



Überwachung der Radioaktivität von Kuhmilch durch Gammaskpektrometrie

Bearbeiter: R. Otto, Landesmessstelle LUFA-ITL, Kiel
J.-J. Geering, Institut universitaire de radiophysique appliquée, Lausanne, Schweiz
H. Völkle, Physikdepartement der Universität, Fribourg, Schweiz

Inhaltsverzeichnis

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
2.1	Messgröße.....	1
2.2	Maßeinheit.....	1
2.3	Zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
3	Probenentnahme, Probenaufbereitung und Messverfahren.....	2
3.1	Probenentnahme.....	2
3.2	Probenaufbereitung.....	2
3.3	Messung und Kalibrierung.....	2
3.4	Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze.....	3
4	Bewertung des Verfahrens.....	3
4.1	Zeitbedarf.....	3
4.2	Kosten.....	3
5	Dokumentation.....	4
6	Bemerkungen.....	4
7	Literatur.....	4

1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Zweck der Überwachungsmaßnahme ist die Messung der γ -Aktivität der Milch, insbesondere ^{60}Co , ^{131}I od, ^{137}Cs und ^{140}Ba in der Umgebung einer kerntechnischen Anlage. Da die Milch und die Milchprodukte eine Hauptrolle in der Ernährung der Kinder und der Erwachsenen spielen, ist es unerlässlich, eine Belastung der Milch durch Radionuklide im frühesten Stadium zu erkennen.

2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze

2.1 Messgröße

Messgröße ist die Aktivitätskonzentration der einzelnen Radionuklide.

2.2 Maßeinheit

Bq/L Frischmilch

2.3 Zu fordernde Nachweisgrenze

Die zu fordernde Nachweisgrenze kann z. B. für ^{137}Cs aus folgenden Parametern berechnet werden:

- Maximal zulässige effektive Dosis :
Deutschland: 0,3 mSv/Jahr
Schweiz: 0,2 mSv/Jahr
- Ingestionsdosiskoeffizient für ^{137}Cs : 1,3E-08 Sv/Bq für Erwachsene
1,2E-08 Sv/Bq (D) für Kleinkinder (> 1 – ≤ 2 Jahre)
1,2E-08 Sv/Bq (CH) für Kleinkinder (1 Jahr)
- Jährlicher Konsum von Milch und Milchprodukten: 480 kg (s. Anlage VII in [1]).
- Drittelkonzept des AKU: Faktor 1/3
- Annahme der Freisetzung von 10 Radionukliden: Faktor 1/10



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.10

Seite: 2 von 4

Stand: Dezember 2014

Hieraus ergeben sich folgende zu fordernde Nachweisgrenzen für ^{137}Cs :

- Erwachsene: 1,6 Bq/kg (D)
1,1 Bq/kg (CH)
- Kleinkinder: 1,7 Bq/kg (D)
1,2 Bq/kg (CH)

Erforderliche Nachweisgrenze nach REI [2]: 0,2 Bq/L, bezogen auf ^{60}Co .

3 Probenentnahme, Probenaufbereitung und Messverfahren

3.1 Probenentnahme

Die Häufigkeit der Probenentnahmen wird durch die REI [2] vorgegeben, respektive durch den Probenentnahmeplan des Bundesamtes für Gesundheit für die Schweiz. Siehe auch [3]. Ein Liter Milch ist erforderlich. Es wird empfohlen, besonders im Sommer, die Milch so bald wie möglich nach der Probenentnahme zu stabilisieren, z. B. mit 3,5 ml Natriumazid-Lösung (5 %) pro Liter Milch. Die Fa. Merck bietet auch „Natriumazid-Tabletten zur Stabilisierung von Milchuntersuchungsproben“ an.

Diese Maßnahme ist besonders notwendig wenn die radiochemische Trennung von Sr-90 direkt aus der frischen Milch erfolgt.

3.2 Probenaufbereitung

Falls die Milch eine genügend lange Zeit gemessen werden kann, um die erforderliche Nachweisgrenze zu erreichen, kann sie ohne Vorbereitung direkt in flüssiger Form gemessen werden.

Trocknung:

Die Trocknung der Milch erfolgt am besten durch Gefriertrocknung oder mit einem Sprühtrockner, sonst mit einer Infrarotlampe. Ein Liter Milch ergibt durchschnittlich ca. 125 g Trockenmilch.

Veraschung:

Die Veraschung der Trockenmilch erfolgt in einem Muffelofen bei einer Höchsttemperatur von 400 °C, um Verluste an Cäsium zu vermeiden. Die Asche wird dann in einem Mörser zermahlen und in eine geeignete Messschale (z.B. 70 mm Durchmesser, 16 mm Höhe) gebracht. Ein Liter Milch ergibt ca. 8 g Asche. Siehe auch [4].

3.3 Messung und Kalibrierung

Detektor:

Die γ -spektrometrische Messung sollte mit einem Ge-Detektor und einem Vielkanal-Analysator (mindestens 2000 Kanäle im Bereich bis 2000 keV) erfolgen.

Abschirmung : 8 bis 10 cm Blei

Behälter:

Flüssige Milch: 1 Liter zylindrischer Behälter (z.B. 9,5 cm Durchmesser, 15,0 cm hoch)

Trockenmilch: 500 ml zylindrischer Behälter (z.B. 9,5 cm Durchmesser, 7,5 cm hoch)

Asche: niedrige Messschale, (z.B. 7,0 cm Durchmesser, 1,6 cm hoch)

Wirkungsgradkalibrierung:

Die Wirkungsgradkalibrierung erfolgt mit mehreren Kalibrierlösungen oder mit einer Multinuklid-Eichlösung in derselben Messgeometrie wie die Probe. Für den Energie-Bereich von 122 bis 1836 keV eignen sich folgende Nuklide: ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{54}Mn , ^{60}Co und ^{88}Y [5].

Energie-Kalibrierung:

Die Energie-Kalibrierung sollte wiederholt werden, sobald die Energie-Diskrepanz 0,5 keV überschreitet. Diese Kalibrierung kann z. B. mit einer ^{152}Eu -Quelle durchgeführt werden.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.10

Seite: 3 von 4

Stand: Dezember 2014

Selbstabsorptionskorrektur:

- Bei der Messung der Frischmilch kann eine Korrektur für Selbstabsorptionsverluste vernachlässigt werden (Dichte der Frischmilch : ca. $1,03 \text{ g/cm}^3$ d.h. gleich wie Kalibrierlösung).
- Für Trockenmilch ist eine Selbstabsorptionskorrektur erforderlich. Die Dichte beträgt je nach Trocknungsverfahren zwischen $0,2$ und $0,8 \text{ g/cm}^3$.
- Wenn Milchasche (Dichte zwischen $0,2$ und $0,5 \text{ g/cm}^3$) in einer flachen Schale gemessen wird, ist die Selbstabsorptionskorrektur vernachlässigbar (weniger als 2 %).

3.4 Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze

Es sollte sowohl die statistische Messunsicherheit der Probe, als auch die vom Kalibrierpräparat und der Probenaufbereitung verursachte systematische Unsicherheit angegeben werden.

Die Nachweisgrenze* hängt von der Zählstatistik, insbesondere der Messzeit, der Abschirmung und den Eigenschaften des Detektors ab.

Folgendes Beispiel zeigt für ^{60}Co den Einfluss der Probenvorbereitungsart auf die Nachweisgrenze (HPGe-Detektor, 120 cm^3 , 24 % relativer Wirkungsgrad bei $1,33 \text{ MeV}$).

- Messung von 1 Liter Frischmilch in einer zylindrischen Flasche:
Nachweisgrenze : $0,2 \text{ Bq/Liter}$ nach mindestens 24 Stunden Messzeit.
- Messung von 140 g Trockenmilch (entsprechend 1 Liter Frischmilch) in einer 500 ml zylindrischen Flasche : $0,2 \text{ Bq/Liter}$ Milch nach 20 Stunden Messzeit.
- Messung von 8 g Milchasche (entsprechend 1 Liter Milch) in einer 50 ml Messschale: $0,2 \text{ Bq/Liter}$ Milch nach ca. 3 Stunden Messzeit.

Es wird also empfohlen, Frischmilch anstatt Trockenmilch zu messen, da in beiden Fällen die Nachweisgrenze für eine gegebene Messzeit nicht sehr unterschiedlich ist. Die Trocknung der Milch wird empfohlen, wenn die Probe längere Zeit aufbewahrt werden muss oder wenn eine ^{90}Sr -Messung erfolgt. Man sollte Trocknungsbedingungen wählen, die ein möglichst dichtes Pulver ergeben. Eine Veraschung ist nur notwendig, wenn eine sehr niedrige Nachweisgrenze erforderlich ist.

4 Bewertung des Verfahrens

4.1 Zeitbedarf

Trocknung:	ca. 20 Stunden
Veraschung:	ca. 28 Stunden
Messung:	- Flüssige Milch: ca. 24 Stunden
	- Trockenmilch: ca. 20 Stunden
	- Asche: ca. 3 Stunden
Insgesamt effektive Arbeitszeit:	ca. 1 Stunde

4.2 Kosten

HPGe-Detektor mit Vielkanalanalysator und PC:	ca. 50.000,-- €
Lyophilisator:	ca. 22.000,-- €
Muffelofen:	ca. 1.400,-- €

* Zur Definition von Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze siehe [7].



5 Dokumentation

Zur Dokumentation und Berichterstattung wird auf das Blatt 2.4 dieser Loseblattsammlung verwiesen.

6 Bemerkungen

Es ist zu beachten, dass sich während der Trocknung und der Veraschung ein Teil der Iod-Isotope verflüchtigen kann. Um diese Isotope zu erfassen, sollte die Frischmilch gemessen werden. Die geforderte Nachweisgrenze für I-131 von 0,01 Bq/L kann erreicht werden, indem man die Iod-Isotope auf einem Anionenaustauscher konzentriert [6] und mindestens 5 Liter Milch verwendet.

7 Literatur

- [1] Verordnung über den Schutz vor Schäden durch ionisierende Strahlen (Strahlenschutzverordnung - StrlSchV) vom 20. Juli 2001 (BGBl. I, S.1714), <http://www.bfs.de/>
- [2] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, GMBI. Nr. 29 vom 19.8.1993 und Nr. 9/10 vom 20.03.1996.
- [3] Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“, F- γ -SPEKT-Milch-01, von der Internetseite des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit
abrufbar: <http://www.bmu.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen>.
- [4] Boppel, Schnelle Trocken-Veraschung von Lebensmitteln, IAEA-SM-148/4.
- [5] K. Debertin, R. G. Helmer, Gamma-and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors, 1988, Elsevier, Amsterdam.
- [6] Loseblattsammlung, FS-78-15-AKU, Blatt 3.1.8.
- [7] DIN ISO 11929 Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen“ (ISO 18589-6:2009), Beuth Verlag GmbH, 10772 Berlin, 2010

Bitte beachten Sie den Hinweis im Losen Blatt 1.3 „Erläuterungen zur Loseblattsammlung“.