



Überwachung der Radioaktivität von Boden und Bewuchs

Bearbeiter: R. Otto, Landesmessstelle LUFA - ITL-GmbH, Kiel
H. Völkle, Fribourg, ehem. Bundesamt für Gesundheit, Fribourg/Schweiz
H. Wershofen, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Inhaltsverzeichnis

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
2.1	¹³¹ Iod-Ablagerung auf Gras.....	2
2.2	¹³⁷ Cs-Ablagerung auf Blattgemüse.....	2
3	Messverfahren.....	2
3.1	Probenentnahme (siehe auch Loses Blatt 3.1.7.1).....	2
3.2	Probenvorbereitung (siehe auch Loses Blatt 3.1.7.1).....	3
3.3	Messung einschließlich Kalibrierung.....	4
3.4	Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze.....	4
4	Bewertung des Verfahrens.....	4
5	Dokumentation.....	4
6	Literatur.....	5

1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Zweck der Maßnahme ist die Überwachung der aus der Luft auf dem Boden abgelagerten und dem Boden durch Bewässerung zugeführten Aktivität. Diese Überwachung dient insbesondere auch dazu, langfristige, durch die Emissionen des Kernkraftwerkes verursachte Veränderungen der Radioaktivität in Boden und Bewuchs festzustellen. Dies geschieht am zweckmäßigsten durch die Untersuchung von Bewuchsproben aus den Hauptbeaufschlagungsgebieten auf gammastrahlende Radionuklide. Die Entnahme von Bodenproben gestattet zudem, das Eindringen der Aktivität in den Boden zu verfolgen. Zur Ermittlung eines Tiefenprofils müssen Bodenproben bis in eine Tiefe von 20 cm oder mehr ausgestochen und die einzelnen Schichten separat gemessen werden. Dies ist dann erforderlich, wenn bei künstlichen Radionukliden die Tiefenverteilung nicht homogen und/oder nicht bekannt ist.

Nebst der Ausmessung im Labor kommt auch die direkte Messung im Freien mittels der In-situ-Gamma-spektrometrie in Frage. Genügend aussagekräftige Analysen lassen sich allerdings nur mit Germanium-Detektoren (im Folgenden „Ge-Detektoren“) durchführen (vgl. auch Blatt 3.4.5.1).

2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze

Messgröße ist die Aktivität pro kg Trockenmasse (TM); für Gras ist zusätzlich auch die Aktivität pro m² Bodenfläche anzugeben. Maßeinheit ist die spezifische Aktivität Bq/kg TM oder die Aktivitätsflächenbelegung (zuweilen auch Deposition genannt) Bq/m².

Für getrocknetes Gras in gemahlener Form kann eine Dichte von 0,3 g/cm³ angenommen werden. Bei einer durchschnittlichen Massen-Flächenbelegung von 0,25 kg TM/m² entspricht der Inhalt einer 1-L-Ringschale in etwa einer Grasfläche von 1 m².

Die zu fordernde Nachweisgrenze (NWG) hängt wesentlich vom betrachteten Radionuklid ab, die durch unterschiedliche physikalische und biochemische Eigenschaften gekennzeichnet sind. Die Ermittlung der bei der Messung tatsächlich erzielten NWG hat nach DIN ISO 11929 [16] zu erfolgen. Die geforderte NWG hingegen ist in der REI [1] für Boden und Bewuchs mit jeweils 0,5 Bq/kg bezogen auf ⁶⁰Co und TM angegeben. An zwei Beispielen wird gezeigt, dass diese Vorgabe für alle Radionuklide erfüllbar ist.



2.1 ¹³¹Iod-Ablagerung auf Gras

Die zu fordernde Nachweisgrenze für Gras kann für das Beispiel ¹³¹I aus der maximal zulässigen effektiven Dosis durch Milchkonsum abgeschätzt werden (Annahme: konstante Iod-Freisetzung und radioaktives Gleichgewicht zwischen Luft, Gras und Milch):

$$\frac{1/3 \cdot 1/10 \cdot D_L}{g_g \cdot Q_M \cdot (C_M / C_V)} = \frac{1/3 \cdot 1/10 \cdot 0,2}{1,1 \cdot 10^{-4} \cdot 330 \cdot 0,2} Bq / kgTM \approx 0,9 Bq / kgTM \quad (1)$$

- 1/3 = Drittelkonzept des AKU
- 1/10 = Annahme: 10 freigesetzte Radionuklide
- D_L = Dosislimite (Deutschland: 0,3 mSv/a; Schweiz: 0,2 mSv/a)
- g_g = Ingestionsfaktor für Iod: 1,1 x 10⁻⁷ Sv/Bq = 1,1 x 10⁻⁴ mSv/Bq [2]
- Q_M = jährlicher Milchkonsum = 330 (L/a) [2]
- C_m/C_v = Transferfaktor Gras - Milch = 0,2 kg TM Gras pro L Milch [2]

2.2 ¹³⁷Cs-Ablagerung auf Blattgemüse

Die zu fordernde Nachweisgrenze kann für das Beispiel ¹³⁷Cs aus der Konzentration im Blattgemüse abgeleitet werden, die zur maximal zulässigen Strahlendosis führt (0,3 mSv/a für Deutschland, bzw. 0,2 mSv/a für die Schweiz).

$$\frac{1/3 \cdot 1/10 \cdot D_L}{e_{ing} \cdot Q_G} \cdot \left(\frac{Q_G}{Q_{tot}} \right) = \frac{1/3 \cdot 1/10 \cdot 0,2}{1,3 \cdot 10^{-5} \cdot 225} \cdot \left(\frac{225}{400} \right) Bq / kgFG = 1,2 Bq / kgFG \quad (2)$$

- 1/3 = Drittelkonzept des AKU
- 1/10 = Annahme: 10 freigesetzte Radionuklide
- D_L = Dosislimite (Deutschland: 0,3 mSv/a; Schweiz: 0,2 mSv/a)
- e_{ing} = Ingestionsdosisfaktor 1,3 x 10⁻⁵ mSv/Bq (gem. Schweizer Strahlenschutzverordnung)
- Q_G = Verzehrtrate für Blattgemüse für Erwachsene 225 kg FG/Jahr (gemäß HSK R-41 [17])
- Q_G/Q_{tot} = Verhältnis Verzehrtrate Gemüse / Verzehrtrate gesamte Nahrung: 225/400 = 0,55 (gemäß HSK R-41 [17])

Bezogen auf Trockenmasse ergibt dies 12 Bq/kg. Wenn man von einer Dichte von 0,3 g TM/cm³ ausgeht, können in einer 1-Liter-Ringschale 0,3 kg TM gemessen werden. Somit ergibt sich unter diesen Umständen eine zu fordernde Nachweisgrenze für ¹³⁷Cs von 4 Bq, was mit einem modernen 30 %-Ge-Detektor mit entsprechend langer Messzeit (z. B. ½ bis 1 Tag) gut erreicht werden kann.

Auf ähnliche Weise lassen sich auch zu fordernde Nachweisgrenzen für andere Isotope oder Bezugsmassen herleiten.

3 Messverfahren

3.1 Probenentnahme (siehe auch Loses Blatt 3.1.7.1)

Ort:

nach Möglichkeit ebene, ungedüngte Naturwiese; bei einer Kaminhöhe von 100 m in ca. 500 bis 1500 m Entfernung vom KKW-Standort in den beiden Hauptwindrichtungen; nicht in unmittelbarer Nähe von Gebäuden, Bäumen und andern Hindernissen und nicht in einer Senke.

Falls in den Hauptbeaufschlagungsgebieten keine Wiesen vorhanden sind, können auch andere Bewuchsproben (vorzugsweise großblättrige Pflanzen) untersucht werden. Diese Messresultate sind allerdings nicht ohne



weiteres mit den Messungen von Grasproben vergleichbar, da bei störfallbedingten Ablagerungen die Aufnahmefläche der Blätter eine Rolle spielt. Ebenso können bei Bodenproben starke Unterschiede auftreten, wenn es sich um bearbeiteten (gedüngten und/oder gepflügten) Boden handelt, oder wenn das Gelände geneigt ist. Da diese Messungen jedoch in erster Linie dazu dienen, langfristige oder stör-/unfallbedingte Einflüsse der Emissionen des KKW auf die Radioaktivität in Boden und Bewuchs festzustellen, ist vor allem eine gute Reproduzierbarkeit wichtig. Es ist daher von Vorteil, die Proben immer auf dieselbe Weise und am selben Ort zu entnehmen und eine Probenentnahme an einem Abhang oder in einer Senke zu vermeiden.

Zeit:

mindestens zweimal jährlich; Grasproben vor dem ersten und vor dem zweiten Schnitt. Es sind die Vorgaben der geltenden Messprogramme zu beachten.

Mit Messband wird eine bestimmte Fläche (z. B. 5 m²; hängt von der Höhe des Grases ab; das gemähte Gras sollte ca. 3 - 4 kg Frischmasse ergeben) abgesteckt und das Gras (ohne Wurzeln und ohne Erde) mit Sense, Sichel oder elektrischer Gartenschere wenige cm über dem Boden abgemäht und in einem Plastiksack gesammelt.

Zur Entnahme von Bodenproben wird am selben Ort mit dem Messband ein Rechteck von 5 x 7,5 m abgesteckt. Die längere Seite des Rechteckes wird in Abschnitte von 2,5 m unterteilt. An den so markierten 8 Punkten wird mit einer 10 cm breiten Stechschaufel je ein Erdziegel von 10 x 10 cm Seitenlänge und ca. 5 bis 10 cm Dicke ausgestochen. Das Gras auf der Oberseite wird entfernt und dann mit einem Messer so viel von der Unterseite des Erdziegels abgeschnitten, dass gerade noch die oberen 5 cm übrig bleiben; es entstehen auf diese Weise 8 Stücke von 10 x 10 cm Seitenlänge und 5 cm Höhe. Wo die Probenentnahme in der hier geschilderten Weise aus räumlichen Gründen nicht möglich ist, können die 8 Probenentnahmestücke anders gewählt werden. Als vereinfachtes Verfahren haben sich auch Zwiebelstecker als geeignet erwiesen (wie sie beim Setzen von Blumenzwiebeln verwendet werden); sie ermöglichen das Ausstechen von zylindrischen Erdkegeln von 5 cm Höhe und ca. 6 bis 8 cm Durchmesser.

Bei ungestörten Verhältnissen (ungepflügter Naturboden) dringt die abgelagerte künstliche Radioaktivität nur langsam in den Boden ein. Die spezifische Aktivität nimmt annähernd exponentiell mit der Tiefe ab.

In der Schweiz war die ¹³⁷Cs-Kontamination infolge des Tschernobyl-Unfalls 1986 im Jahr 1992 in der Regel bis in ca. 10 cm Tiefe eingedrungen, während der Beitrag des Fallouts während der Atombombentests bereits bis in eine Tiefe von ca. 30 cm eingedrungen ist, weshalb die Entnahme der Proben aus den obersten 5 cm der Erdschicht empfohlen wird. Durch das Pflügen wird der Boden bis in eine Tiefe von 40 cm bis 50 cm mehr oder weniger gleichmäßig durchmischt und die Aktivitätsverteilung entsprechend verändert. Demzufolge kann eine Probe unter Umständen nicht mehr als repräsentativ gelten. Die genaue Kenntnis über den Bearbeitungszustand des Bodens ist also von erheblicher Bedeutung. Angaben dazu sollten in Folge dessen unbedingt im Probenentnahmeprotokoll vermerkt werden.

Für die natürlichen radioaktiven Isotope kann dagegen von einer homogenen Verteilung in der Erde ausgegangen werden.

3.2 Probenvorbereitung (siehe auch Loses Blatt 3.1.7.1)

Das Gras wird auf einer großen Plastikfolie (oder in entsprechend großen Schalen) im Trockenofen bei ca. 40 °C bis 50 °C (eventuell auch an der Sonne) getrocknet und mit einer Messermühle gemahlen. Für den Nachweis von frisch abgelagertem Iod auf dem Gras ist nur ein Trocknungsverfahren bei einer Temperatur am unteren Ende des genannten Temperaturbereiches anwendbar, da sich sonst das Iod wieder teilweise verflüchtigen kann. In diesem Fall soll die Grasprobe bereits bei der Probenentnahme in ein dicht schließendes Messgefäß abgefüllt werden, in dem es bis zur Messung des γ -Spektrums bleibt. Die Bodenprobe wird im Trockenofen in Porzellanschalen bei ca. 60 bis 80 °C getrocknet, zerstoßen, von Steinen und Wurzeln befreit und durch ein Sieb von ca. 2 mm Maschenweite passiert.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU

**EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT**

Blatt: 3.1.7

Seite: 4 von 5

Stand: Januar 2016

3.3 Messung einschließlich Kalibrierung

Aus dem gut durchmischten Probenmaterial wird je eine Boden- und eine Grasprobe von 1 L Volumen in einer Ringschale oder ½ Liter in einer ½-Liter-Dose mit einem Ge-Detektor mit 8 bis 10 cm Bleiabschirmung während 12 (eventuell auch 24) Stunden gemessen (Messbereich ca. 100 bis ca. 1700 keV; mindestens 2000 Kanäle).

Die Kalibrierung erfolgt mit Kalibrierlösung (z. B. ^{152}Eu ; bei diesem Nuklid ist allerdings eine Korrektur bezüglich Summationspeaks erforderlich) in derselben Messgeometrie. Bei der Auswertung ist der Dichteunterschied von Gras oder Boden gegenüber der Kalibrierlösung (Wasser) zu berücksichtigen ($\rho\text{-Boden}_{\text{trocken}} = \text{ca. } 1,3 \text{ g/cm}^3$, $\rho\text{-Gras}_{\text{trocken}} = \text{ca. } 0,3 \text{ g/cm}^3$), insbesondere die dadurch geänderte Selbstabsorption in der Probe. Bei kurzlebigen Isotopen ist die Aktivität auf das Probenentnahmedatum umzurechnen. Da in den Bodenproben nebst ^{40}K auch praktisch alle Isotope der natürlichen Radium- und Thorium-Zerfallsreihen vorhanden sind, ist jeweils ein Nulleffekt mit derselben Messdauer zu messen, damit die Nettozählraten dieser Isotope bestimmt werden können.

3.4 Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze

Die Gesamtunsicherheit wird nach DIN ISO 11929 [16] ermittelt. Sie wird wesentlich durch die zählstatistische Messunsicherheit bestimmt. Diese sowie die Nachweisgrenze hängen stark vom Nuklid, der vorliegenden Aktivität, dem verwendeten Detektor, der Messzeit und auch von der Abschirmung des Detektors ab.

Für die beiden unter Pkt. 2 aufgeführten Beispiele ergeben sich für die genannten Messbedingungen folgende Nachweisgrenzen: Für moderne Ge-Detektoren (z. B. 30 % rel. Ausbeute bezüglich eines $3 \times 3''\text{-NaI}$ -Kristalls) kann bei einer Messdauer von 60'000 sec in einem 1-Liter-Marinellibecher (0,3 kg Gras TM) eine NWG für ^{131}I von 0,5 Bq erreicht werden mit den statistischen Faktoren $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,6$. Für ^{137}Cs ist die erreichbare NWG unter denselben Bedingungen um etwa einen Faktor 2 bis 4 höher. Damit sind für die beiden Beispiele die unter Pkt. 2 aufgestellten Forderungen bezüglich der NWG erfüllt.

Bei der systematischen und bei der zufallsbedingten Messunsicherheit sind auch die Beiträge der Probenentnahme (z. B. bei der Bestimmung der Probenfläche –und der Probenmenge) sowie den Verlusten bei der Probenaufbereitung zu berücksichtigen. Schließlich gibt auch die Unsicherheit der Detektor-Kalibrierung einen Beitrag. Näheres ist LB 2.4 zu entnehmen.

4 Bewertung des Verfahrens

Das Verfahren gestattet, die aus der Luft auf Boden bzw. Bewuchs abgelagerte oder dem Boden durch Bewässerung zugeführte Aktivität mit genügender Empfindlichkeit bei angemessenem Aufwand für Probenaufbereitung und -messung zu bestimmen. Die Proben sollen als Beleg und für eventuelle Nachuntersuchungen (bei Rückfragen oder Unplausibilitäten) aufbewahrt werden, jedoch mindestens bis zur Freigabe des Berichtes durch den Berichtsempfänger.

5 Dokumentation

Angaben über die Probenentnahme (Probennehmer, Datum, Ort [Koordinaten], beprobte Fläche, Probenmenge in Frischmasse, eindeutige Kennzeichnung, Wetterbedingungen, Besonderheiten der beprobten Fläche) sind unmittelbar bei der Probenentnahme im Probenentnahmeprotokoll zu dokumentieren.

Angaben zur Probenverarbeitung und -messung (Trocknungstemperatur, erhaltene Trockenmasse, Datum der Messung, Messdauer, verwendetes Messsystem, Detektorkalibrierung) sind in den Laborbüchern und/oder Labordatensystemen zu dokumentieren.



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

Blatt: 3.1.7

Seite: 5 von 5

Stand: Januar 2016

6 Literatur

- [1] Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen
Gemeinsames Ministerialblatt vom 23. März 2006 Nr. 14 - 17, S. 254ff
- [2] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zu § 47 Strahlenschutzverordnung: Ermittlung der Strahlenexposition durch die Ableitung radioaktiver Stoffe aus Anlagen oder Einrichtungen vom 28. August 2012, BAnz AT 05.09.2012 B1
- [3] Hoffmann, F.O., IRS-W6, 1972: "Environmental variables involved with the Estimation of the Amount of I-131 in Milk and the Subsequent Dose to the Thyroid".
- [4] Hoffmann, F.O.: "A Reassessment of the Parameters used to predict the Environmental Transport of I-131 from Air to Milk"; Health Physics 32 (1977), pp. 437-441.
- [5] Ludwig, F.: "Radioaktive Isotopen in Futter und Nahrungsmitteln", Thiemig-Taschenbücher, Band 7, 1962.
- [6] HASL Procedures Manual (Herausgeber John H. Harley, HASL-300, 1972) s. [15].
- [7] NCRP Report No. 50: "Environmental Radiation Measurements", 1976.
- [8] Kiefer, H., Maushart, R.: "Strahlenschutzmeßtechnik", Verlag G. Braun, Karlsruhe, 1964.
- [9] IAEA-Proceedings Series, STI/PUB/55, 1972: "Radioisotopes in Soil Plant; Nutrition Studies".
- [10] NCRP Report No. 45: "Natural Background Radiation in the United States", 1975.
- [11] IAEA-Proceedings Series, STI/PUB/226, 1969: "Environmental Contamination by Radioactive Materials".
- [12] IAEA Safety Series No. 41, 1975: "Objectives and Design of Environmental Monitoring Programmes for Radioactive Contaminants".
- [13] Commission des Communautés Européennes: EUR 5176f, 1975: "Organisation et mise en œuvre de la surveillance et du contrôle de la radioactivité à proximité des installations nucléaires".
- [14] Jahresberichte ab 1957 der Eidg. Kommission zur Überwachung der Radioaktivität, Schweiz. bzw. des Bundesamtes für Gesundheit zur Umweltradioaktivität (ab 1989 BAG; Bundesamt für Gesundheit, CH-3003 Bern) <http://www.bag.admin.ch/themen/strahlung/12128/12242/index.html?lang=de>
- [15] Environmental Measurement Laboratory (EML) Procedures Manual, US Dep. of Energy, New York, Ausgabe Februar 1997. <http://www.ornl.gov/ptp/PTP%20Library/library/DOE/eml/hasl300/HASL300TOC.htm>
- [16] 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
- [17] G14 Berechnung der Strahlenexposition in der Umgebung aufgrund von Emissionen radioaktiver Stoffe aus Kernanlagen – ENSI-G14/d: http://static.ensi.ch/1313043007/g14_d.pdf

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