



## Überwachung der Radioaktivität von gasförmig vorliegenden, gammastrahlenden Iodisotopen in der Luft

Bearbeiter: K. Heinemann, Jülich, ehem. Forschungszentrum Jülich GmbH  
W. Kukla, Schönbrunn, ehem. Kernkraftwerk Obrigheim  
T. Steinkopff, Deutscher Wetterdienst, Offenbach  
H. Wershofen, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

### Inhaltsverzeichnis

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
3	Messverfahren .....	2
3.1	Probenentnahme.....	2
3.2	Probenaufbereitung.....	3
3.3	Messung und Auswertung.....	3
3.3.1	Gammaskpektrometrie.....	3
3.3.2	Kalibrierung.....	3
3.3.3	Berechnung der Analysenergebnisse .....	3
3.3.4	Rechenbeispiel .....	4
3.4	Betrachtung der Messunsicherheit und der Nachweisgrenze.....	5
3.4.1	Kombinierte Standard-Messunsicherheit.....	5
3.4.2	Nachweisgrenze .....	6
4	Beurteilung des Verfahrens .....	6
4.1	Zeitbedarf.....	6
4.2	Ausstattung am Beispiel des Deutschen Wetterdienstes (DWD) .....	6
5	Dokumentation .....	7
5.1	Berichterstattung.....	7
5.2	Sonstige festzuhaltende Daten .....	7
5.3	Aufbewahrungszeiten .....	7
6	Literatur .....	7

### 1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Das beschriebene Verfahren dient der nuklidspezifischen Bestimmung gasförmig vorliegender Radionuklide des Iods über deren Gammastrahlung durch direkte Messung der Probe nach Anreicherung des Iods an einem Adsorbens. Im einfachsten Fall wird dabei nicht zwischen gasförmigem, elementarem Iod ( $I_2$ ) und organischen Iodverbindungen (z. B.  $CH_3I$ ) unterschieden.

Das Verfahren erfüllt die Anforderungen der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [1] im bestimmungsgemäßen Betrieb und die Anforderungen der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum IMIS (AVV-IMIS) [2].

### 2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze

Messgröße ist die über den Probenentnahmezeitraum gemittelte Aktivitätskonzentration von gammastrahlendem, gasförmigen Iod, bezogen auf die Mitte des Sammelintervalls.

Die Maßeinheit ist die Radioaktivitätskonzentration in  $Bq \cdot m^{-3}$ .

Gemäß der REI wird im bestimmungsgemäßen Betrieb kerntechnischer Anlagen für I-131 eine Nachweisgrenze von  $5,0 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ , bezogen auf ein Sammelintervall von 14 Tagen gefordert [1]. Im Rahmen des Routinemessprogramms im Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität (IMIS) gilt eine Nachweisgrenze von  $5,0 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ , bezogen auf eine Sammelzeit von 7 Tagen [2].

### **3 Messverfahren**

#### **3.1 Probenentnahme**

Mittels einer Pumpe wird die Luft zur Vorabscheidung der Schwebstoffpartikel zunächst über einen Schwebstofffilter und dann zur Anreicherung der gasförmig vorliegenden Radionuklide des Iods über KI-impregniertes Aktivkohlegranulat geleitet [3, 4]. Der Luftdurchsatz sollte auf 1 bis  $3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  eingestellt sein, um eine ausreichend lange Kontaktzeit von mehr als 0,2 Sekunden zwischen der durchgesetzten Luft und dem Adsorbermaterial zu erzielen. Damit wird eine annähernd 100 %ige Adsorption des Iods und der Iodverbindungen erreicht. Zur Vermeidung von Kondensation und zur Verbesserung des Filterwirkungsgrades soll eine Heizung zur Temperaturerhöhung der Zuluft vorgesehen werden. Der Abscheidegrad für  $\text{I}_2$  und  $\text{CH}_3\text{I}$  beträgt bei einer Temperatur von  $45^\circ$  und einer relativen Feuchte von 77 % mehr als 99,9 %. Die konstante Vorwärmung der Luft muss gewährleistet sein, um gleichbleibend hohe Adsorptionseigenschaften des Adsorbers zu sichern. Zur Reduktion von Adsorptionsverlusten ist eine kurze Zuluftleitung aus geeignetem Material (z. B. Edelstahl oder Teflon) mit glatter Oberfläche zu verwenden.

Das Adsorbermaterial wird in eine zylindrische Edelstahlpatrone gefüllt (Abb. 1).



Abb.1: Iodadsorberpatrone, gefüllt mit KI-impregniertem Aktivkohlegranulat

Bei langen Sammelzeiten sollten mindestens zwei Patronen hintereinander geschaltet werden, damit der Filterwirkungsgrad bestimmt werden kann. Die nachgeschalteten Patronen werden dann zur Bestimmung des Filterwirkungsgrades ebenfalls ausgewertet, wenn in der ersten Patrone Iod gemessen wird.

Durch Hintereinanderschalten von zwei Patronen mit Adsorbent unterschiedlicher Selektivität lässt sich sowohl die Aktivitätskonzentration des gasförmigen, elementaren Iods als auch die Aktivitätskonzentration des gasförmigen, organisch gebundenen Iods ermitteln.



### 3.2 Probenaufbereitung

Das Adsorbens wird in ein geeignetes Gefäß (kalibrierte Geometrie für die Gammaskpektrometrie) gefüllt und gleichmäßig durchmischt. Dafür kommen zum Beispiel 250-mL-Kunststoffflaschen oder Marinellibecher in Frage. Wird die Umfüllung vor Ort, direkt nach Ende der Beaufschlagung durchgeführt, muss das Gefäß formstabil bis 60 ° sein, da die Edelstahlpatrone und das Adsorbens noch heiß sind.

### 3.3 Messung und Auswertung

#### 3.3.1 Gammaskpektrometrie

Das Adsorbentmaterial wird gammaskpektrometrisch gemessen. Um Nachweisgrenzen in der Größenordnung von ca. 1 mBq·m<sup>-3</sup> zu erhalten, sind Reinstgermanium-Detektoren mit einer relativen Ansprechwahrscheinlichkeit von mindestens 40 %, bezogen auf einen 3" x 3" NaI(Tl)-Kristall, und einer Halbwertsbreite kleiner als 2,0 keV, bezogen auf die 1332 keV-Gammalinie des Radionuklids Co-60, zu verwenden. Für die Messung sehr kleiner Aktivitäten („Low-Level-Bereich“) wird eine Abschirmung des Detektors aus aktivitätsarmem Blei (Pb-210-Gehalt < 50 Bq/kg) mit mindestens 10 cm Wandstärke empfohlen. Bei einem vielseitig einsetzbaren Gammaskpektrometrie-Messplatz ist in der Regel zwischen der Bleiabschirmung und dem Detektor ein Kupferblech zur Unterdrückung der Bleiröntgenstrahlung bei 75 keV und 85 keV, sowie zusätzlich Plexiglas zur Absorption der am Kupferblech gestreuten Betateilchen installiert. Diese zusätzliche Abschirmung für die Messung höherer Aktivitäten stört jedoch bei der Messung sehr kleiner Aktivitäten, da sie zu einer unnötigen Erhöhung des Compton-Untergrunds führt.

Für Messaufgaben mit geringerer Empfindlichkeit ist eine weniger aufwändige apparative Ausstattung ausreichend.

#### 3.3.2 Kalibrierung

Die Kalibrierung für die Gammaskpektrometrie erfolgt vorzugsweise mit einem speziellen, gelartigen Mischnormal gleicher Dichte und gleichen Volumens, das mehrere Radionuklide bekannter Aktivität enthält. Unter der Annahme einer homogen verteilten Aktivität in der Probe wird das Aktivitätsnormal für die Kalibrierung direkt auf dem Detektor vermessen. Dabei sind auch die notwendigen Summationskorrekturen zu berücksichtigen.

Es wird von einer Vergleichbarkeit zwischen der homogen verteilten Aktivität in einem solchen gelartigen Mischnormal und der Aktivität auf den Oberflächen eines homogen verteilten festen Adsorbens ausgegangen.

#### 3.3.3 Berechnung der Analysenergebnisse

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration  $c_r$  bezogen auf die Mitte des Sammelzeitraums erfolgt nach Gleichung (1):

$$c_r = \frac{N_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot t_m \cdot V} \cdot f_0 \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \quad (1)$$

oder

$$c_r = \frac{R_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_0 \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \quad (1a)$$

mit

$$R_n = \frac{N_n}{t_m} \quad (1b)$$

Dabei bedeuten:

$c_r$  : Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in Bq·m<sup>-3</sup>

$R_n$  : Nettozählrate

$N_n$  : Nettoimpulsanzahl

$\varepsilon_r$  : Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid r in Bq<sup>-1</sup>·s<sup>-1</sup>

$p_\gamma$  : Emissionswahrscheinlichkeit pro Kernumwandlung



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

**Blatt: 3.1.5**

Seite: 4 von 7

Stand: Januar 2012

- $t_m$  : Messzeit der Probe in s  
 $V$  : Durchgesetztes Luftvolumen in  $m^3$   
 $\lambda_r$  : Zerfallskonstante des Radionuklids r  
 $t_A$  : Zeitspanne zwischen Probenentnahme (bezogen auf einen mittleren Sammelzeitpunkt) und Messbeginn in s  
 $f_0$  : Korrektionsfaktor für Unterschiede in der Selbstabschwächung des Iodadsorbers gegenüber dem zur Kalibrierung eingesetzten Gel  
 $f_1$  : Summationskorrektionsfaktor  
 $f_2$  : Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide in der Zeitspanne von der Mitte des Sammelzeitraums bis zum Beginn der Messung  
 $f_3$  : Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide während der Messung

Der Summationskorrektionsfaktor  $f_1$  bei Impulsverlusten liegt bei aufliegenden Punkt- und Flächenpräparaten in der Regel bei Werten zwischen 1,1 und 1,5.

Die Aktivität zu einem Bezugszeitpunkt, der um eine Zeitspanne  $t_A$  vor dem Beginn der Messung liegt, erhält man durch Multiplikation mit  $f_2$  nach Gleichung (2):

$$f_2 = e^{\lambda_r \cdot t_A} \quad (2)$$

Für den Korrektionsfaktor  $f_3$  gilt nach Gleichung (3)

$$f_3 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}} \quad (3)$$

Ist die Zeitspanne zwischen Sammel- und Messzeit bzw. die Messzeit sehr viel kleiner als die Halbwertszeit des zu messenden Radionuklids, gilt  $f_2 = 1$  bzw.  $f_3 = 1$ .

Für die Standard-Messunsicherheit  $s(R_n)$  der Nettozählrate  $R_n$  gilt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{R_n}{t_m} + \frac{b \cdot \overline{R_0}(E_\gamma)}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2L}\right)} \quad (4)$$

Dabei bedeuten:

- $s(R_n)$  : Standard-Messunsicherheit der Nettozählrate in  $s^{-1}$   
 $R_n$  : Nettozählrate in  $s^{-1}$   
 $b$  : Fußbreite der Gammalinie in Anzahl der Kanäle  
 $\overline{R_0}(E_\gamma)$  : mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal in  $s^{-1}$   
 $E_\gamma$  : Energie der Gammalinie  
 $L$  : Anzahl der Kanäle für die Untergrundermittlung

Für die Standard-Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration  $s(c_r)$  gilt:

$$s(c_r) = s(R_n) \cdot \frac{c_r}{R_n} = s(R_n) \cdot \frac{1}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_0 \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \quad (5)$$

### 3.3.4 Rechenbeispiel

Zur Berechnung der Konzentration der gesamten gasförmig vorliegenden I-131-Aktivität werden folgende Zahlenwerte einer über einen Zeitraum von 14 Tagen gesammelten Probe eingesetzt:

$$\begin{aligned} N_n &= 1,200 \\ R_n &= 2,08 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} \\ \varepsilon_{I-131} &= 0,02987 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \end{aligned}$$



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

**Blatt: 3.1.5**

Seite: 5 von 7

Stand: Januar 2012

$$\begin{aligned} p_\gamma(364 \text{ keV}) &= 0,817 \\ b &= 10 \\ L &= 5 \\ E_\gamma &= 364,5 \text{ keV} \\ \bar{R}_0(E_\gamma) &= 0,022 \text{ s}^{-1} \\ t_m &= 57.600 \text{ s} \\ V &= 840 \text{ m}^3 (2,5 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}) \\ t_A &= 604.808 \text{ s} \\ \lambda_{I-131} &= 1,00 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1} \\ f_0(364 \text{ keV}) &= 0,87 \\ f_1 &= 1 \end{aligned}$$

$$\text{mit } f_2 = e^{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 604808} = 1,83$$

$$\text{und } f_3 = \frac{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 57600}{1 - e^{-1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 57600}} = 1,03$$

erhält man daher für die Aktivitätskonzentration von I-131:

$$c_{I-131} = \frac{1200}{0,02987 \cdot 0,816 \cdot 57600 \cdot 840} \cdot 0,87 \cdot 1 \cdot 1,83 \cdot 1,03 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,67 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Die Standard-Messunsicherheit der Nettozählrate beträgt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{2,08 \cdot 10^{-2}}{57600} + \frac{10 \cdot 0,022}{57600}} \cdot 2 \text{ s}^{-1} = 2,83 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

Damit erhält man für die Standard-Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration von I-131:

$$s(c_{I-131}) = 2,83 \cdot 10^{-3} \cdot \frac{1,67 \cdot 10^{-3}}{2,08 \cdot 10^{-2}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 2,27 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Als Ergebnis resultiert für die mittlere Aktivitätskonzentration von I-131:

$$c_{I-131} = (1,67 \pm 0,23) 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

### 3.4 Betrachtung der Messunsicherheit und der Nachweisgrenze

#### 3.4.1 Kombinierte Standard-Messunsicherheit

Die kombinierte Standard-Messunsicherheit setzt sich im Wesentlichen aus den Unsicherheitsbeiträgen der Probenentnahme (Filterwirkungsgrad, Adsorptionsverluste durch unterschiedliche Luftfeuchte, Bestimmung des Luftdurchsatzes), der Probenaufbereitung (Durchmischung der Aktivkohle), der Detektorkalibrierung und der statistischen Messunsicherheit zusammen. Ohne den statistischen Beitrag beträgt sie etwa 10 %. Die Höhe der statistischen Messunsicherheit hängt von der Höhe der Aktivität und dem Untergrund ab. Wegen der geforderten Vertrauensgrenze übersteigt die statistische Messunsicherheit in der Nähe der Nachweisgrenze die übrigen Unsicherheitsbeiträge.



### 3.4.2 Nachweisgrenze

Für die Nachweisgrenze  $G_N$  der Aktivitätskonzentration gilt bei gammaspektrometrischen Aktivitätsmessungen (Voraussetzung sind nicht zu kleine Nulleffektimpulszählraten und  $t_0 = t_m$ ):

$$G_N = \frac{c_r}{R_n} \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot b \cdot \overline{R_0}(E_\gamma)}{t_m}} \quad (6)$$

Hierbei bedeuten:

- $G_N$  : Nachweisgrenze in  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
- $k_{1-\alpha}$  : Quantil der Normalverteilung
- $k_{1-\beta}$  : Quantil der Normalverteilung

Mit  $k_{1-\alpha} = 3$  und  $k_{1-\beta} = 1,645$  sowie den im Abschnitt 3.3.4 angegebenen Zahlenwerten erhält man für die Nachweisgrenze von I-131:

$$G_N = \frac{1,67 \cdot 10^{-3}}{2,08 \cdot 10^{-2}} \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 10 \cdot 0,022}{57600}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,03 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Für die Nachweisgrenze resultiert somit ein Wert von  $1,03 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  nach 16 h Messzeit. Damit wird die geforderte Nachweisgrenze von  $5 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  gemäß den Vorgaben der REI erreicht.

## 4 Beurteilung des Verfahrens

Das Verfahren erlaubt neben der Bestimmung von gasförmigem I-131 die gleichzeitige Erfassung aller anderen gasförmigen, gammastrahlenden radioaktiven Nuklide des Iods. Die Zuverlässigkeit des Verfahrens ist durch die regelmäßige Durchführung von Maßnahmen zur Qualitätssicherung zu sichern. Dazu zählt die regelmäßige Überprüfung des Untergrunds und der Kalibrierung.

### 4.1 Zeitbedarf

Der Zeitbedarf für eine Messung von I-131 gemäß dem Messprogramm zur Umgebungsüberwachung einer kerntechnischen Anlage im bestimmungsgemäßen Betrieb lässt sich wie folgt aufschlüsseln:

- Probenaufbereitung: 15 min
- Sammelzeitraum: 14 d
- Messzeit: >1 h

Im Routinemessprogramm gemäß der AVV-IMIS resultiert analog:

- Probenaufbereitung: 15 min
- Sammelzeitraum: 7 d
- Messzeit: >4 h

### 4.2 Ausstattung am Beispiel des Deutschen Wetterdienstes (DWD)

- Iodsammelsystem:
  - Pumpe mit Vorwärmung der angesaugten Luft mit einem Volumenstrom von 1 bis  $3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ , Iodsammler bestehend aus Vakuumpumpe, Durchflussmesser, Vorwärmung des Luftstroms, zylindrische Edelstahlpatrone mit  $V = 170 \text{ mL}$  zur Aufnahme des Iodadsorbers, mit Stützgitter für einen Schwebstoff-Vorfilter



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

**Blatt: 3.1.5**

Seite: 7 von 7

Stand: Januar 2012

- Verbrauchsmaterial:

Aktivkohle

KI-impregnierte Aktivkohle, gepresstes Granulat mit Durchmesser 3 mm und Länge 4 bis 10 mm

Füllvolumen: 167 mL, Schüttdichte im Absorbergefäß: 0,51 g/cm<sup>3</sup>

Abscheidegrad für I<sub>2</sub> und CH<sub>3</sub>I:

Ø 99,9 % bei einer Temperatur von 45 ° und einer relativen Feuchte von 77 %

Ø 90 % bei einer Temperatur von 50 ° und einer relativen Feuchte bis 100 %

Schwebstofffilter:

Bindemittelfreies Glasfaserfilter, 47 mm, Abscheidegrad für I<sub>2</sub> < 1 %, CH<sub>3</sub>I < 1 % bei Raumtemperatur

Flüssiger Stickstoff zur Kühlung des Germaniumdetektors oder elektrische Kühlung

- Kalibrierpräparat

- Gammaskopie-Messplatz

## **5 Dokumentation**

### 5.1 Berichterstattung

Gemäß Vorgabe der REI oder der AVV-IMIS:

Probenentnahmeanfang, Probenentnahmeende, Probenentnahmeort, Messwerte für das Radionuklid, Messunsicherheit, erreichte Nachweisgrenze.

### 5.2 Sonstige festzuhaltende Daten

Angaben über die Messzeit und über den Volumenstrom.

### 5.3 Aufbewahrungszeiten

Das gemessene Adsorbiermaterial ist in dicht schließenden Gefäßen über zwei Monate aufzubewahren. Die Berichte sind über 30 Jahre zu archivieren.

## **6 Literatur**

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI), GMBL Nr. 14-17 vom 23.03.2006, S. 254 ff
- [2] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV- IMIS), Bundesanzeiger 2006, Nummer 244a, 13. Dezember 2006
- [3] Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung, ISSN 1865-8725, online verfügbar unter [http://www.bmu.de/strahlenschutz/ueberwachung\\_der\\_umweltradioaktivitaet/messanleitungen/doc/42042.php](http://www.bmu.de/strahlenschutz/ueberwachung_der_umweltradioaktivitaet/messanleitungen/doc/42042.php)
- [4] Probenentnahme von luftgetragenen radioaktiven Stoffen aus Kanälen und Kaminen kerntechnischer Anlagen (ISO 2889:2010), DIN ISO 2889, Juli 2012

---

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