratorien mit einer Kohlepapierfiltersonde ausgerüstet ist. Nachweisempfindlichkeit und Alarmgabezeit für verschiedene Nuklide und Aktivitätskonzentrationen werden diskutiert. Entsprechende Überlegungen werden für die Abluftüberwachung angestellt.

1. E i n l e i t u n g

Der folgende Bericht bezieht sich auf das Radiochemische Laboratorium der Farbwerke Hoechst. Der Kontrollbereich, in dem 15o Personen tätig sind, erstreckt sich auf zwei durch einen Gang verbundene Gebäude. Ein Gebäude ist als Betalabor ausgelegt zum Arbeiten mit ^{3}H, ^{14}C und ^{35}S für pharmakokinetische, biologische und anwendungstechnische Untersuchungen. Das andere Gebäude ist für Arbeiten mit Gammastrahlern eingerichtet, hauptsächlich für die Produktion von Radiopharmaka und die dazugehörige Forschung. Hier werden die J- und Hg-Isotope, ^{198}Au, $^{99}Mo/Tc$ und andere gammastrahlende Nuklide verarbeitet. Der Aktivitätsmaßstab reicht in beiden Gebäuden von Curie-Mengen bei der Synthese bis zu nCi-Mengen bei biologischen Untersuchungen.

2. R a u m l u f t ü b e r w a c h u n g

2.1 P r i n z i p

In die Raumluftüberwachung sind alle Räume einbezogen, in denen über der Freigranze gearbeitet wird. Dazu gehören neben radiochemischen Laboratorien z.B. auch biologische Arbeitsräume für Steril- und Pyrogentest und technische Räume für Abfall-Lagerung und -Behandlung.

In jedem überwachten Raum ist eine Schnüffelleitung mit einem Meßgerät installiert. Das Schnüffelsystem besteht aus einer Ringleitung mit Zweigrohren, die an den Boxen und Abzügen in Kopfhöhe mit offenem Rohr enden. Der angesaugte Luftstrom ist mit einigen m^3/h so niedrig, daß die Luftbewegung an den Arbeitsplätzen nicht gestört wird.

Als Meßgeräte verwenden wir im Betalabor den TMH von Kimmel, im Gammalabor Filtersonden mit Kohlepapier, die mit Zählrohr oder Szintillationszähler betrieben werden (1). Die Registrierung aller Meßstellen ist in der Überwachungszentrale zusammengeführt. Bei Grenzwertüberschreitung wird in der Zentrale und im überwachten Raum Alarm gegeben.

2.2 Betalabor

Eine Luftkontamination in der Größe der MZK ergibt im TMH für ^{3}H das Fünffache des Nulleffektes, für ^{14}C-Verbindungen knapp das Doppelte des Nulleffektes. In Verbindung mit dem Schnüffelsystem ist die Nachweisempfindlichkeit geringer, wenn nur ein Teil der Saugrohre im Bereich der Luftkontamination liegt. Mit diesem System ist die MZK von Tritium noch mit Sicherheit zu messen, während die Nachweisgrenze für ^{14}C-Verbindungen etwa bei der doppelten MZK liegt.

Zur Alarmauslösung bei höheren Konzentrationen, etwa über der 1o-fachen MZK, eignet sich das Schnüffelsystem mit dem TMH sowohl für ^{3}H wie für ^{14}C. Die Laufzeit im Schnüffelsystem liegt bei wenigen Sekunden, die Zeitkonstante zum Auffüllen des Zählrohres auf 5o % Endkonzentration beträgt etwa 1 min. Ebenso groß wird i.a. die Dämpfung im Bereich $1o^{3}$ ipm gewählt. Bei 1o-facher MZK wird damit 1 bis 2 min nach Eintritt der kontaminierten Luft in das Schnüffelsystem Alarm ausgelöst. Höhere Konzentrationen lösen den Alarm in entsprechend kürzeren Zeiten aus. Die Mindestzeit, gegeben durch die Laufzeit im Schnüffelrohr, beträgt 5 bis 1o sec.

2.3 Gammalabor

Die wichtigsten Nuklide für die Raumluftüberwachung im Gammalabor sind die Jod- und Quecksilberisotope. Die Filtersonde ist für den Nachweis von ^{125}J mit Szintillationszähler ausgerüstet, für den Nachweis der anderen Nuklide wird ein Geigerzähler verwendet.

Die Akkumulation im Filterpapier ergibt bei konstanter Aktivitätskonzentration der Luft eine lineare Zunahme der Impulsrate mit der Zeit. Die Steigung der Geraden, die der Schreiber registriert, ist proportional zur Aktivitätskonzentration. Eine Luftkontamination von ^{131}J in Größe der MZK kann man mit einer Impulsrate in Höhe der Nulleffektsrate in 5 min nachweisen, wenn die Luftkontamination an allen Schnüffelrohren auftritt. Werden nur 15 % der Rohre von der Kontamination erfaßt, so braucht die Akkumulation im Filter 1/2 Stunde bis zum Erreichen der Nulleffektsrate. Bei 1o-facher MZK liegt die Nachweiszeit zwischen 1 und 5 min. Noch kürzer sind die Nachweiszeiten für die MZK der Hg-Isotope, die 1o bis 1oo mal höher liegt als bei ^{131}J.

2.4 Erfahrungen mit der Raumluftüberwachung

Das Schnüffelsystem hat die Aufgabe, in jedem Raum laufend alle Arbeitsplätze auf Luftkontamination zu überwachen. Zur Beurteilung der Arbeitsweise muß man zwei Arten von Kontaminationsfällen unterscheiden, einmal den Aktivitätsausbruch, verursacht durch Brechen oder Aufreißen von Apparateteilen oder durch grobe Fehler in der Handhabung von Apparaten, andererseits die schwache Luftkontamination über längere Zeiten, verursacht durch kleine Undichtigkeiten in Apparaturen oder durch Fehler in der Luftführung am Arbeitsplatz.

Das System hat sich gut bewährt, um bei plötzlich auftretenden stärkeren Luftkontaminationen rasch Alarm zu geben, so daß Inkorporationen mit Überschreitung der maximal zulässigen Belastung des kritischen Organs vermieden werden konnten.

Schwächere Kontaminationen über mehrere Stunden werden aus der Schreiberregistrierung und aus der Digitalmessung der täglich gewechselten Filterblättchen ausgewertet. Sie geben zunächst den Hinweis, daß an einem der Arbeitsplätze ein Fehler aufgetreten ist. Zur Fehlersuche setzen wir im Betalabor einen fahrbaren TMH-Meßplatz ein. Im Gammalabor verwenden wir ein polypenartiges Schlauchsystem mit Filtermeßköpfen, das mit 1o oder 2o Meßstellen über den Raum verteilt wird. Die digitale Auswertung der Filter nach einigen Stunden Saugzeit gibt ein quantitatives Bild der Konzentrationsverteilung im Raum. So ortet man zunächst den Arbeitsplatz, der die Luftkontamination verursacht und findet durch Auslegen der Meßköpfe am Arbeitsplatz auch die Quelle der Kontamination. In dieser Weise prüfen wir auch die Luftführung an Abzügen und die Wirkungsweise von Schleusen bei der Inbetriebnahme neuer Arbeitsplätze.

3. Abluftüberwachung

Die beiden Gebäude für das Beta- und das Gammalabor haben eigene Abluftkamine. Zur Abluftüberwachung ist im Betalabor ein LB-1o6 von Berthold zur Messung von ^{3}H und ^{14}C eingesetzt. Im Gammalabor verwenden wir den gleichen Filtermeßkopf wie bei der Laborluftkontrolle. Da die MZK-Werte für die Außenluft um den Faktor 3o niedriger liegen als für die Laborluft, ist die quantitative Bestimmung niedriger Konzentrationen nur über größere Zeitintervalle möglich.

3.1 Betalabor

Bei der Abluftkontrolle im Betalabor registrieren wir die Impulsraten am LB-1o6 logarithmisch, um Konzentrationsspitzen ohne Meßbereichsumschaltung zu erfassen. Zur quantitativen Bestimmung niedriger Konzentrationen werden die Impulsraten im ^{3}H- und ^{14}C-Kanal digital gezählt und stündlich ausgedruckt. Damit können Luftkontaminationen in der Größe der MZK für beide Nuklide mit einer statistischen Unsicherheit von 1o-2o % bestimmt werden.

3.2 Gammalabor

Bei der Abluftkontrolle im Gammalabor mit der Filtersonde kann ein Konzentrationsanstieg über die MZK von ^{131}J nach 1 Stunde bestimmt werden, für höhere Konzentrationen sind die Nachweiszeiten entsprechend kürzer. Die tägliche Auswertung der Filter am Halbleiterdetektor mit Vielkanalanalysator erlaubt die Bestimmung der einzelnen Komponenten der Abluftkontamination bis auf 1 ‰ der MZK.

3.3 Erfahrungen mit der Abluftüberwachung

Aufgabe der Abluftüberwachung ist es, auf Grund der Meßwerte die Arbeitsweise im Labor und die Filterung so einzurichten, daß die Abluftkonzentration so niedrig wie möglich ist.

Im Betalabor enthält die Abluft ^{3}H- und ^{14}C-Verbindungen. Diese werden selbst durch Feinstfilter nur geringfügig zurückgehalten. Für Tritium und $^{14}CO_2$ gibt es überhaupt keine Rückhaltung. Hier muß beim Auftreten einer starken Konzentrationserhöhung in der Abluft ermittelt werden, von welchem Arbeitsplatz die Emission verursacht wird, um die Auslegung der Apparatur zu verbessern oder die Reaktionsführung zu ändern. Zeigen sich Konzentrationswerte in der Größe der MZK über Zeiten von Stunden, so

wird die Emissionsquelle durch schrittweises Kontrollieren der einzelnen Abzugs- oder Boxen-Abluftkanäle ermittelt. Da der einzelne Kanal die Abluftkontamination konzentrierter führt als der Sammelkamin, kann für diese Kontrolle ein fahrbarer Meßplatz mit TMH verwendet werden.

Im Gammalabor wurden alle Arbeiten mit J- und Hg-Isotopen, bei denen Aktivitätsmengen etwa über 1 µCi entweichen können, in Boxen mit Aktivkohlefilterung verlegt. Bei zweistufiger Kohlefilterung mit einem Dekontaminationsfaktor von etwa 10^5 enthält die Boxenabluft nur noch Aktivitätsmengen von wenigen µCi pro Tag. Die Abluftkonzentration liegt damit immer unter der MZK. Ein Vergleich der Konzentration im Sammelkamin mit der Konzentration in der Boxenabluft vor ihrem Eintritt in den Sammelkamin zeigt die Luftkontamination aus Abzügen mit normaler Filterung. Treten hier Konzentrationen auf, die einer Emission von einigen µCi pro Tag entsprechen, so wird der emittierende Arbeitsplatz durch Ausmessen der in den Abzügen freigesetzten Aktivität festgestellt. Die Arbeit wird dann, wenn sich der Ablauf nicht ändern läßt, in eine Kohlefilterbox verlegt.

L i t e r a t u r :

(1) H. Hemmerling, D. Jung und G. Schulze-Pillot
Sonde mit Aktivkohlepapierfilter zur Luftüberwachung,
Bericht über die Tagung des Fachverbandes für Strahlenschutz, Berlin, Mai 1969

RAUMLUFTOBERWACHUNG IN DEN LABORATORIEN DER KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH

H. JACOBS

KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH,
ZENTRALABTEILUNG STRAHLENSCHUTZ

Zusammenfassung

Bei der vorsorglichen Raumluftüberwachung in den Laboratorien der KFA Jülich ist in der Vergangenheit - von wenigen Ausnahmen abgesehen - keine von der natürlichen Luftaktivität abweichende Luftkontamination gemessen worden. Die wenigen positiven Werte lagen unterhalb der für Kontrollbereiche maximal zulässigen Konzentrationen. - Die über zehnjährigen Erfahrungen beim Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen in der KFA zeigen, daß eine vorsorgliche Überwachung der Atemluft der Beschäftigten in der Regel dann entfallen kann, wenn ein wirksamer vorbeugender Strahlenschutz und eine ständige Strahlenschutzüberwachung gewährleistet sind.

1. Einleitung

Die Kernforschungsanlage Jülich ist ein Großforschungszentrum mit etwa 4000 Beschäftigten.
Die Forschungs- und Entwicklungsprogramme, die weite Bereiche der Physik, Chemie, Lebenswissenschaften, Festkörperforschung, Ingenieurswissenschaften überdecken, werden in 25 Instituten und Gemeinschaftseinrichtungen und in mehreren Großprojekten durchgeführt. Auftragsgemäß liegt ein Schwerpunkt der Arbeiten auf der Entwicklung und Technologie von Reaktoren bzw. Reaktorkomponenten. Als größere Einrichtungen sind zu nennen drei Reaktoren, ein Isochronzyklotron und Heiße Zellen. Die KFA betreibt außerdem die Landessammelstelle für radioaktive Abfälle.

In die folgenden Betrachtungen sind n i c h t einbezogen die Reaktoren und die Beschleunigeranlagen, da über diese an anderer Stelle berichtet wird.

Die Abluftüberwachung wird im Rahmen dieses Themas bewußt nicht behandelt, da aus ihren Ergebnissen keine direkten Schlüsse auf die Gefährdung der Beschäftigten am Arbeitsplatz gezogen werden können. Auch die Raumluftüberwachung nach Zwischenfällen bleibt hier ausgeklammert. Sie läßt keine repräsentativen Folgerungen für den normalen Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen zu.

2. Überblick über die Laboratorien und den Umgang mit radioaktiven Stoffen

Die Gesamtfläche der Kontrollbereiche des Teiles der KFA, über den hier berichtet wird, beträgt 31.000 m^2 (Tabelle 1). Auf 27.000 m^2 wird mit offenen radioaktiven Stoffen umgegangen. Die Zahl der Beschäftigten in diesen Kontrollbereichen liegt derzeit bei 1.230, von denen etwa 50 % Umgang mit offenen Stoffen haben.

Die für die einzelnen Institute genehmigten Umgangsmengen betragen für die üblichen Typ-B-Laboratorien für sonstige radioaktive Stoffe beliebiger Art das 10^6-fache der Freigrenze, wobei der Wert für die gleichzeitige Verwendung in der Regel um eine oder zwei Größenordnungen darunter liegt. In Einzelfällen sind auch normalen Laboratorien höhere Werte genehmigt, wobei diese Genehmigungen sich aber dann auf bestimmte Nuklide und bestimmte Umgangsarten erstrecken. (10^7 bis 10^8-faches der Freigrenze.)

Die Genehmigung für die Heißen Zellen läßt für beliebige sonstige radioaktive Stoffe, wenn sie fest und nicht staubförmig sind, eine gleichzeitige Verwendung bis zum 10^{12}-fachen der Freigrenze zu, bzw. bis zum 10^{10}-fachen, wenn die Stoffe stäubend oder flüssig sind. Der tatsächliche Bestand an offenen sonstigen radioaktiven Stoffen in der KFA liegt derzeit bei etwa 20.000 Ci. Das entspricht dem $2 \cdot 10^{10}$-fachen der Freigrenze, wenn man als Freigrenze den Wert 1 µCi zugrunde legt. Die Umgangsgenehmigungen sind somit nur zum Teil ausgeschöpft.

Tabelle 1

Überblick über die hier betrachteten 20 Laboratorien

Gesamtfläche	97.000 m^2
Davon Kontrollbereiche	31.000 m^2
Kontrollber. mit offenem Umgang	27.000 m^2
Gesamtzahl der Beschäftigten	2.820
Beschäftigte in Kontrollber.	1.230
Beschäftigte mit offenem Umgang	590

3. Kriterien für die Notwendigkeit einer Raumluftüberwachung

Kriterien, nach denen eine vorsorgliche Raumluftüberwachung festgelegt werden könnte, sind weder gesetzlich vorgeschrieben, noch in nationalen oder internationalen Empfehlungen niedergelegt.
Die Umgangsaktivitäten allein können noch keinen sinnvollen Anhaltspunkt für das Risiko einer Raumluftkontamination oder gar einer Inkorporation geben. Wenn man dieses Risiko abschätzen will, muß man sicherlich noch eine Anzahl weiterer Faktoren berücksichtigen, wie z.B. Stoffmenge, an welche die Aktivität gebunden ist, chemische und physikalische Beschaffenheit, Umgangsart und Umgangshäufigkeit. In der Praxis dürfte es in der Vergangenheit jedoch allgemein üblich gewesen sein, daß die Strahlenschutzverantwortlichen die Raumluftüberwachung mehr aus dem Gefühl heraus angeordnet haben.

Im Land Nordrhein-Westfalen ist seit 1968 durch einen Ministerialerlaß die vorsorgliche Inkorporationsüberwachung für einen nach bestimmten Kriterien festgelegten Personenkreis vorgeschrieben. Für die KFA Jülich sind diese Kriterien nach einem Vorschlag der Zentralabteilung Strahlenschutz der KFA modifiziert worden.
(Siehe: Keller,M. in Jül-603-ST, (1969) S. 157-174)

Die Anwendung der modifizierten Kriterien auf die 20 Institute und Einrichtungen, in denen ein offener Umgang stattfindet, führte zu dem Ergebnis, daß in 7 der 20 Institute eine regelmäßige Inkorporationsüberwachung nicht notwendig ist. In den übrigen Instituten wird eine Inkorporationsüberwachung durchgeführt, wobei derzeit etwa 300 Personen durch Ganzkörpermessungen und/oder Ausscheidungsanalyse untersucht werden.

Es erscheint nicht unvernünftig zu sagen, daß im Prinzip gleiche Kriterien auch für die vorsorgliche Raumluftüberwachung anwendbar sein müßten, d.h. in den Laboratorien, in denen eine Inkorporationsüberwachung notwendig ist, sollte auch eine Raumluftüberwachung angebracht sein. In der Tat ist das in der KFA in der Vergangenheit auch so praktiziert worden, wobei nicht ausgeschlossen werden soll, daß es in einigen Fällen mehr unbewußt geschehen ist: In den 7 Instituten ohne Inkorporationsüberwachung wird auch keine Raumluftüberwachung durchgeführt. In 12 Instituten wird die Luftkontamination gelegentlich, d.h. vor allem bei neuen Experi-

menten oder bei Arbeiten mit erhöhtem Kontaminationsrisiko, gemessen. Nur eine Einrichtung, die Heißen Zellen, betreibt kontinuierlich arbeitende festinstallierte Raumluftüberwachungsanlagen. Sie waren eine Genehmigungsvoraussetzung.

4. Angewendete Methoden und Geräte

G e l e g e n t l i c h e Luftüberwachung

Der gelegentliche Einsatz von Luftüberwachungsgeräten wird vom Strahlenschutzverantwortlichen festgelegt. Das geschieht in der Regel dann, wenn neue Experimente in Betrieb gehen, oder neue Arbeitstechniken angewendet werden. Nur in einem Fall erfolgt die Überwachung aufgrund einer Auflage in der Umgangsgenehmigung.

Luftstaubsammlung und Messung getrennt

Für die Aerosolsammlung werden in der KFA verschiedene Geräte mit unterschiedlichem Luftdurchsatz (40 - 150 m^3/h) und unterschiedlicher Filterfläche (3 - 20 cm Ø) eingesetzt. (Haushaltstaubsauger, Mauler, Staplex etc.) Die Filterausmessung erfolgt in üblichen Strahlungsmeßgeräten, bzw. durch γ-Spektrometrie.

Luftstaubsammlung und Messung gleichzeitig

Am häufigsten wird ein Festfiltergerät von Herfurth, Typ 1350 verwendet. (2,2 cm Ø Filterfläche, 1,4 m^3/h Luftdurchsatz, GM-Detektor.)

Gasmessungen

Für die Tritiumüberwachung werden Tritium-Monitore (Kimmel, Baird Atomic, Berthold) eingesetzt, bei denen die Luft dem Zählgas eines Proportionalzählers zugemischt wird. In den Heißen Zellen dienen zwei 40 l Ionisationskammern der Edelgasüberwachung.

Direkte Atemluftmessungen

Vereinzelt sind kleine batteriebetriebene Taschengeräte im Einsatz, bei denen die Luftansaugung in Mundnähe des Trägers erfolgt und deren Luftdurchsatz der eingeatmeten Luftmenge des Menschen entspricht. ("Persönliche Luftsammler")

K o n t i n u i e r l i c h e Raumluftüberwachung

Wie bereits vorhin erwähnt, sind kontinuierliche, festinstallierte Raumluftüberwachungsanlagen (Typ Berthold) nur in den Heißen Zellen in Betrieb. Hier sind sieben Anlagen installiert. (Alle sonstigen festinstallierten Luftüberwachungsanlagen dienen der Abluftüberwachung direkt im Abluftsystem, bzw. im Kamin.)

5. Ergebnisse der Raumluftüberwachung

Von wenigen Ausnahmen abgesehen ist bei der Raumluftüberwachung in den hier betrachteten Laboratorien der KFA in der Vergangenheit kein vom Background (= natürliche Luftaktivität) abweichender Wert gemessen worden. Die wenigen positiven Werte lagen außerdem unterhalb der für Kontrollbereiche maximal zulässigen Konzentrationen.

Selbst im Lager für radioaktive Abfälle, in dem zum Teil noch sortiert und konfektioniert wird, sind, wie Abb. 1 zeigt, in den Jahren 1971, 1972 und 1973 bei der gelegentlichen Raumluftüberwachung keine Werte oberhalb 10^{-10} $\mu Ci/cm^3$ gemessen worden.*)

---

*)Die Messungen wurden von Herrn Rodenbäck und seinen Mitarbeitern durchgeführt. Ihnen sei an dieser Stelle für die Überlassung der Ergebnisse herzlich gedankt.

Das heißt, die zulässige "β-Luftkontamination" ist niemals überschritten worden, wenn man den Wert für Gemische von $3 \cdot 10^{-10}$ µCi/cm^3 in der Luft von Kontrollbereichen zugrunde legt. Die gemessenen α-Luftkontaminationen lagen ebenfalls unter dem zulässigen Wert. (Beliebige Gemische = $1{,}2 \cdot 10^{-12}$ µCi/cm^3)
Bei den im Lager für radioaktive Abfälle gemessenen Luftkonzentrationen dürfte es sich darüber hinaus immer um sehr kurzzeitige, punktuelle Kontaminationen gehandelt haben. Wären es länger andauernde, großvolumig verteilte Luftkontaminationen gewesen, dann hätten die Inkorporationsüberwachungen bei dem beschäftigten Personal positive Ergebnisse zeigen müssen: In dem in Abb. 1 aufgeführten Zeitraum sind insgesamt 240 Personen mit dem Bodycounter auf Inkorporation überwacht worden. In keinem Falle wurde ein vom Nullspektrum abweichender Wert festgestellt. Eine Beziehung zwischen Luftkontamination und Inkorporation konnte hier nicht gefunden werden. Hier, wie auch in dem folgenden Beispiel, wurden nur die Ergebnisse der vorsorglichen Inkorporationsüberwachung berücksichtigt, d.h. die Ergebnisse von Zwischenfallsmessungen sind nicht mit aufgenommen.
In einem anderen Institut der KFA, in dem ein hoher Umgang mit Uran und Thorium stattfindet, haben wir uns einmal die Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung durch Ausscheidungsanalyse angeschaut mit dem Ziel, Hinweise für erhöhte Atemluftkontamination zu erhalten. Von 1966 bis 1973 sind dort insgesamt 1070 Untersuchungen durchgeführt worden. Nahezu alle Werte lagen in dem von uns früher einmal an einer Referenzgruppe ermittelten Schwankungsbereich der natürlichen Uranausscheidung. (0,3 bis 1,5 µg/l) 1 % der Fälle zeigten geringfügige Erhöhungen bis zu 2 µg/l. Auch diese Werte sind so wenig relevant, daß ein Verfolgen zu keinen sinnvollen Aussagen führen kann. Nur zweimal konnten deutlich höhere Werte festgestellt werden (12 und 145 µg/l). Der hohe Wert von 145 µg/l erwies sich bei einer sorgfältigen Nachprüfung als Kontamination der Sammelflasche, der 12 µg/l Wert konnte nicht aufgeklärt werden. Hier ist Inkorporation naheliegend, wobei jedoch nicht feststeht, ob es sich um Inhalation oder Ingestion handelt.
Die in diesem Institut sporadisch durchgeführte Luftüberwachung hat nie signifikante Luftkontaminationen gezeigt. Also ist auch hier keine Beziehung zwischen Inkorporation und Luftkontamination zu finden.

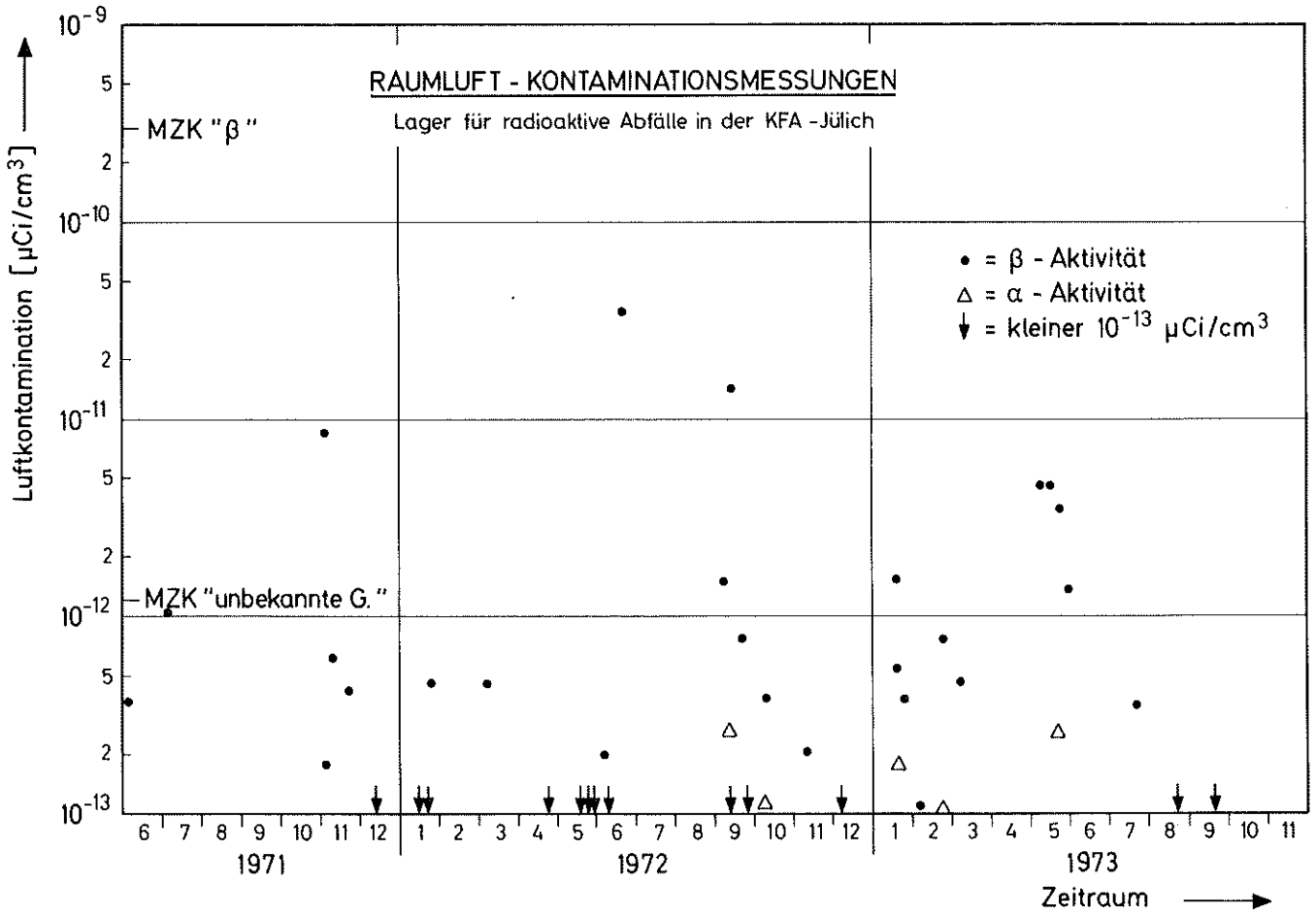
6. Diskussion

Die Gründe für diese sehr beruhigenden Erfahrungen in der KFA dürften im wesentlichen in zwei Punkten zu suchen sein.

a) Sorgfalt bei Experimentplanung und -aufbau. Die Dienstordnung für Strahlenschutzverantwortliche in der KFA schreibt vor, daß bei Experimenten mit offenen radioaktiven Stoffen oberhalb der 100-fachen Freigrenze vor Inbetriebnahme eine Strahlenschutzüberprüfung erfolgen muß. Das bedeutet in der Praxis, daß schon die Planung unter Beteiligung von Strahlenschutzfachleuten erfolgt. Die vorhandenen Hilfsmittel und Arbeitstechniken müssen effektiv sein. Selbst wenn Experimente nicht in geschlossenen oder quasi-geschlossenen Systemen (Zellen, Gloveboxen, Abzügen) durchgeführt werden können, so genügen bereits in vielen Fällen einfache Hauben mit Absaugleitungen, bzw. Berieselungen, die ohne nennenswerten Aufwand installiert werden können und die Verbreitung auftretender Kontaminationen verhindern.

b) Ständige Kontrolle und Überwachung des Umgangs durch Strahlenschutzfachleute. Eine gute Zusammenarbeit zwischen Experimentatoren und dem Strahlenschutzpersonal ist eine Voraussetzung für eine wirksame Überwachung. Dabei muß erreicht werden, daß die Kontrollen des Strahlenschutzes nicht als lästige Einmischung angesehen werden.

Die Beachtung dieser beiden Punkte kann zu einer echten Verhinderung von Raumluftkontaminationen führen, während die Raumluftüberwachung allenfalls bereits aufgetretene Kontaminationen anzeigen kann. Und selbst das ist nur bedingt möglich, da Kontaminationen punktuell auftreten können und sich dann sehr inhomogen in der Raumluft verteilen. Eine repräsentative Probennahme ist in diesen Fällen nur mit extrem hohen technischen Aufwand möglich. (Viele Ansaugstellen, hohe Saugleistungen, etc.) In der Praxis kann oft beobachtet werden, daß übliche Kontaminationsmonitore früher eine Luftkontamination anzeigen, als die Luftüberwachungsanlagen.
In der Zukunft dürften die "persönlichen Luftsammler" wieder an Bedeutung gewinnen. Diese einfachen und billigen Geräte sollten zumindestens in der Lage sein, einen Beitrag zur Beweissicherung bei inhalierten Aktivitäten zu liefern. Entsprechend den sich in Vorbereitung befindlichen neuen ICRP-Empfehlungen, die bekanntlich mit einer gewissen zeitlichen Verzögerung zu nationalen Gesetzen führen, wird es in Zukunft nicht mehr notwendig sein, beim Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen den Beweis zu führen, daß maximal zulässige Luftkonzentrationen unterschritten werden. Diese MZK-Werte werden nicht mehr tabelliert. Vielmehr wird es erforderlich sein, sicherzustellen, daß die maximal zulässige Jahresdosis durch inkorporierte radioaktive Stoffe nicht überschritten wird. Das heißt, die regelmäßige Inkorporationsüberwachung durch Ganzkörpermessung oder Ausscheidungsanalyse kann sinnvoll ergänzt werden durch eine möglichst direkte Überwachung der Atemluft der Beschäftigten.



GEGENÜBERSTELLUNG DER ERGEBNISSE DER RAUMLUFTÜBERWACHUNG UND DER INKORPORATIONSÜBERWACHUNG IM KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

L.A. KÖNIG, E. PIESCH
GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG MBH, KARLSRUHE
ABT. STRAHLENSCHUTZ UND SICHERHEIT

H. SCHIEFERDECKER
GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG MBH, KARLSRUHE
MEDIZINISCHE ABTEILUNG

Zusammenfassung

Die Ergebnisse der Raumluftüberwachung und der Inkorporationsüberwachung für das Jahr 1972 werden einander gegenübergestellt. Dabei zeigt sich, daß die Ergebnisse der Raumluftüberwachung kaum Rückschlüsse auf die Höhe der zu erwartenden Inkorporationen zulassen. Gründe hierfür sind neben der Auswirkung von Atemschutzmaßnahmen nuklidabhängig nichtkorrespondierende Nachweisgrenzen der verschiedenen Überwachungsmessungen sowie die i.a. nichtrepräsentative Probenahme bei der Luftprobenahme. Hervorhebenswert ist der geringe Anteil der Inkorporationsfälle an der Strahlenbelastung der überwachten Mitarbeiter.

1. Einleitung

Die Strahlenschutzaufgaben in größeren kerntechnischen Anlagen sind wegen ihres Umfangs und ihrer Vielfalt nur in Zusammenarbeit spezialisierter Teams zu bewältigen. Von dieser Zusammenarbeit hängt der Erfolg aller Bemühungen ab. Dies gilt insbesondere auch für die Arbeitsbereiche Arbeitsplatz- und Inkorporationsüberwachung, wo der Erfolg der Arbeitsplatzüberwachung und die Berechtigung des getriebenen Aufwands an den Ergebnissen der Inkorporationsüberwachung gemessen werden können. Umgekehrt helfen die Ergebnisse der Arbeitsplatzüberwachung, die Inkorporationsüberwachung wirksam und ökonomisch durchzuführen.

Von besonderem Interesse ist die Überprüfung des Aufwandes zur Luftüberwachung. Wegen der hohen Kosten gilt es sorgfältig abzuwägen, ob der getriebene Aufwand bezüglich Quantität und Qualität der Geräte angemessen ist. Z.B. erfaßt eine kontinuierlich arbeitende Luftüberwachungsanlage, wenn sie in dem zu überwachenden Labor steht, nur einen Bruchteil der in dem Raum zur Verfügung stehenden Atemluft. Überwacht sie dagegen die Abluft dieses Labors, so mißt sie einen räumlichen Mittelwert, der besonders bei aerosolförmigen Luftkontaminationen erheblich unter der maximalen Konzentration in dem betreffenden Raum liegen kann. Aus rein wirtschaftlichen Überlegungen heraus muß immer ein Kompromiß angestrebt werden, der den Strahlenschutzerfordernissen vollauf genügt, aber bezüglich der Kosten realistisch bleibt. Da die Art der Überwachung (Probenahmeorte und Meßverfahren) im voraus festgelegt werden muß, ist die fortlaufende Überprüfung der getroffenen Entscheidungen wichtig.

Vorliegende Arbeit stellt einen Versuch dar, den Nutzeffekt der Luftüberwachung anhand der Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung zu überprüfen. Es wird zunächst ein Überblick über die Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung gegeben, denen dann die Ergebnisse der Luftüberwachung gegenübergestellt werden. Es werden nur Ergebnisse aus dem Jahr 1972 verwendet, was wegen der laufenden Verbesserung der Überwachung und insbesondere wegen der Zunahme der im Kernforschungszentrum Karlsruhe gehandhabten offenen Aktivität naheliegt.

2. Ergebnisse der Inkorporationsüberwachung

Die Inkorporationsüberwachung erfolgt im Kernforschungszentrum Karlsruhe durch Direktmessung und durch Ausscheidungsmessungen.

2.1 Direktmessung der inkorporierten Aktivität

Die meisten Radionuklide können direkt mit ausreichender Empfindlichkeit im Human Body Counter gemessen werden. Bei einigen α-Strahlern (z.B. ^{235}U, ^{238}U, ^{238}Pu, ^{239}Pu, ^{241}Am, ^{244}Cm) ist zwar eine Direktmessung in der Lunge über die L-Röntgenstrahlung möglich, aber der Nachweis im übrigen Körper ist infolge der Absorption der niederenergetischen Strahlung im Körpergewebe zu unempfindlich bzw. unmöglich.

Tab. 1 enthält eine Übersicht über die bei den verschiedenen Personengruppen im Kernforschungszentrum Karlsruhe 1972 durchgeführten Inkorporationsmessungen im Body Counter und die dabei festgestellten Radionuklide. In Tab. 2 ist die inkorporierte Aktivität in Prozent der zulässigen Körperbelastung ausgedrückt. Aus der Tabelle ist zu erkennen, daß die meisten und höchsten Inkorporationen bei Mitarbeitern der Dekontaminationsbetriebe festgestellt wurden. An zweiter Stelle folgt der Reaktorbetrieb. Beide Abteilungen zusammen tragen zu 76 % der Gesamtzahl bei. In den meisten Fällen handelt es sich um Inkorporationen zwischen 0,01 und 0,1 %. Nur in 2 % der Fälle überschritten die gemessenen Inkorporationen 1 % der maximal zulässigen Körperbelastung, blieben aber unter 10 % dieses Wertes. ^{137}Cs ist das bei der Direktmessung am häufigsten festgestellte Radionuklid.

Institution	Messungen gesamt	Inkorporationen	Inkorporierte Nuklide
Reaktorbetrieb (RBT/FR 2)	390	33	^{56}Mn; ^{60}Co; ^{95}Ru; ^{110m}Ag; ^{124}Sb; ^{131}J; ^{137}Cs
Zyklotron	126	6	^{22}Na; $^{106}Ru/^{106}Rh$; ^{131}J; ^{137}Cs
Dekontamination (ADB)	199	54	^{60}Co; $^{95}Nb/^{95}Zr$; ^{103}Ru; $^{106}Ru/^{106}Rh$; ^{124}Sb; ^{131}J; ^{137}Cs; ^{226}Ra od. ^{222}Rn
Chemische Institute	439	6	^{131}J; ^{133}J; ^{137}Cs
Physikalische Institute	160	8	^{41}Ar; ^{137}Cs; ^{203}Hg[1)]
Biol. und medizinische Institute	27	1	^{137}Cs
Sonstige Personen der GfK	172	6	$^{106}Ru/^{106}Rh$; ^{124}Sb; ^{137}Cs

[1)] bed. durch nukleartherapeutische Tests

Tab. 1: Ergebnisse der Inkorporationsmessungen im Body Counter 1972 [1]

Institute	GfK			RBT			Zyklotron			ADB			Chem. Inst.			Phys. Inst.			Biol. Inst.		
Nuklide	a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c	a	b	c
^{137}Cs	69	1		26			1			30	1		5			4			1		
^{106}Ru-^{106}Rh	14	18	3	1			3			8	15	3									
^{60}Co	3			1						2											
^{124}Sb	3			1						1											
^{131}J	4			1			1			1			1								
^{95}Nb- ^{95}Zr	2									1	1										
^{22}Na	2						2														
^{56}Mn	2				2																
^{103}Ru	2									2											
^{110m}Ag		1			1																
^{133}J		1												1							
^{214}Bi		2									2										

Tab. 2 Inkorporationen im Zuständigkeitsbereich der GfK für das Jahr 1972, aufgeschlüsselt nach Nukliden und Aktivität

a = 0,01 - 0,1 % MZKB
b = 0,1 - 1 %
c = 1 - 10 %

2.2 Bestimmung der inkorporierten Aktivität durch Ausscheidungsmessungen

Tab. 3 gibt eine Übersicht über die 1972 durch Ausscheidungsmessungen gefundenen Inkorporationen. Bei den Ausscheidungsmessungen an Mitarbeitern der nicht erwähnten Bereiche der Gesellschaft für Kernforschung wurden keine Inkorporationen nachgewiesen. Die bei Mitarbeitern der Dekontaminationsbetriebe gefundenen Plutoniuminkorporationen liegen unterhalb 10 % der maximal zulässigen Körperbelastung.

Tritium spielt bei der StrahlenschutzÜberwachung im Kernforschungszentrum wegen des Betriebs schwerwassermoderierter Reaktoren eine besondere Rolle. Tab. 3 gibt eine Übersicht über die Höhe der bei den einzelnen Messungen festgestellten Inkorporationen. In Tab. 4 ist die Verteilung der ermittelten Ganzkörperäquivalentdosen infolge Tritiuminkorporationen wiedergegeben. Für einen groben Überschlag kann man davon ausgehen, daß eine einmalige Aufnahme von 1 mCi Tritium eine Strahlenbelastung von 0,21 rem verursacht. 1972 lag also in 90 % der Fälle in RBT am FR 2 die Tritiuminkorporation unter 1 mCi/a. Die übrigen Anlagen der GfK spielten bezüglich der Höhe der Tritiuminkorporationen gegenüber RBT keine Rolle.

	Anzahl der Überwachten Personen	Gesamtzahl der Analysen	Anzahl der zwischenfall-bedingten Analysen	Anzahl der festgestellten Inkorporationen < 10 %	10-50 %	50-100 % MZKB	Nuklid
ADB	81	548	75	14	-	-	Pu-239
RBT	69	350	(350)	68	1	-	H-3

Tab. 3 Übersicht über die im Bereich der GfK durch Ausscheidungsmessungen festgestellten Inkorporationen

Abt.	Personen-zahl	< 5 mrem/a	5 - 50 mrem/a	50-200 mrem/a	200-500 mrem/a	500-1000 mrem/a	1000-3000 mrem/a	3000-5000 mrem/a	> 5000 mrem/a	Mittelwert* mrem/a
RBT	69	-	40,5 %	49,0 %	10,0 %	1,5 %	-	-	-	96,5
ADB	64	90,6 %	9,4 %	-	-	-	-	-	-	< 5
Sonst.	25	80,0 %	20,0 %	-	-	-	-	-	-	< 5

*durchschnittliche Jahresdosis pro Person in mrem/a

Tab. 4 Verteilung der ermittelten Gesamtkörper-Äquivalentdosen infolge Tritiuminkorporationen im Jahr 1972 bezogen auf die Zahl der untersuchten Personen [2]

Institut		Anzahl der Messungen	Anzahl der Meßergebnisse Luftkontaminationen <0,1 MZK	0,1-1 MZK	> MZK	Gesamt	identifizierte Nuklide
ADB		1280	16	14	66	96	^{144}Ce, ^{106}Ru, ^{95}Zr, ^{137}Cs, ^{125}Sb, ^{239}Pu, ^{241}Am, ^{244}Cm, ^{110}Ag, ^{134}Cs
Reaktor-betrieb	RBT	1395	-	-	1	1	^{138}Cs, ^{138}Xe,
	HZ		-	-	1	1	Mischnuklide, ^{138}Cs
Chemische Institute	IRCh	9624	19	56	58	133	^{106}Ru, ^{113}Sn, ^{241}Am, ^{14}C, ^{24}Na, ^{239}Pu,
	IHCh	2017	-	-	3	3	^{239}Pu
Gesamt		14316	30	70	165	265	

Tab. 5 Aerosolförmige Luftkontaminationen bezogen auf MZK und aufgeschlüsselt nach Arbeitsbereichen

3. Ergebnisse der Raumluftüberwachung

In Tab. 5 sind die Ergebnisse der Raumluftüberwachung auf die MZK-Werte bezogen und in Tab. 6 nach der Größenordnung der Konzentration aufgeschlüsselt. Die Anzahl der Werte der Größenordnung 10^{-n} ist dabei die Zahl der Werte, die der Ungleichung $3.10^{-n-1} < C \leq 3.10^{-n}$ genügen.

Die Ergebnisse der Tritiumüberwachung der Atemluft sind in den Tab. 5 und 6 nicht enthalten und werden in Tab. 7 getrennt zusammengefaßt.

Art der Strahlung	Größenordnung [Ci/m³]	Anzahl der Fälle in den Instituten		
		ADB	Reaktorbetrieb	Chem. Institute
α	10^{-13}	-	-	6
	10^{-12}	3	-	33
	10^{-11}	21	-	23
	10^{-10}	8	1	3
	10^{-9}	1	-	-
β	10^{-12}	1	-	20
	10^{-11}	1	-	30
	10^{-10}	63	-	18
	10^{-9}	24	-	3
	10^{-8}	6	1	1
	10^{-7}	-	-	-
	10^{-6}	1	1	-
	10^{-5}	-	1	-
	10^{-4}	-	1	-
Anzahl der Mischkontaminationen		33	1	1

Tab. 6 Nachgewiesene aerosolförmige Luftkontaminationen, aufgeschlüsselt nach Konzentrationen

Größenordnung der Konzentration (Ci/m³)	Anzahl der Fälle
10^{-5}	10
10^{-4}	19
10^{-3}	5
10^{-2}	1
Gesamtzahl	35

Tab. 7 Ergebnisse der Atemluftüberwachung auf Tritium bei RBT (FR 2)

4. Gegenüberstellung der Oberwachungsergebnisse

Die Gegenüberstellung der Ergebnisse von Inkorporations- und Raumluftüberwachung zeigt, daß die Verteilung der gefundenen Raumluftkontamination nicht mit jener der Inkorporationen konform geht. Eine qualitative Darstellung der vorgefundenen Situation wird in Abb. 1 gegeben. Sie zeigt, daß nach dem vorhandenen Datenmaterial keineswegs jedem Inkorporationsfall eine Raumluftkontamination zugeordnet werden kann. Dagegen wurde keine Inkorporation festgestellt, ohne daß auch eine Personenkontamination und eine Oberflächenkontamination festgestellt worden wäre.

Die Erklärung für diesen Befund liegt in

1) verschiedenen, nuklidabhängigen Nachweisgrenzen der Oberwachungsmethoden
2) nichtrepräsentativer Probenahme bei der Luftüberwachung sowie
3) unterschiedlichen Abklingzeiten der Aktivität zwischen Inkorporation bzw. Probenahme und Messung .

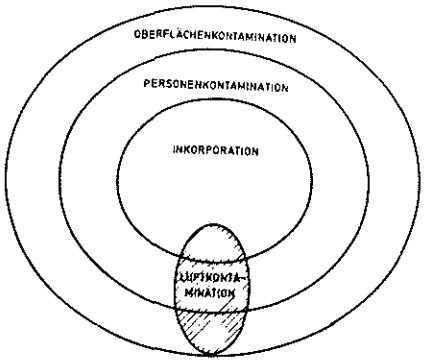


Abb. 1 Schematische Darstellung der Häufigkeit des Auftretens der verschiedenen Kontaminationsarten (Menge der verschiedenen Ereignisse dargestellt nach der Darstellungsweise der Mengenlehre)

4.1 Nachweisgrenzen

Aus den vorhandenen Ergebnissen läßt sich ablesen, daß offenbar ein wesentlicher Anteil der Inhalationen bei Raumluftkontaminationen unter den Nachweisgrenzen der kontinuierlichen Raumluftüberwachung erfolgt. Dies läßt sich z.B. an den Plutoniuminkorporationen zeigen: Bei Inhalation unlöslicher Plutonium-Aerosole wird das Plutonium überwiegend (zu 90 %) im Stuhl ausgeschieden. Eine Plutoniumausscheidung von beispielsweise 1 pCi/d (Faktor 10 über der Nachweisgrenze) kann also die Folge einer Inhalation in dieser Größenordnung sein. Dies entspricht einer über den Arbeitstag gemittelten Plutonium-Konzentration von 10^{-13} Ci/m^3 in der Luft, die bei kontinuierlicher Oberwachung nicht mehr nachzuweisen ist.

4.2 Nichtrepräsentative Probenahme

Aerosolförmige Luftkontaminationen sind i.a. weder räumlich noch zeitlich konstant [3, 4]. Dadurch wird bei der Luftüberwachung nicht das die Inkorporation bestimmende, der Person zugeordnete Integral $\int C dt$ gemessen, sondern das dem Probenahmeort zugeordnete, meistens davon verschiedene. Nur in Ausnahmefällen wird die Luftprobe ständig in der Nähe von Mund und Nase der zu überwachenden Person genommen. Dies ist z.B. beim Tragen von Personen-Staubsammlern verwirklicht*. Eine kontinuierliche Messung dieser Art ist aus finanziellen Gründen nur gezielt, d.h. in Einzelfällen möglich.

Die Probenahme ist natürlich auch nicht repräsentativ, wenn in stärker kontaminierten Bereichen, in denen höhere Luftkonzentrationen erwartet werden, Atemschutz benutzt wird.

4.3 Unterschiedliche Abklingzeiten

Bei jenen Radionukliden, bei denen die effektive Halbwertszeit zur Interpretation von Inkorporationsmessungen zu berücksichtigen ist, stößt die Zuordnung von Inkorporation und Luftstaubkontamination auf Schwierigkeiten, insbesondere wenn der zeitliche Verlauf der Inkorporation nicht hinreichend genau bekannt ist.

5. Schlußbemerkungen

Obgleich der Nutzeffekt der kontinuierlichen Raumluftüberwachung auf radioaktive Aerosole skeptisch zu beurteilen ist und die diskontinuierliche Überwachung nur mit erheblicher zeitlicher Verzögerung Ergebnisse liefert, sollte dennoch besonders hervorgehoben werden, daß die Strahlenbelastung durch Inhalation radioaktiver Aerosole in dem überwachten Bereich bisher gering geblieben ist und daher der Erfolg der getroffenen Strahlenschutzmaßnahmen befriedigt. Dies wird jedoch nicht daran hindern, die Raumluftüberwachung auf radioaktive Aerosole weiter zu verbessern, wobei vor allem die Erhöhung der Stellenzahl für kontinuierliche Probenahme und die Steigerung der Nachweisgrenze der diskontinuierlichen Messung als eine in manchen Bereichen nützliche und vom Aufwand her vertretbare Maßnahme erscheint.

Der Nutzen der Raumluftüberwachung auf Tritium liegt dagegen auf der Hand, da diese die einzige Methode zur Erkennung der Gefahr von Tritiuminkorporationen darstellt. Besonders erfreulich ist dabei, daß hierfür zuverlässige und ausreichend empfindliche Meßgeräte zur Verfügung stehen.

Abschließend sei bemerkt, daß sich die Autoren bewußt sind, daß die hier vorgetragene Untersuchung zunächst nur für den überwachten Bereich gültig ist. Es wäre daher wünschenswert, wenn diese Fragenstellung auch in anderen kerntechnischen Anlagen untersucht würde.

---

* Personen-Staubsammler finden im Bereich der Gesellschaft für Kernforschung praktisch keine Anwendung, da sie einerseits bei den überwachten Mitarbeitern unbeliebt sind und andererseits noch nicht aus Strahlenschutzgründen unbedingt eingesetzt werden mußten.

Literatur

[1] H. Fessler, Beitrag zum "Jahresbericht 1972" der Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit, Redaktion: H. Kiefer, W. Koelzer, KFK 1818 (1973)

[2] H. Schieferdecker, Ergebnisse der Tritium-Inkorporationsüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe in den Jahren 1971-1972, KFK-Ext. 23/73-1

[3] L.A. König, Ergebnisse der Raum- und Abluftüberwachung im Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK 1638, S. 223 (1972)

[4] L.A. König, Experience in Radiation Protection Gained in a Major Contamination Incident, 2nd IRPA-Congress, Paper 239, Brighton, May 1970

DISKUSSION ZU DEN VORTRÄGEN NR. 10 BIS 15 (LEITUNG: R. MAUSHART)

MAUSHART: Nach dem Programm haben wir noch sieben Minuten Zeit zur Diskussion der vorausgegangenen sechs Vorträge. Ich glaube aber, daß diese sechs Vorträge im Gesamtkonzept dieser Tagung doch so wichtig waren, daß wir ihnen etwas mehr Zeit widmen sollten, und ich werde mir daher die Freiheit nehmen, wenn entsprechende Fragen vorliegen, auch noch fünf oder zehn Minuten von der nachfolgenden generellen Abschlußdiskussion abzuzwacken. Ich möchte aber trotzdem diejenigen bitten, die diskutieren möchten, sich auf technische Fragen zu den Vorträgen zu beschränken, da ja die allgemeinen Fragen methodischer und philosophischer Art nachher noch einmal in der generellen Abschlußdiskussion zur Debatte stehen sollen. Ich möchte jetzt nicht die einzelnen Vorträge nacheinander aufrufen, das braucht wieder zuviel Zeit, sondern bitte jetzt einfach um Wortmeldungen zu diesen sechs Vorträgen.

JACOBS: Ich habe eine Frage an Herrn König: Sind bei Ihren Zahlen auch bekanntgewordene Zwischenfälle berücksichtigt?

KÖNIG: Es sind alle Zwischenfälle berücksichtigt.

JACOBS: Das hätte ich vielleicht sagen sollen: Ich habe bei meinen Ergebnissen die bekanntgewordenen Zwischenfälle nicht eingeschlossen, deshalb ist es also nicht verwunderlich, wenn aus Karlsruhe mehr Inkorporationen berichtet werden. Würden wir die Zwischenfälle hinzuziehen, wäre es bei uns auch nicht anders.

MAUSHART: Ich glaube, das war wirklich eine notwendige Klarstellung, denn ich hätte auch auf diese offensichtliche Diskrepanz hingewiesen.

STEPHAN: Ich habe eine Frage an Herrn Jacobs: Ich stellte fest, daß Sie kein Cs-137 gemessen haben. Bei Herrn König stand das Cs-137 in jeder Spalte. Wir haben auch Cs-137 gemessen und haben festgestellt, daß nicht bei Arbeiten in der Anlage, sondern über den Nahrungsmittelweg inkorporiert wurde.

JACOBS: Darf ich zur direkten Erwiderung etwas sagen? Wir machen seit längerer Zeit bei jedem Beschäftigten ein Nullspektrum, wenn er in die Anlage kommt, und ich habe gesagt: Kein vom Nullspektrum abweichendes Ergebnis. Damit ist, glaube ich, Ihre Frage beantwortet.

MAUSHART: Darf man daraus tatsächlich schließen, daß hier im Kernforschungszentrum Karlsruhe erheblich mehr tatsächliche Cäsiuminkorporationen vorkommen als in Jülich?

KÖNIG: Das wundert mich nicht, denn wir gehen hier mit erheblichen Mengen offener Aktivität um, vor allem in unserer 'Dekontamination flüssig', wo Abfallprodukte der WAK verarbeitet werden.

GEBAUER: Ich habe eine Bemerkung zu dem Vortrag von Herrn Jahn. Ich erinnere an den Kontaminationsfall der undichten Brennelemente, wo ein Filter alle 15 oder 20 Minuten ausgewechselt wurde, wo also vornehmlich Jodaktivitäten auf diesen Filtern ausgemessen wurden. Nach meiner Meinung wäre das ein typischer Fall für eine automatisch arbeitende Schrittfilteranlage, die mit einem Aktivkohlefilter ausgerüstet ist und dessen Weiterschaltung zu dem nächsten Schritt dadurch ausgelöst wird, daß z.B. ein Grenzwert auf dem Schreiber bei 80 % eingestellt wird, und wenn dieser Grenzwert erreicht ist, dann schaltet eben dieses Filterelement weiter. Dann braucht man aber nicht von nachmittags um zwei bis abends um 22.00 Uhr einen Laboranten zu beschäftigen, um die Filterproben zu wechseln. Meine zweite Bemerkung, die allgemeiner Natur ist, betrifft die Probenahme für Raumluftüberwachung. Diese wird ja sehr häufig dort durchgeführt, wo Räume mit gefilterter Zuluft beschickt werden, und man sagt dann immer so schön, diese Räume haben also einen dreimaligen oder zehnmaligen Luftwechsel pro Stunde oder pro Tag. Das würde aber doch bedeuten, daß jedes Luftelement wirklich echt zehnmal in der Stunde bzw. am Tag gewechselt wird; denn

wenn das nicht der Fall ist, dann herrscht eben einfach kein vernünftiger Luftwechsel in diesem Raum. Ist es aber so, daß jedes Element gewechselt wird, dann kann man diese gewechselte Luft aber auch über eine entsprechende Filteranlage leiten, weil dann wirklich jedes Element pro Tag soundsooft über dieses Filter läuft. Und dann messe ich - im Mittel gesehen - nicht das, was dort am Arbeitsplatz freigesetzt wird, sondern - im Mittel gesehen - über den ganzen Raum.

JAHN: Ja, das ist sicher richtig, daß eine "Superschrittfilteranlage" - wobei die Schrittzeit vom Ereignis gesteuert wird - sehr nützlich wäre. Das haben wir bis jetzt noch nicht. Bei den gewöhnlichen Schrittfilteranlagen ist es natürlich so, daß die Schrittzeiten - das haben Sie ja gesehen - viel zu lang wären, um diese kurzen Meßfolgen zu haben. Andererseits, wenn man die Schrittzeit dauernd so kurz einstellt, dann hätten wir einen wüsten Verbrauch an Filterpapier. Das ist das, was an sich zu sagen ist. Im übrigen ist es natürlich in keiner Weise so, daß ein Laborant da dauernd beschäftigt wird. Das liegt einfach an den örtlichen Verhältnissen. Es liegen da die Filter bereit, um sie wechseln zu können. Das ist eine Arbeitszeit - verglichen bis zur nächsten Bestaubungszeit - die klein ist, so daß also dann die Leute auch noch etwas anderes machen können. Und ob der nächste Filterwechsel notwendig ist, erfährt der Laborant - das ist so organisiert - sehr einfach. Er arbeitet ja in der Regel in der Reaktorhalle, und wenn der Grenzwert erreicht wird, erhält der Operateur am Schaltpult eine Warnung.

MAUSHART: Die Anlage, die so arbeitet, daß sie nämlich das Filter wechselt, wenn irgendein Ereignis eintritt, die hat Herr Gebauer gestern insseinem Vortrag vorgestellt, und es leuchtet mir ein, daß er sich jetzt sehr gefreut hat, gleich ein Anwendungsbeispiel dafür zu finden.

SAUERMANN: Ich habe hier eine Frage an Herrn Stephan, Herrn Jahn und Herrn Jacobs. Frage an Herrn Stephan: Sie hätten uns den Edelgasmonitor gezeigt und gesagt, daß Sie diesen in der Reaktorhalle mit einer bis zu 20 m langen Schlauchleitung stationär aufgestellt haben. Welche Verzögerungszeit haben Sie durch diese Schlauchleitung? Frage an Herrn Jahn: Herr König hat die Tritiumkonzentration des Schwerwassers vom FR 2 genannt. Würden Sie vielleicht zum Vergleich die Tritiumkonzentration am FRJ 2 zum Zeitpunkt des von Ihnen geschilderten Zwischenfalles nennen? Frage an Herrn Jacobs: In dem Diagramm, das Sie gezeigt haben, habe ich die Ergebnisse der Tritiumüberwachung vermißt. Bekanntlich ist ja in Abfallagern gerade das Tritium ein Problem, weil es sowohl durch die Plastikfolien als auch durch die Dichtungen hindurchdiffundiert. Und Tritiumüberwachung wird doch in unserem Abfallager ausgeführt. Vielleicht sollte man diese Werte auch nennen.

STEPHAN: Die Verzögerungszeit durch die Benutzung dieser Schlauchleitung ist etwa eine Minute. Nun ist das nicht kritisch. Wir benutzen dieses Verfahren, wenn z.B. eine Pumpe ausgebaut wird und Edelgase von der Oberfläche oder von freistehendem Primärwasser kommen. Wenn wir dagegen mit Brennelementen umgehen, wo wir mit Beschädigung eines Brennstabes oder Brennelementes rechnen müssen, dann werden zusätzlich noch Direktdosisleistungsmesser aufgestellt, die sofort ansprechen.

JAHN: Die Aktivität bei diesem Zwischenfall lag bei etwa 3,5 mCi/g, umgerechnet wären das also 3,5 Ci/l. Ich will mich auf die Dezimale nicht ganz festlegen, ob das jetzt 3,3 oder 3,5 waren. Bei 78 kg waren insgesamt etwa 300 Ci Tritium in Form von Schwerwasser in der Halle freigesetzt.

JACOBS: Die Ergebnisse von Tritiummessungen lagen mir nicht vor, aber Herr Rodenbäck, der ja auch diese Messungen hier durchgeführt hat - wie ich erwähnte - ist hier anwesend. Ich nehme an, er kann dazu selbst etwas sagen.

RODENBÄCK: Wir haben nätürlich gewisse Tritiummengen im Abfallager. Wir haben es aber aus gewissen Gründen an und für sich peinlichst vermieden, diese Tritiumabfallmengen irgendwie schon zu verarbeiten. Wir haben natürlich gleichzeitig durch Messungen die Diffusion durch die entsprechenden Kunststoffverpackungen überprüft und lagen in keinem Fall über der zulässigen Konzentration. Wenn Tritiummengen verarbeitet wurden, wurden diese Arbeiten grundsätzlich in einer Box durchgeführt, die am Abluftsystem angeschlossen war. Dadurch konnten wir also immer verhindern, daß unsere Mitarbeiter mit Tritium belastet wurden. Zusätzlich wurden Tritiumüberwachungen über die Urinmessungen durchgeführt. Die Werte haben bewiesen, daß keine Inkorporationen vorlagen.

LENKEIT: Ich habe eine Frage an Herrn Finsterwalder. Sie haben gesagt, daß Sie Ihre Meßapparate zur Dekontamination spülen. Womit spülen Sie diese und mit welchem Erfolg?

FINSTERWALDER: Wir spülen hauptsächlich die Probenahmeleitungen. Die Meßapparate selbst werden dekontaminiert. Kontaminiert ist hauptsächlich die Sipermplatte, die zur Abstützung des Filters dient. Diese muß von Zeit zu Zeit ausgewechselt werden. Die Dekontamination erfolgt im allgemeinen durch Wechselbäder, Säure und Lauge im Wechsel. Durch Zusetzen von Oxalaten und Tartraten versucht man, das Ruthen, um das es sich hauptsächlich handelt, zu komplexieren und in Lösung zu bringen.

MAUSHART: Am Schluß Ihres Vortrages hatten Sie doch über die getrennte Xenon-Messung bei Anwesenheit von Argon berichtet. So einfach auf Anhieb hätte ich gesagt, man mache die Absorptionsfolie in dem Rückwärtszähler so dick, daß gar kein Xenon mehr hineinkommt, und dann muß man nur die Impulsrate, die da herauskommt, elektronisch mit einem bestimmten Faktor bewerten, um den Absorptionsfaktor für das Argon dadurch wieder auszugleichen, und dann müßte man doch eine Anzeige erhalten, die konzentrationsunabhängig ist im Gegensatz zu Ihrer Anzeige, die vom Verhältnis der Argon/Xenon-Konzentration abhängt. Was hat Sie davon abgehalten, diesen Weg zu gehen?

JAHN: Mit dem zur Verfügung stehenden Gerät war dies technisch nicht durchführbar.

(Niederschrift der Diskussion nach Tonbandaufzeichnung)

ABSCHLUSSDISKUSSION (LEITUNG: H. KIEFER)

KIEFER: Meine sehr verehrten Damen, meine Herren! Wenn man als Beobachter diesen hochinteressanten Vorträgen gefolgt ist, dann hat man irgendwie das ungute Gefühl, daß es Zeit ist, wieder einmal über die Gründlagen des Strahlenschutzes nachzudenken. Man sollte sich nämlich einmal überlegen: Warum treiben wir überhaupt Strahlenschutz? Was haben wir für ein Ziel? Das Ziel ist doch zweifellos, die Dosis festzustellen, die mögliche Dosis oder die Dosis, die schon aufgetreten ist. Und es sind, glaube ich, zwei Gründe, die einem die Sache hier nun etwas fraglich machen. Der eine Grund ist der, daß wir heute in der Meßtechnik, ich möchte sagen, fast unglaublich weit fortgeschritten sind, d.h. die Industrie ist heute in der Lage, fast jede Forderung zu erfüllen, wenn sie nur genügend viel Geld dafür bekommt. Das ist die eine Seite. Wir haben dann, auf der anderen Seite, Behördengutachter. Diese Behörden sind zahlreich in der Bundesrepublik. Sie sind zum großen Teil sehr jung und dementsprechend sind diese Stellen auch nicht gerade mit "alten Hasen" besetzt. Die Folge davon ist, daß diese Leute als Auflage mehr oder weniger die Strahlenschutzverordnung abschreiben und zwar im wörtlichen Sinne. Es wird ja immer wieder gefordert, daß Behörden mit Naturwissenschaftlern besetzt werden sollen oder mit Ingenieuren. Um die Strahlenschutzverordnung abzuschreiben, würde mir auch ein Jurist genügen. Nun, wenn wir von dieser Voraussetzung ausgehen, dann kommt es zu einer etwas unheiligen Allianz. Wir haben nämlich auf der einen Seite Auflagen, die exakt der Strahlenschutzverordnung entsprechen, und wir haben auf der anderen Seite eine Industrie, die viel zu höflich ist, um zu fragen: Hat das, was ihr bei uns bestellt, einen Sinn? Sie sagt: Gut, wenn ihr das bezahlt, dann machen wir das auch! Das ist der eine Grund, warum wir nachdenken müssen. Den zweiten Grund, warum wir wieder nachdenken dürfen - und das stimmt mich nun sehr optimistisch - hat Herr Jacobi am Eingang erklärt, nämlich, daß die ICRP nun auch nach außen laut und deutlich und für jedermann verständlich sagt, es komme nicht auf die Konzentration an, es kommt auf die Aufnahme an, es kommt letzten Endes auf die Dosis an. Das war dem einzelnen Fachmann und Praktiker schon immer klar, man hat auch versucht, das immer wieder durchzusetzen. Denken Sie daran: Die Fachkommission IV der Deutschen Atomkommission hat 1969 für die Strahlenbelastung der Umgebung von Kernkraftwerken ganz klar gesagt: Nicht die Konzentration von Edelgasen darf maximal soundso hoch sein, sondern die genetisch signifikante Dosis der Bevölkerung darf maximal 30 mrem pro Jahr betragen. Also praktisch ein Wert des intakes. Genauso hat die Gesellschaft für Kernforschung schon lange einen Abluftplan. Hier haben wir sachverständige Behörden gehabt, die uns geholfen haben, ihn durchzusetzen. Auch das war letzten Endes ein intake und nicht eine Messung der augenblicklichen Konzentration. Im Grunde genommen wäre die Bundesregierung schon lange verpflichtet, das in die Strahlenschutzverordnung aufzunehmen, denn wir haben meiner Erinnerung nach schon sieben Jahre die Euratom-Grundnormen, in denen ganz klar steht: Nicht die Momentan-Konzentration, sondern der Mittelwert über 2000 Stunden soll betrachtet werden. Und das ist auch nichts anderes wie eine Art intake. Und daraus folgt nun, daß jetzt, wenn die ICRP klar sagt, es kommt weit weniger nur auf die Konzentration an - diese ist nur ein abgeleiteter Wert -, sondern mehr auf den intake, dann müßten wir uns wirklich überlegen: Messen wir denn richtig, und gibt es keine anderen Möglichkeiten? Müssen wir unbedingt in jedem Fall von den Luftüberwachungsgeräten ausgehen? Ein typischer Fall, wie weit man da gehen kann - und zwar auf der negativen Seite -, sind z.B. Forderungen, die - ich hörte neulich einmal davon - von irgendjemandem an die Industrie gestellt werden, man soll die Edelgase, die aus den Reaktoren kommen, nun spezifisch jedes Edelgas für sich spektroskopisch kontinuierlich überwachen. Die Begründung ist natürlich die Bilanzierung. Eine Bilanzierung hat aber nur so lange Sinn, wie sie nachher eine Dosis ergibt. Wenn da irgendwelche Radionuklide mitgemessen werden, die für die Bilanz überhaupt keine Rolle mehr spielen, dann ist das absoluter Humbug, dann wird diese Art von Bilanzierung zum Selbstzweck.

Wer muß jetzt echt nachdenken? Von den Behörden können Sie dies im Augenblick noch nicht unbedingt verlangen. Diese können sich immer noch auf die Strahlenschutzverordnung abstützen. Wir können nur an die Bundesbehörden die Forderung richten: Macht endlich eure

neue Strahlenschutzverordnung, damit diese wieder dem Stand von Wissenschaft und Technik entspricht! Und von der Industrie können Sie auf der anderen Seite auch nicht verlangen, daß sie nun sagt, das könnte man viel einfacher machen. Die Industrie lebt letzten Endes davon, Meßgeräte herzustellen. Sie stellt sicher gern raffinierte Meßgeräte her, denn das macht jedem Meßtechniker Spaß, und sie ist natürlich auch bereit, alles zu machen, wenn sie dafür bezahlt wird, dafür ist sie ja da. D.h. bei den Betreibern wird es liegen. Diese müssen sich nun eingehend überlegen: Wie sieht es in jedem Einzelfall aus? Es besteht gar kein Zweifel, daß wir vielseitige Überwachungsaufgaben haben, je nachdem, was wir überwachen wollen. Aber es muß uns klar sein, daß - wenn wir Edelgase überwachen - wir im Grunde genommen die β- und γ-Dosis wissen wollen, und es gibt β- und γ-Dosismeßgeräte. Warum muß man in jedem Fall unbedingt über die Luftkonzentration gehen? Das nur als Beispiel. Wenn man den intake messen will, dann genügt es unter bestimmten Bedingungen - was vorhin schon bei Herrn Jacobs anklang -, wenn man weiß, daß im Normalfall nichts herauskommt, die Leute regelmäßig mit dem Body Counter zu kontrollieren. Der Body Counter ist - soweit es sich um γ-Strahler handelt - extrem empfindlich. Und auf der anderen Seite braucht man Monitoren, die einem sagen, jetzt ist etwas passiert. Dann kann man genauso wieder sofort kontrollieren, was los ist. Ich möchte also mehr sagen, man soll sich überlegen, ob es grundsätzlich ein Meßgerät sein muß, das kontinuierlich die Luftkonzentration mißt, das sofort anzeigt. Das geht fast immer, das kostet auch fast immer viel Geld. Wahrscheinlich ist es häufig so, daß man mit neuen Überlegungen und mit anderen Meßmethoden den Strahlenschutz nicht nur billiger, sonder auch sicherer machen kann. Das nur als Einführung zur Diskussion.

EDELHÄUSER: Ich wollte ohnehin auf die grundsätzlichen Probleme, die in diesen eineinhalb Tagen doch sehr umfassend zutage getreten sind, etwas eingehen. Ich hatte an sich vorgehabt, mich auf die Raumluftüberwachung zu beschränken, da mir hier die weitaus größeren Probleme zu liegen schienen. Nachdem Sie aber jetzt das Problem etwas allgemeiner angeschnitten haben, möchte ich kurz vorab einige Bemerkungen zur Abluftüberwachung machen. Es hat vom 28. Oktober bis 4. November - also vor etwa zwei Wochen - in Warschau ein panel der IAEA stattgefunden, und bei diesem panel wurde festgestellt, daß die Bestimmung von Dosen, die größere Gruppen außerhalb kerntechnischer Anlagen bis hin zur Gesamtbevölkerung erhalten können, an sich nur über eine sehr gute Abluftüberwachung und entsprechenden Rechnungen bestimmt werden können. Ich glaube, darüber besteht wohl kein Zweifel. Was die Messung der Abluft betrifft, so wird die meines Wissens doch allgemein in Konzentrationen durchgeführt, wenn man auch gelegentlich noch integriert und damit vielleicht unter Berücksichtigung der Abluftströme dann auf die Abgaberate kommt. Aber das ist an sich meines Erachtens nur eine technische Modifikation, die keinerlei grundsätzliche Bedeutung besitzt. Ich möchte allgemein sagen, die Abluftüberwachung in der bisherigen Form wird wohl unter allen Umständen beibehalten werden müssen. Ob man sie noch verfeinern muß, wird sich zeigen, wenn das Bundesgesundheitsamt den in unserem Auftrag erstellten Bericht abgeschlossen hat und wir in den kompetenten Gremien darüber befinden haben lassen. Der zweite Punkt, den Sie ansprachen, das war der Umstand, daß immer noch Konzentrationen in der Strahlenschutzverordnung stehen. Hinsichtlich der Abluft radioaktiver Stoffe bei kerntechnischen Anlagen ist es doch allgemein so: Es ist in allen Gutachten, die ich kenne, bei Kernkraftwerken auch der Fall, daß heute Abgaberaten angegeben sind, wenngleich die Messung meistens über die Konzentration erfolgt. Ich würde also sagen, es wird in der Praxis schon den Gegebenheiten Rechnung getragen, wenn ich auch zugeben muß, daß es leider noch immer nicht in der Strahlenschutzverordnung festgehalten ist. Aber das ist ja mehr ein Verwaltungsproblem. Wichtig ist ja, daß den Notwendigkeiten Rechnung getragen wird und daß es in den Genehmigungen tatsächlich so gehandhabt wird. Soviel möchte ich nur zur Abluftüberwachung sagen.

Zur Raumluftüberwachung habe ich wesentlich mehr zu bemerken, da der Verlauf dieser Sitzung den Eindruck in mir erweckt hat, daß doch die Raumluftüberwachung allgemeines Mißfallen, Mißtrauen oder was weiß ich noch alles, erzeugt. Ich möchte gleich vorab meine Meinung hier kundtun; ich möchte hier ein Plädoyer für die Raumluftüberwachung geben, einfach auf den Gesichtspunkt aufbauend, daß die Raumluftüberwachung mit ortsfesten Monitoren

die einzige Möglichkeit darstellt, um sehr schnell eine Inkorporationsgefahr durch radioaktive Stoffe in Luft zu erfassen. Alle anderen Alternativen haben den Nachteil, daß sie mit Verzögerungszeiten verbunden sind. Das gilt sowohl für das personal monitoring als auch für die Inkorporationsüberwachung. Es wurde gestern darüber gesprochen, daß für ^{239}Pu zwar teuere Anlagen benutzt werden müssen, daß aber auf der anderen Seite gerade bei solchen Nukliden bei der stationären Oberwachung der Raumluft diese teueren Anlagen gerechtfertigt erscheinen, gerade deswegen, weil hier die personal monitors noch wesentlich unempfindlicher wären im Vergleich zur Radiotoxizität der zu überwachenden Stoffe.

Ein anderer Gesichtspunkt wurde angeschnitten, daß man mit der Abluftüberwachung Aussagen über den Gehalt radioaktiver Stoffe in der Raumluft bekommt. Dem möchte ich mit zwei Argumenten widersprechen. Zum einen gibt es eine Verdünnung, die das Meßergebnis ungünstiger machen würde, weil man näher an die Nachweisgrenze kommt, und zum zweiten ist in den meisten Anlagen ein Absolutfilter eingeschaltet. Die Abluftmessung findet aber erst hinter dem Absolutfilter statt und die Aerosole, die möglicherweise in der Raumluft vorhanden waren, werden mit solchen Abluftmonitoren überhaupt nicht mehr erfaßt. Ich möchte daher - ausgehend von diesen Überlegungen - behaupten, eine stationäre Raumluftüberwachung ist erforderlich, und man sollte sich viel mehr Gedanken darüber machen, wie die Überwachung verbessert werden kann. Da stehe ich auch weitgehend in Übereinstimmung mit dem, was hier gesagt wurde, daß die Meßgeräte wohl überwiegend gut genug sind, daß die Problematik wesentlich mehr bei der Art der Probenahme liegt, wo ich persönlich vorziehen würde, in der Sammelleitung zu messen, um lieber einen ungenauen Mittelwert über den gesamten Raum zu bekommen, als der Gefahr ausgesetzt zu sein, daß ich mit der Schnüffelleitung irgendwo im Labor sauge und an einer anderen Stelle eine wesentlich höhere Konzentration habe, die aufgrund der Strömungsverhältnisse nicht erfaßt werden kann. Ich möchte darauf hinweisen, daß auch bei solchen Problemen eine Lösung darin besteht, daß man mit Rauchpatronen die Luftströmungsverhältnisse in diesen Labors untersucht und dann seine Schnüffelleitungen gezielt an die günstigsten Punkte anschließen kann.

Was die Gasüberwachung betrifft, bin ich durch einige Dias, die heute vormittag gezeigt wurden, etwas schockiert worden. Es waren zwei Dias in den Vorträgen von Herrn Finsterwalder und Herrn Stephan, bei denen Gasmonitoren gezeigt wurden, die nichts anderes waren als Kontaminationsmonitoren, wobei in dem einen Fall ein Großflächendurchflußzähler auf einem Aerosolmonitor lag. Das Problem, daß bei der Aerosolmessung möglicherweise die Probe nicht repräsentativ genommen wird, ist hier natürlich noch weitaus mehr exaltiert, denn hier würde ich davon ausgehen, daß unter Umständen, wenn keine Zwangsluftzufuhr zu dem Detektor erfolgt, überhaupt nichts gemessen werden kann. Ich möchte also anregen, bei der Raumluftüberwachung hier die Voraussetzungen, die vor allem im Vortrag von Herrn Berger geschildert wurden, in Zukunft besser zu berücksichtigen.

KIEFER: Vielen Dank, Herr Edelhäuser. Da kann man wahrscheinlich nur ganz kurz sagen: Daß die Abluft gemessen werden sollte, darüber sind wir uns alle einig. Aber wir sind uns wohl nicht darüber einig, ob es unbedingt notwendig ist, zur Bilanzierung a) eine Sofortanzeige zu bekommen, b) unbedingt kontinuierlich zu messen und c) unbedingt die natürliche Aktivität zu diskriminieren. Und wenn Sie von diesen Forderungen abgehen, dann können Sie die Anlagen unter Umständen wesentlich einfacher machen. Ich wollte damit nur sagen, daß nicht automatisch alles bleiben soll wie bisher. Bei der Raumluft ist es natürlich auch so, daß die Monitoren die Raumluft mitmessen, d.h. sie zeigen einen kurzen und starken Anstieg etwa um den Faktor 1000 an - den man durchaus unter Umständen verkraften kann -, und zwar sofort. Ob man deshalb die Luft unbedingt über Filter ziehen muß, wird im Einzelfall unterschiedlich zu beurteilen sein.

KÖNIG: Ich möchte Herrn Edelhäuser praktische Probleme entgegenhalten. Wie hier schon wiederholt gesagt worden ist, hat jeder Aerosolmonitor einen räumlich begrenzten Einzugsbereich. Wenn ich ein größeres Labor überwachen will, müßte ich also unter Umständen - um allen Anforderungen gerecht zu werden - beispielsweise fünf Pseudokoinzidenzanlagen in dieses eine Labor stellen. Wenn nun das Institut zwanzig solcher Labors hat, dann komme ich zu unvernünftig großen Zahlen. Und das halte ich aber für unrealistisch. Ich glaube,

wir sollten doch das gegebene Risiko betrachten. Eine Gefährdung liegt meiner Meinung nach höchstens dann vor, wenn hohe Konzentrationen auftreten, also nicht gerade das Zehnfache der maximal zulässigen Konzentration, sondern weit höhere Konzentrationen. Diese hohen Werte erfasse ich aber mit sehr viel einfacheren Geräten. Ein einfacher Großflächenzähler leistet das vollauf, was ich erwarte, nämlich die Sofortwarnung. Es ist realisierbar, in einem Labor mehrere Großflächenzähler aufzustellen. Damit diene ich zugleich dem Kontaminationsschutz der Mitarbieter, die dann z.B. jederzeit ihre Hände ausmessen können. Ich glaube, daß bei einer solchen Ausstattung das verfügbare Geld sehr viel besser angelegt ist, als wenn ich alle zur Verfügung stehenden Mittel in einen Monitor investiere.

SAUERMANN: Ich möchte auch eine Bemerkung zur Raumluftüberwachung machen. Man muß ja doch sehr stark differenzieren. Eine stationäre Raumluftüberwachung ist sicher nur dort angebracht, wo es sich um α-Labors handelt, z.B. Heiße Zellen oder Boxenstraßen usw. In β-Laboratorien mit in der Regel stark intermittierendem Betrieb halte ich eine stationäre Raumluftüberwachung für nicht sinnvoll. Herr Jacobs hat darauf ja auch hingewiesen. Ich möchte unterstreichen, was Herr Jacobs in dem Zusammenhang gesagt hat, er hat die Bedeutung der begleitenden Strahlenschutzüberwachung der Experimente hervorgehoben. Ich möchte da noch hinzufügen, daß ich es für richtig halte, daß das Strahlenschutzpersonal bei diesen Experimenten nicht als Aufpasser danebensteht, sondern in die Experimente einbezogen wird. Ich selbst beteilige mich an der Planung über die Durchführung bis zur Auswertung und Neuplanung eines Experimentes. Das mache ich seit Jahren in dem Bereich, in dem ich jetzt tätig bin, und ich möchte noch anfügen, daß ich genausowenig von der routinemäßigen Inkorporationsüberwachung halte, und daß ich hier die ad hoc-Untersuchungen nach Verdacht vorziehe.

NARROG: Ich glaube, daß wir sowohl bei der Abluftüberwachung als auch im gewissen Maße bei der Raumluftüberwachung unterscheiden müssen zwischen der Bilanzierungsmessung, die vielleicht nicht mit kontinuierlichen Monitoren durchzuführen ist, und einer Warnung und Anzeige bei Zwischenfällen und Unfällen. Bei der Abluftüberwachung sind diese zwei Zwecke ganz klar; wir müssen unbedingt bei Unfällen eine Alarmgabe haben und ungefähr wissen, was herauskommt. Das gibt natürlich dann auch noch gewisse Schwierigkeiten, man hat vielleicht nicht immer eine nuklidspezifische Anzeige usw., aber man hat wenigstens eine Anzeige über das, was passiert ist und in welcher Größenordnung das liegt. Und das erscheint mir unbedingt notwendig. Bei der Bilanzierung dürfte eine kontinuierliche Sammlung und Ausmessung in gewissen Zeitabständen vielleicht ausreichen. Bei der Raumluftüberwachung haben wir ja an und für sich nur eine prinzipielle Schwierigkeit dort, wo es sich um Plutoniumstäube handelt. Jedenfalls hat man da die meßtechnische Schwierigkeit, daß man mit Aerosolprobenahme an gewissen Stellen keine repräsentativen Ergebnisse bekommt. Auch hier sollte man meines Erachtens den Unterschied machen, den auch Herr Dr. König sehr gut angesprochen hat. Es ist vielleicht sinnvoller, statt eines teueren α-β-Pseudokoinzidenzgerätes mehrere einfachere und billigere Geräte zu kaufen, die aber dann auf einen Störfall schnell ansprechen und eine bessere Überwachung gerade im Störfall gewährleisten. Die Bilanzierung sollte unabhängig davon erfolgen, da kann man ja Filter anschließend immer alle paar Tage ausmessen.

BARZ: Es sind nicht nur die Überwachungsbehörden, die die Forderungen nach teueren Geräten hochtreiben. Unsere Überwachungsbehörde hat sich ein Gutachten anfertigen lassen, das als Grundlage für das Genehmigungsverfahren diente, und danach haben wir die Auflage bekommen, in die direkte Abluftleitung - also in den Gasmonitor - den Schwellwert auf 1.10^{-8} $\mu Ci/cm^3$ einzustellen. Das lag also sogar unter der Nachweisgrenze dieses Monitors, und uns blieb gar nichts übrig, als eine Kompensation einzubauen, um überhaupt diese Forderung erfüllen und dann das Genehmigungsverfahren einleiten zu können.

KIEFER: Aber wäre das nicht das klassische Beispiel, wo man eben mit dem Gutachter einmal reden müßte, damit er von diesen Forderungen abrückt?

BARZ: Das ist versucht worden. Die Gutachter sind von dieser Forderung nicht abgerückt.

EDELHÄUSER: Da sich offensichtlich keine Bemerkungen sonst auf meine Ausführungen beziehen, möchte ich wenigstens diesmal Bemerkungen, die mich betrafen, noch kurz beantworten. Den Äußerungen von Herrn Sauermann stimme ich natürlich in folgendem Fall zu: Ich habe es zwar nicht explizit gesagt, aber nachdem bisher im wesentlichen überall über α-β-Pseudokoinzidenzanlagen gesprochen wurde, war das für mich implizit vorausgesetzt, daß ich natürlich in erster Linie α-Überwachung meine. Was die Bemerkung von Herrn Dr. König betrifft, so stimme ich mit dem ersten Teil auch völlig überein, daß die wesentlichen Gefahren natürlich da liegen, wo sehr hohe Konzentrationen auftreten. Meine Bemerkung hierzu bezog sich lediglich auf die von Ihnen getane Äußerung, daß fünf α-β-Pseudokoinzidenzanlagen sehr teuer wären. Ich darf das vielleicht etwas klarer machen, was ich meinte. Ich meine, daß mit einer α-β-Pseudokoinzidenzanlage in der Sammelleitung eine sehr starke Konzentration in der Raumluft relativ schnell erfaßt wird. Von dem Preis, den die vier anderen Anlagen kosten würden, kann man selbstverständlich eine größere Anzahl von stationären Luftprobennehmern und von personal air monitors anschaffen, die man dann, wenn diese eine kontinuierlich messende Anlage anspricht, sofort auswerten kann.

KÖNIG: Ich bin bereit, diese eine Pseudokoinzidenzanlage in der Abluftleitung zu konzedieren, aber ich bin fest davon überzeugt, daß es doch nützlicher ist, vor Ort zu messen, weil ich befürchte - und wir haben einige Male diese Erfahrung gemacht -, daß ganz massive Raumkontaminationen von der Luftüberwachung einfach nicht erkannt wurden. Wir haben schon nach Gerätefehlern gesucht und nachträglich festgestellt - nachdem alle möglichen Fehlerquellen an dem Gerät untersucht worden waren, daß auf dem Meßfilter keine Aktivität vorhanden war.

KIY: Ich möchte hier kurz aus etwa achtjähriger Erfahrung - allerdings eingeschränkt auf die Handhabung von Plutonium in Handschuhkästen - berichten. Daraus kann ich sagen, daß wir mehrere Kontaminationen pro Tag hatten, im Durchschnitt zwei bis drei, wobei in 95 % aller Fälle die Kontaminationen direkt an Kontaminationsmonitoren festgestellt wurden. In - grob geschätzt - 5 % aller Fälle konnten wir Kontaminationen in der Raumluft feststellen, allerdings sehr geringe Mengen, die mit stationären, diskontinuierlich ausgewerteten Probenehmern erfaßt wurden. Wir hatten einige Fälle, und zwar etwa im Promillebereich, wo wir tatsächlich einen Alarm über kontinuierlich arbeitende Meßgeräte bekommen haben: In zwei Fällen bei schweren Zwischenfällen, und dieses bei α-β-Pseudokoinzidenzmeßplätzen! Wir sind zu dem Schluß gekommen, daß für uns die beste Möglichkeit der Überwachung die war: Kontinuierliche Probenahme während der Arbeitszeit, diskontinuierliche Auswertung für die Bilanzierung, einfachste Meßgeräte z.B. in der Gesamtraumabluft vor den Filtern für die Alarmgabe und α-β-Pseudokoinzidenz-Meßplätze nur dort einzusetzen, wo man mit einer gewissen Leckrate rechnen kann oder rechnen muß, die eine geringe Belastung bringt, aber möglichst frühzeitig erkannt wird. Ich kann auch hier die Erfahrung von Herrn Dr. König bestätigen, daß mit den α-β-Pseudokoinzidenz-Raumluftmeßplätzen gegenüber den anderen kaum eine Verbesserung, eher schlechtere Meßergebnisse zu erzielen waren, bedingt einmal durch z.T. längere Leitungen und Zuführungen, so daß eine wesentliche Abscheidung in diesen Leitungen wohl schon erfolgte.

KIEFER: Vielen Dank, Herr Kiy, Sie haben sicher in der Bundesrepublik die größte Erfahrung, die wir überhaupt bisher bei der Plutoniumüberwachung in der Luft hatten. Deshalb war Ihr Beitrag für uns besonders wichtig.

JAHN: Ich habe den Eindruck gewonnen, daß - wie das immer ist - die Wahrheit etwas in der Mitte liegt. Herr Kiefer, Sie hatten richtig gesagt, die Personendosen sind sicher das Entscheidende. Bei der Personendosis denkt man also Filmplakette und Stabdosimeter, also Einrichtungen, von denen ich die Informationen nach dem Ereignis bekomme. Bei der intake-Messung mit diesen kleinen Personal-Staubsammlern wäre das ja auch so. Ich möchte

doch daran erinnern: Bei der Personendosismessung gibt es auch die Strahlungsfeldmessungen, die also für den präventiven Strahlenschutz sehr wichtig sind, nämlich bei der Vorausplanung; etwas, worauf auch Herr Jacobs hingewiesen hat. Bei der Luftüberwachung wäre es dann doch wohl immer noch die Konzentrationsmessung für den präventiven Strahlenschutz, daß ich mir vorher sage: Das wird kommen. Ich meine insgesamt - den Eindruck habe ich hier gewonnen -, daß es in Zukunft wieder sehr auf den Strahlenschutzverantwortlichen, den Sachverständigen, ankommen wird, welchen Weg er im einzelnen geht, und ich wollte eigentlich nur daran erinnern, man sollte also darüber, daß das wesentliche der Mensch ist, nicht ganz vergessen, daß das, was ich überwachen will - den Menschen -, etwas zum Strahlenindikator degradiere, indem ich nämlich nachträglich feststelle: Er hat nun die und die Dosen bekommen und diesen und diesen intake aufgenommen. Für die Vorausabschätzung wollte ich eine Lanze brechen und das können Sie nur mit Geräten, d.h. mit etwas, das zunächst vom Menschen unabhängig ist. In Zukunft kommt es sicher sehr darauf an, die Dinge abzuwägen.

KIEFER: Ich bin ganz Ihrer Meinung; ich bin also auch der Auffassung, daß man die Dosis vorher bestimmen und Dosismessungen durchführen soll. Die Kontrolle nachher mit Personendosimetern ist sehr schön, günstiger ist natürlich die Messung über die Aufnahme, denn a) kann ich nachher noch etwas tun - die Aufnahme kann ich ja unter Umständen wieder reduzieren - und b) ist die Meßempfindlichkeit des Body Counter ungleich größer, so daß ich also tatsächlich schon Aktivitäten im Körper nachweisen kann, die nur zu Dosen von einigen mR überhaupt führen. Infolgedessen kann man also durchaus noch etwas mit der Body Counter-Messung erreichen, ehe es zu einer echten Belastung gekommen ist.

JACOBS: Herr Edelhäuser hat, als er die Lanze für die Raumluftüberwachung brach, gesagt, Raumluftüberwachung ist notwendig. Ganz sicher ist sie nur dann notwendig, wenn Umgang mit offenen radioaktiven Stoffen stattfindet. Aber jetzt meine Frage: Ab welchen Mengen - oder was sind die Kriterien - ist eine Raumluftüberwachungsanlage notwendig? Ich habe etwas das Gefühl, daß wir uns bei der Raumluftüberwachung keine Gedanken machen, ab wann sie notwendig ist. Ich habe es auch bei uns erlebt, daß in Bereichen, in denen unterhalb von Freigrenzen umgegangen wird, Raumluftüberwachungsanlagen gelegentlich in Betrieb gesetzt werden, und da würde ich gerne einmal wissen: Welche Philosophie vertreten Sie, ab wann ist eine Raumluftüberwachung notwendig?

EDELHÄUSER: Da bin ich also ganz ehrlich. Ich habe das bewußt nicht genannt, weil mir völlig klar ist, daß das sehr schwierig sein wird, das festzulegen. Diese Äußerung war insbesondere im Gegensatz zu der etwas provozierenden Hypothese von gestern nachmittag zu sehen, die stationäre Raumluftüberwachung zugunsten der Personenüberwachung ganz fallenzulassen. In diesem Gegensatz ist es zu sehen. Ich möchte mir nicht anmaßen, die Kriterien wann und wo hier aus dem Stegreif zu benennen. Ich stimme da mit Herrn Jahn völlig überein, daß es wirklich von Fall zu Fall sehr genau abgewogen werden muß, wann man was benutzt.

GEBAUER: Ich habe zwei Bemerkungen, die vielleicht allgemeinerer Natur sind, zu den letzten Diskussionsbeiträgen. Ich habe in der Diskussion so den Eindruck gehabt, man schiebt den Mangel an einer repräsentativen Probenahmemöglichkeit auf einen Monitor. Ein Monitor wird immer das messen, was ihm angeboten wird, und wenn man ihm also nicht diese Luft anbietet, die also gerade an einer Glove-Box an einem Arbeitsplatz wirklich existiert, und die inhaliert werden kann, dann wird er eben ein falsches Ergebnis in bezug auf diese persönliche Inhalation geben. Man müßte also - ohne jetzt die Sache weiter auszuführen - wirklich doch einmal die Prinzipien der Luftführung in solchen Laboratorien untersuchen, um festzustellen, ob alle Raumelemente erfaßbar sind und in eine Leitung gebracht werden können. Wenn das nicht der Fall ist, dann muß man Arbeitsplatzüberwachung im engsten Sinne wirklich treiben. Ansonsten kann man natürlich mit einer Raumluftüberwachung schon Hinweise bekommen. Die zweite Sache vielleicht noch ganz kurz: Nach wie vor - meine ich doch - gelten die gesetzlichen Grundlagen, die in der ersten

Strahlenschutzverordnung fixiert sind, und auch wenn wir mit der einen oder anderen Formulierung vielleicht heute nicht recht glücklich sind, nach wie vor schreibt diese aber Konzentrationswerte vor. Und ich glaube doch, daß die gesetzliche Grundlage heute auch Grundlage ist für die Auslegung verschiedener Meßgeräte.

KIEFER: Daß die Industrie mit dieser Auslegung glücklich ist, das glaube ich Ihnen gerne. Dafür sind die Meßgeräte vorhanden. Aber im Moment ist es doch tatsächlich so, daß wir auf der einen Seite die Strahlenschutzverordnung haben, und die Strahlenschutzverordnung steht einwandfrei im Gegensatz zum Stand von Wissenschaft und Technik. Der Stand von Wissenschaft und Technik muß genauso berücksichtigt werden, und gerade deshalb haben wir ja Fachleute bei den Behörden, damit diese sich eben überlegen: Entspricht das noch einigermaßen dem Stand von Wissenschaft und Technik? Um die Sache zu vereinfachen, soll eben jetzt möglichst schnell die Strahlenschutzverordnung auf den neuesten Stand gebracht werden.

GEBAUER: Das hört man allerdings schon seit einigen Jahren.

LENKEIT: Wie soll das funktionieren? Um noch einmal auf das Argument von Herrn Jahn zurückkommen: Man kann die Dosis messen, man kann dem Mann einen Dosiswarner geben. Kann man dem Mann auch einen Warner geben, daß er genug inkorporiert hat? Das wäre jetzt die Frage. Das wäre auch das einfachste; ich fürchte nur, das wird nicht so einfach funktionieren. Das würde bedeuten, daß jeder mit einem Body Counter herumläuft.

KIEFER: Nun, was damit gemeint war, das war ja ziemlich klar, d.h. stellen Sie sich vor, daß man beispielsweise Monitoren an den Arbeitsplätzen hat, die dann anzeigen, wenn die Luftkonzentration so hoch wird, daß der Mann wirklich eine größere Menge inkorporieren würde. Das geht sicher im Einzelfall oder wenn es Edelgase sind, da genügt ja eine echte Dosisleistungsmessung , damit ich diese Warnung bekomme. So war das sicher gedacht.

DOBIASCH: Ich erinnere mich an den Vortrag von Herrn Prof. Jacobi, als er sagte, daß die alten MZK-Werte von den neuen irgendwie zu ermittelnden Werten - er nannte sie DAC-Werte - doch kaum oder nicht nennenswert abweichen und daß das somit eine indirekte Bestätigung dessen war, was vor vielen Jahren einmal errechnet wurde. Ich glaube, er hat auch das noch erwähnt, und nicht nur von der aufgenommenen Menge gesprochen, sondern es muß immer noch der Rückschluß kommen von der Konzentration in der Luft zur aufgenommenen Menge. Gehe ich da richtig in dieser Annahme?

KIEFER: Herr Dobiasch, ich glaube, nein. Und zwar ist es einfach so: Die Dosis, die zugelassen ist, die bleibt natürlich in etwa gleich. Die Konzentrationen bleiben vielleicht auch in etwa gleich, aber nur unter der Voraussetzung, daß Sie diese Konzentration das ganze Jahr gleichmäßig einatmen, und das tun Sie aber in der Praxis nicht. Deshalb geht man eben von den Konzentrationen ab und mißt direkt die Aufnahme. Das bedeutet, daß es auf das gleiche herauskommt, ob Sie meinetwegen in 40 Stunden eine gleichmäßige Aufnahme des Zugelassenen haben oder in einer Stunde das 40-fache oder gar in zehn Minuten dann eben das 240-fache. Darum geht es. Das läßt sich natürlich ganz anders messen, da ist man dann nicht mehr gezwungen, unbedingt mit Luftüberwachungsgeräten zu arbeiten, vor allem dann, wenn es etwa um Edelgase geht. Bei Edelgasen wäre es sogar besser, weil Sie dann die Geometrie gar nicht mehr berücksichtigen müssen, wenn Sie direkt die Dosismessungen machen. Das ist nämlich die echte Gefährdung. Das andere sind nur Umrechnungsfaktoren.

DOBIASCH: Das ist vollkommen richtig. Es gibt doch heute schon z.B. den sogenannten 40 Stunden-Wert, es gibt den sogenannten Stunden-Wert für kurzzeitige Arbeiten. Es wird doch heute mit der MZK bereits so gearbeitet. Man geht da nicht davon aus, daß man in einem Kontrollbereich den 168 Stunden-Wert unbedingt einhalten muß.

KIEFER: Ja, aber das ist bereits eine weitere Auslegung der Strahlenschutzverordnung. Und wenn jeder ganz klar weiß, was er tun soll, was er an Dosis zulassen darf, dann kann er sich diese Werte selbst ableiten oder er kann sie benützen; sie vereinfachen dann vielleicht seine Messung, sie müssen es aber nicht. Das ist nicht die Grundlage dafür. Darum geht es.

KÖNIG: Vielleicht darf ich an einem drastischen Beispiel die Situation bei der Anwendung der Konzentration verdeutlichen. Ich hatte vor einiger Zeit eine Diskussion, in der es um einen Behälter ging, in dem Tritium in Gasform enthalten war, weit oberhalb der MZK - auch des zehnfachen Wertes. Und nun stand die Luftüberwachung zur Diskussion, obwohl die Gesamtmenge, die in dem Behälter enthalten war, weit unter dem zulässigen Höchstwert für die in den Körper aufgenommene Aktivität lag. In solchen Fällen hat - meiner Meinung nach - die Forderung nach einer maximal zulässigen Konzentration überhaupt keinen Sinn mehr.

KIEFER: Das war ein typisches Beispiel, daß man eben umdenken muß, und die Diskussion überhaupt während dieser zwei Tage hat sicher gezeigt, daß man jetzt wirklich einmal anders denken sollte und sich überlegen muß: Geht es immer einfach nur mit Luftüberwachungsanlagen wie bisher oder gibt es noch andere Möglichkeiten, die vielleicht sogar den Strahlenschutz verbessern und uns allgemein sogar mehr Sicherheit geben wie die Verfahren, die bisher angewandt worden sind?

Ich darf damit die Diskussion schließen.

Teilnehmerliste

Name	Anschrift
J.C. Abrahamse	Middelburg, Noordweg 382, Niederlande
J. Amann	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
Y. Atakan	BBR Reaktor GmbH., 68 Mannheim 41, Heppenheimer Str. 27
J. Baarli	CERN, Head of Health Physics, 1211 Genf 23, Schweiz
D. Bachner	Institut für Reaktorsicherheit, 5 Köln, Glockengasse 2
H.G. Barz	Hahn-Meitner-Institut, Abt. Strahlenschutz, 1 Berlin 39, Glienicker Str. 100
H.-U. Berger	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
K.-D. Borchardt	Hahn-Meitner-Institut, Abt. Strahlenschutz, 1 Berlin 39, Glienicker Str. 100
D. Brandt	Preussische Elektrizitäts-Aktiengesellschaft, Kernkraftwerk Würgassen, 3472 Beverungen 1, Postfach 1220
I. Briessen	Kernkraftwerk Obrigheim, 6951 Obrigheim, Postfach 100
K. Buijs	Europäisches Institut für Transurane, 75 Karlsruhe, Postfach 2266
D. Chen	Eidgen. Institut für Reaktorforschung, Abt. für Strahlenüberwachung (SU), 5303 Würenlingen, Schweiz
E.M.M. de Ras	Central Bureau for Nuclear Measurements, Steenweg naar Retie, 2440 Geel, Belgien
W. Dobiasch	Münchener Apparatebau, Kimmel KG, 8 München 5, Postfach 113
F. Domke	Herfurth GmbH., 2 Hamburg 50, Beerenweg 6-8
J. Dühn	Kraftanlagen Heidelberg, 69 Heidelberg, Im Breitspiel 7
H. Edelhäuser	Bundesministerium des Innern, Referat UAII3, 53 Bonn, Rheindorferstr. 198
J.G. Festag	Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH., 61 Darmstadt, Postfach 541
L. Finsterwalder	Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen mbH., 7501 Leopoldshafen, Postfach
R. Fritze	TÜV Norddeutschland e.V., Hauptdienststelle Hamburg, 2 Hamburg 54, Postfach 540 220
R. Gammel	Badenwerk AG, Abt. MK, 75 Karlsruhe, Badenwerkstr. 2
H. Gebauer	Frieseke & Hoepfner GmbH., 852 Erlangen-Bruck, Postfach 1660
G. Hecht	Kraftwerk-Union-Aktiengesellschaft, 852 Erlangen, Postfach 3220
M. Heermann	Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung Baden-Württemberg, 7 Stuttgart, Rotebühlplatz 30
K. Henning	Gesellschaft für Kernenergieverwertung in Schiffbau und Schifffahrt mbH., 2057 Geesthacht-Tesperhude, Postfach
F. Horsch	Kernforschungszentrum Karlsruhe, PNS, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
W. Issel	Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von bestrahlten Kernbrennstoffen mbH., 7501 Leopoldshafen, Postfach

Name	Anschrift
W. Jacobi	Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Institut für Strahlenschutz, 8042 Neuherberg, Ingolstädter Landstraße 1
H. Jacobs	Kernforschungsanlage Jülich, Zentralabteilung Strahlenschutz, 517 Jülich 1, Postfach 365
H. Jahn	Kernforschungsanlage Jülich, Zentralabteilung Forschungsreaktoren, 517 Jülich 1, Postfach 365
S. Kausch	Kraftanlagen Heidelberg, 69 Heidelberg, Im Breitspiel 7
W. Kiesewetter	Deutscher Wetterdienst, Zentralamt, 605 Offenbach, Postf. 185
P. Kimmel	Münchener Apparatebau, Kimmel KG, 8 München 5, Postfach 113
M. Kiy	BBR Reaktor GmbH., 68 Mannheim 41, Heppenheimer Str. 27
H. Klinger	Ministerium für Wirtschaft und Verkehr des Landes Schleswig-Holstein, 23 Kiel, Duesterbrooker Weg 64
L.A. König	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
J. Kötter	Niedersächsisches Landesverwaltungsamt, Arbeitsmedizin und Gewerbehygiene, 3 Hannover 1, Bertastr. 4-6
H. Krause	Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung Baden-Württemberg, 7 Stuttgart, Rotebühlplatz 30
L. Kuhn	Kraftwerk-Union-Aktiengesellschaft, Abt. R 131, 852 Erlangen, Postfach 3220,
M. Kunz	Landesgewerbeaufsichtsamt für Rheinland-Pfalz, Meßstelle für Immissions- und Strahlenschutz, 65 Mainz, Rheinstr. 4
R. Lenz	Byk-Mallinckrodt, 6051 Dietzenbach-Steinberg, Postfach 2060
H. Mahnau	Herfurth GmbH., 2 Hamburg 50, Beerenweg 6-8
W. Massengeil	Kernforschungsanlage Jülich, TD-Strahlenschutz, i.Hs. TD-DE, 517 Jülich 1, Postfach 365
R. Maushart	Berthold/Frieseke Vertriebs-GmbH., 75 Karlsruhe 41, Postfach 410 220
H. Müh	Energieversorgung Schwaben, 7 Stuttgart 1, Goethestr. 12
J. Narrog	Ministerium für Arbeit, Gesundheit und Sozialordnung Baden-Württemberg, 7 Stuttgart, Rotebühlplatz 30
P. Nebendahl	Sozialministerium des Landes Schleswig-Holstein, 23 Kiel 1, Brunswiker Str. 16/22
H. Neff	Siemens AG, Abt. ESTE 53, 75 Karlsruhe, Rheinbrückenstr. 50
A. Neu	Landesanstalt für Arbeitsschutz und Arbeitsmedizin Immissions- und Strahlenschutz, 75 Karlsruhe 1, Postfach 4060
R. Niekrawietz	Siemens AG, Abt. E 662, 75 Karlsruhe, Rheinbrückenstr. 50
K. Pfeiffer	Kraftwerk-Union-Aktiengesellschaft, 6 Frankfurt 70, Oskar-Sommer-Str. 15
E. Piesch	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/GM, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
U. Precker	6952 Neckarelz, Paul-Gerhardt-Str. 27
K.A. Reichert	Kraftanlagen Heidelberg, 69 Heidelberg, Im Breitspiel 7
W. Reiser	Strahlenzentrum der Justus-Liebig-Universität, Abt. Strahlenschutz, 63 Giessen, Leihgesterner Weg 217
H. Reuter	Herfurth GmbH., 2 Hamburg 50, Beerenweg 6-8
M.T. Riccato	Byk-Mallinckrodt, 6051 Dietzenbach-Steinberg, Postfach 2060
B. Rodenbäck	Kernforschungsanlage Jülich, TD-Strahlenschutz, i.Hs. TD-DE, 517 Jülich 1, Postfach 365

Name	Anschrift
P.F. Sauermann	Kernforschungsanlage JÜlich, Zentralabteilung Strahlenschutz, 517 JÜlich 1, Postfach 365
H. Schieferdecker	Kernforschungszentrum Karlsruhe, Med/Tox., 75 Karlsruhe, Postfach 3640
A. Schmitt	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/GM, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
D.E. Schmitt	Münchener Apparatebau, Kimmel KG, TB Johannisberg, 6222 Geisenheim-Johannisberg, Johann-de-Laspée-Straße
J. Schindewolf	Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft mbH., 7501 Leopoldshafen, Postfach
G. Schulze-Pillot	Farbwerke Hoechst AG, Radiochemisches Labor, 623 Frankfurt/Main-Hoechst 80, Postfach 800 320
D. Schwenke	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
J. Schwibach	Bundesgesundheitsamt, Abteilung für Strahlenhygiene, 8042 Neuherberg, Ingolstädter Landstraße 1
K. Sinn	Kraftanlagen Heidelberg, 69 Heidelberg, Im Breitspiel 7
G. Steer	Siemens AG, Abt. E 662, 75 Karlsruhe, Rheinbrückenstr. 50
W. Stephan	Kernkraftwerk Obrigheim, 6951 Obrigheim, Postfach 100
W. Tachlinski	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
P. Tolksdorf	TÜV Rheinland e.V., 5 Köln 30, Lukasstr. 90
J.P. Vaane	Europäisches Institut für Transurane, 75 Karlsruhe, Postfach 2266
P. v. Rönne	TÜV Hannover e.V., 3 Hannover-Wülfel, Postfach 260 740
F. Wagner	Kernkraftwerk Obrigheim, 6951 Obrigheim, Postfach 100
E. Wechselberger	Kernkraftwerk-Betriebsgesellschaft mbH., 7501 Leopoldshafen, Postfach
J. Wilhelm	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/Ch, 75 Karlsruhe, Postfach 3640
I. Winkelmann	Bundesgesundheitsamt, Abteilung für Strahlenhygiene, 8042 Neuherberg, Ingolstädter Landstraße 1
M. Winter	Kernforschungszentrum Karlsruhe, ASS/0, 75 Karlsruhe, Postfach 3640