



Einfluß von "Heißen Teilchen" auf Messverfahren zur Überwachung der Umweltradioaktivität

Bearbeiter: D. Lux, Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Strahlenhygiene, Oberschleißheim
M. Iwatschenko-Borho, Eberline Instruments GmbH, Erlangen
Th. Steinkopff, Deutscher Wetterdienst, Offenbach
H. Wershofen, Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig
R. Winkler, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Oberschleißheim

*) Eine Überprüfung durch damit beauftragte AKU – Mitglieder ergab, dass im Februar 2009 für dieses Lose Blatt noch kein Aktualisierungsbedarf bestand.

Inhaltsverzeichnis

1	Zielsetzung	1
2	Definition	2
3	Szenarien	3
3.1	Oberirdische Kernwaffenversuche.....	3
3.2	Reaktorunfälle.....	3
3.3	Satelliten- und Flugzeugabstürze	4
4	Auswirkungen von HP auf Messverfahren.....	5
4.1	Luft.....	5
4.1.1	Kontinuierlich messende Systeme	5
4.1.2	Diskontinuierlich messende Systeme	5
4.2	Niederschlag	6
4.3	In-situ-Gammaspektrometrie	6
5	Suchstrategien, Detektion und Analyse von HP.....	6
5.1	Volumenproben	7
5.2	Autoradiographie	7
5.3	Alpha-/Betamessung.....	7
5.4	Dosisleistungsmessung	8
5.5	Gammaspektrometrie.....	8
5.6	Alphaspektrometrie.....	8
5.7	SEM und Röntgenfluoreszenzanalyse	8
6	Zusammenfassung.....	8
7	Literatur	10

1 Zielsetzung

"Heiße Teilchen", im englischen Sprachgebrauch "hot particles" (HP) sind atmosphärisch getragene, schwerlösliche Teilchen von hoher spezifischer Radioaktivität. Sie wurden bereits seit der Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Umwelt in den 50er Jahren beobachtet und untersucht. Aber obwohl bereits im März 1959 ein Kolloquium zum Erfahrungsaustausch über dieses Thema stattfand [Bad Schwalbach, 1959], waren beim Reaktorunfall von Tschernobyl 1986 nur wenige Institutionen auf das Auftreten von heißen Teilchen vorbereitet, um diesbezügliche, systematische Messungen durchzuführen. Aber auch noch Jahre nach diesem Reaktorunfall wurden Daten veröffentlicht, die von heißen Teilchen deutlich beeinflusst waren und fehlinterpretiert wurden. Zur Struktur, Ausbreitung und Mikroanalytik wurden deshalb auch Symposien veranstaltet. Die letzten Tagungen, die sich speziell mit den HP von Tschernobyl befaßten, waren am 28./29.10.1987 in Theuern [v.Philipsborn, 1987] und vom 12. - 16.10.1992 in Znaim, CSFR [CEC, IUR, SCSR, 1992].

Ziel dieser Arbeit ist es deshalb, dem Praktiker im Messlabor und den Wissenschaftlern bei der Bewertung von Messdaten eine Liste von Verdachtsmomenten für das Erkennen von heißen Teilchen in Proben und



praktische Tips für die gezielte Suche und Messung von HP an die Hand zu geben. Es sollen weiterhin Anregungen vermittelt werden, wie vorhandene Mess- und Probenahmesysteme für diesen Zweck angepaßt und eingesetzt werden können.

Primäre Aufgabe des Strahlenschutzes ist der Schutz des Menschen, in diesem speziellen Fall der Schutz vor Inhalation bzw. Ingestion von heißen Teilchen. Die Messprogramme der Umweltüberwachung können bei entsprechender Auslegung im Fall der Freisetzung von radioaktiven Stoffen wertvolle Hinweise über Häufigkeit und Aktivität von heißen Teilchen liefern. Eine Bewertung der Risiken, die Abschätzung von kritischen Größen und Aktivitäten heißer Teilchen sowie die Empfehlung entsprechender Schutzmaßnahmen sollten interdisziplinär mit den Arbeitskreisen Dosimetrie (AKD) und Inkorporation (AKI) erfolgen.

2 Definition

Wertet man die Literatur über heiße Teilchen aus, so stellt man fest, daß es für den Begriff "heiße Teilchen" oder Synonyme keine allgemein gültige Definition gibt. Einige verwenden die spezifische Aktivität des Partikels im Verhältnis zur spezifischen Aktivität des Reaktorcores beim Unfall als Kriterium. Von anderen Autoren werden z.T. sehr unterschiedliche numerische Begrenzungen der Aktivität oder Größe der Partikel angegeben. So werden beispielsweise Mindestaktivitäten von 0,3 bis 100 Bq, spezifische Aktivitäten $\geq 3 \text{ Bq}/\mu\text{m}^3$ und aerodynamische Durchmesser $< 50 \mu\text{m}$ verwendet. Diese Werte sind meist situationspezifisch oder aus messtechnischen Gründen gewählt worden und haben keine allgemeine Gültigkeit. Unschärfere Definitionen wie z.B. "mikroskopische Teilchen hoher Aktivität, die mit verfügbarer Messtechnik lokalisiert werden können," sind wiederum sehr weit gefaßt und vom Stand der Technik abhängig. Da die Problemstellung nicht trivial ist, wird eine Definition angestrebt, die den Anforderungen der Umweltüberwachung genügt und heiße Teilchen im Zusammenhang mit den Messverfahren bzw. der Matrix sieht. So verfälscht z.B. ein Partikel mit 100 Bq die Messung einer Luftfilterprobe von üblicherweise einigen Bq Gesamtaktivität, während das gleiche Partikel in einer Klärschlammprobe mit einer spezifischen Aktivität von einigen kBq/kg irrelevant für das Messergebnis ist. Es wird deshalb folgende Definition vorgeschlagen:

Ein "heißes Teilchen" oder "hot particle" im Sinne der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt ist ein in einer zu untersuchenden Probe enthaltenes einzelnes Teilchen, dessen Aktivität so groß ist, daß sie die Angabe einer gleichzeitig "wahren" und "repräsentativen" spezifischen Aktivität der Probe vereitelt.

Grenzfälle können jedoch auch hierbei auftreten, so wurden z.B. an einigen Stellen in Finnland und Polen nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl einige tausend Partikel pro m^2 beobachtet, so daß bei einer ausreichend großen Probe die Aktivität wieder als homogen verteilt betrachtet werden konnte.

Eine Vielfalt von Begriffen wird auch für die zwei häufigsten Typen von HP benutzt. So werden Partikel, deren Zusammensetzung etwa der des Reaktorkerns entspricht, als "fuel-fragment", "standard" oder "B-type" bezeichnet, während Partikel mit überwiegender Aktivität eines Elements, meist Ruthenium, als "mono-elemental", "ruthenial", "exotic" oder "A-type" definiert werden. In diesem Text werden zur Vereinfachung die selbsterklärenden Begriffe wie "fuel-type" und "mono-elemental-type" benutzt.



3 Szenarien

3.1 Oberirdische Kernwaffenversuche

Über das Auftreten von HP wurde erstmals in den 50er Jahren als Folge von oberflächennahen Atomwaffenexplosionen in den Versuchsgeländen der USA berichtet. Diese Teilchen bildeten sich durch Kondensationsprozesse im abkühlenden Feuerball bei der Detonation. Neben Spalt- und Aktivierungsprodukten waren dabei auch verdampftes Metall der Stahltürme und geschmolzene Bodenpartikel beteiligt. Aufgrund der atmosphärischen Ausbreitungsbedingungen bestand die Fraktion der HP, die Anfang der 60er Jahre in Europa deponiert wurde, überwiegend aus Teilchen von 0,1 bis 10 μm Durchmesser und einer maximalen Aktivität von 100 Bq. 1961 wurden in Deutschland ca. 50 HP/1000 m^3 Luft (max. 250 HP/1000 m^3) mit einem mittleren Durchmesser von 4 μm gemessen. Die gammaspektrometrisch identifizierten Nuklide waren im wesentlichen ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{131}I , ^{147}Nd , ^{140}Ba , ^{103}Ru , ^{95}Zr und ^{95}Nb [Rajewsky, B. et.al., 1962].

3.2 Reaktorunfälle

Bereits vor dem Reaktorunfall von Tschernobyl kam es zu Freisetzungen von HP aus Kernreaktoren. So wurden von 1954 bis 1957 Brennstoff-Partikel aus defekten Brennelementen über die Kamine von zwei Reaktoren in Windscale (jetzt Sellafield) an die Umgebung abgegeben. Bei einem Brand im Kern des Reaktors 1 von Windscale im Oktober 1957 wurden im Umkreis von 4 km HP mit Aktivitäten im Bereich von 40 bis 4800 Bq/HP abgelagert.

Während bei dem Unfall von Three Miles Island keine Freisetzung von HP registriert wurde, kam es bei dem Brand des graphitmoderierten Reaktorblocks 4 von Tschernobyl zur bisher folgenschwersten Kontamination mit HP. Nach Schätzungen [Sandalls et al., 1993] wurden ca. 6000 bis 8000 kg heiße Teilchen emittiert. In der 30-km-Zone lagen ca. 70% der gesamten Radioaktivität in Form von HP vor. Hier wurden 1986 bis 50000 HP/ m^2 gemessen; auch in einigen Teilen von Nordost-Polen und Finnland wurden über 1000 HP/ m^2 gefunden. Der Größenbereich lag bei Durchmessern von ca. 0,5 bis 150 μm , wobei der Anteil der größeren Teilchen mit der Entfernung deutlich abnimmt. Aufgrund der Beobachtungen geht man davon aus, daß die HP im Mikrometer- und Submikrometerbereich, die den größten Anteil an Häufigkeit und Aktivität ausmachen, eine Lebensdauer von ein bis zwei Jahren im Boden aufweisen und dann verwittern. Dies bewirkt u.a. eine Zunahme des Nuklid-Transfers Boden-Pflanze. 1988 durchgeführte Messungen zeigten eine Abnahme auf 50 bis 60 HP/ m^2 in 50 km Entfernung und auf ein bis zwei HP/ m^2 in 90 km Entfernung (Kiew). Diese Abnahme ist neben der Verwitterung und möglicher Verfrachtung (Erosion) auch auf den radioaktiven Zerfall zurückzuführen, der zu einer Einzelaktivität der kleinen HP unter der Nachweisgrenze der Messverfahren führt.

Auffällig ist auch die Verteilung der HP-Typen. Während in der Nahzone 97% der Teilchen zum "fuel-type" gehörten, dominierten in der Bundesrepublik HP vom "monoelemental-type" im Bereich von 0,1 bis 10 μm Durchmesser. In Warschau wurden etwa gleiche Mengen beider Typen identifiziert. Die in Polen gefundenen HP vom "fuel-type" wiesen im Durchschnitt eine ^{103}Ru -Aktivität von 10 bis 100 Bq/HP bei einer Gesamtaktivität von ca. 1 kBq auf, während der "monoelemental-type" bei 4,5 μm Durchmesser 1 bis 10 kBq ^{103}Ru aufwies, der Maximalwert lag bei 10^5 Bq.

Die Alpha-Aktivität der HP, auch beim "fuel-type" ist relativ gering und betrug 1986 nach Schätzungen der IAEA weniger als 1% [IAEA, Kiev, 1991].



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

Blatt: 3.4.8
 Seite: 4 von 10
 Stand: 23.10.1996*)

3.3 Satelliten- und Flugzeugabstürze

In den Jahren 1961-1990 wurden von der UdSSR 35 Satelliten mit Kernreaktoren und von den USA 10 Satelliten mit Isotopenbatterien in Erdumlaufbahnen gebracht. Wie der Wiedereintritt in die Atmosphäre von SNAP-9A (1964) mit 7×10^{14} Bq Pu-238 und von Cosmos 954 (1978), Cosmos 1402 (1983) und Cosmos 1900 (1988) zeigt, stellen diese militärischen Satelliten eine potentielle Quelle für eine Deposition von HP dar. Beim Absturz von Cosmos 954 über Kanada wurde eine Fläche von 120 000 km² mit einem Viertel der Gesamtaktivität des Reaktors, die $4,4 \cdot 10^{15}$ Bq betrug, kontaminiert. Die aufgefundenen HP hatten einen Durchmesser von 0,1 - 1 mm und wiesen eine durchschnittliche Aktivität von 10^8 Bq/HP auf.

Auf wenige km² beschränkte sich die Kontamination mit HP und größeren Bruchstücken von je 4 Atomwaffen beim Absturz von B-52 Bombern über Palomares/ Spanien (1966) und Thule/Grönland (1968). Mit einem ähnlichen Szenarium ist zu rechnen, wenn durch einen Unfall oder durch terroristische Aktivitäten Kernbrennstoffe oder andere radioaktive Stoffe durch konventionelle Sprengstoffe dispergiert werden. Hierbei ist unabhängig von der radiologischen Bedeutung mit schwerwiegenden psychologischen Auswirkungen zu rechnen, wenn sensitive Bereiche wie Städte oder Trinkwasserspeicher betroffen sind. Erprobte Strategien und Techniken zur Lokalisierung von HP und entsprechende Dekontaminationsverfahren sind daher von größter Bedeutung.

Tabelle 1: Freisetzungen von Heißen Teilchen

Ereignis	Durchmesser	Häufigkeit	Aktivität	Bemerkung
Fall-out (1961)	0,1-10 µm	50-250 HP/ 1000m ³ Luft	max. 100 Bq	
Cosmos 954 (1978)	0,1-1 mm	~ 10^8 HP 10^2 - 10^3 HP/km ²	~ 10^8 Bq max. 5×10^9 Bq	ca.20kg ²³⁵ U $4,4 \times 10^{15}$ Bq
Windscale (1957)	10-100 µm	---	40-4800 Bq	4 km Umkreis
Tschernobyl fuel-type	1-150 µm	10^4 - 10^5 HP/m ²	10^2 - 10^3 Bq Alpha < 0,5%	Nahbereich (10-90 km)
Tschernobyl Ruthenium-typ	4,5 µm	10^2 - 10^3 HP/m ²	10^3 - 10^4 Bq 90% ^{103/106} Ru	Polen, Schweden



4 Auswirkungen von HP auf Messverfahren

Die in der Analytik von Radionukliden in Umweltproben eingesetzten Probeentnahme- bzw. Messverfahren lassen zunächst keine Unterscheidung zwischen den homogen in der Probe verteilten und den an HP gebundenen Anteilen der gemessenen Radioaktivität zu. Die Angabe repräsentativer mittlerer spezifischer Aktivitäten in der Probe ist bei Anwesenheit von HP nicht mehr ohne weiteres möglich. Selbst wenn die Anzahl der HP in der Analysenprobe so groß ist, daß sie einen dominierenden Anteil der Probenaktivität darstellt, kann die Verteilung der einzelnen Radionuklide auf die HP noch immer inhomogen sein. Eine Unterscheidung und Bestimmung der Radionuklidverteilung ist jedoch zur realistischen Dosisberechnung (Inhalation, Ingestion, Submersion) erforderlich.

Im Routinemessbetrieb zur Überwachung der Umweltradioaktivität treten nur vereinzelte HP aus früheren, meist bekannten, Freisetzungen auf. Bei akuten unfall- oder störfallbedingten Freisetzungen muß aber mit aktuell eingetragenen HP gerechnet werden, deren Anzahl, Korngrößenverteilung, Radionuklidzusammensetzung und die nuklidspezifische Aktivitäten zum Zeitpunkt der Auswertung der Messung noch unbekannt sind.

Nachstehend werden Auffälligkeiten bei Messergebnissen genannt, die einen Verdacht auf Anwesenheit von HP in der Probe begründen.

4.1 Luft

4.1.1 Kontinuierlich messende Systeme

Bei kontinuierlich messenden Systemen (z.B. SchrittfILTERgeräten) kann bei hinreichend kurzen Sammelintervallen (Minuten bis Stunden) und simultaner, zeitaufgelöster Messung das Auftreten von HP erkannt werden, wenn die in einem bestimmten Intervall gemessene Aktivität einen signifikanten Anstieg aufweist. Witterungseinflüsse (z.B. Schneeflocken, kurzfristige Staubbelastrungen der Luft durch Bodenbearbeitung oder Kohlekraftwerke, Pollenflug) können zwar auch zu erhöhten Aktivitäten führen, lassen sich aber durch entsprechende Beobachtungen erklären. Selbstverständlich müssen technische oder elektronische Störungen der Meßsapparatur zuverlässig ausgeschlossen werden.

Nuklidspezifisch messende Systeme ermöglichen direkt eine Unterscheidung zwischen künstlicher und natürlicher Radioaktivität, so daß die o.g. Einflüsse leichter auszuschließen sind. Dies gilt auch für Messsysteme, die auf andere Art zwischen künstlicher und natürlicher Aktivität unterscheiden (Alpha/Beta-Verhältnis, ABPD-, AERD-Verfahren).

Die bisherigen Überlegungen sind auf Messungen unter Unfall- oder Störfallbedingungen wegen der dann erhöhten und zeitlich variierenden Aktivitäten künstlicher Radionuklide nur bedingt übertragbar. Allerdings gestatten es nuklidspezifisch messende Systeme charakteristische Nuklidverhältnisse über mehrere Sammelintervalle zu verfolgen. Signifikante Änderungen von Radionuklidverhältnissen können Hinweise auf die Anwesenheit von HP geben.

4.1.2 Diskontinuierlich messende Systeme

Bei Sammelintervallen von Tagen bis Wochen (z.B. Hochvolumen Staubsammlung zur Spurenanalyse) und der sich anschließenden erforderlichen Probenpräparation (Pressen, Veraschen) kann keine Aussage mehr getroffen werden, ob eine beobachtete erhöhte Aktivität der Probe einem Einzelereignis (HP) zuzuordnen ist oder allmählich aufgebaut wurde. Bei Verdacht auf das Vorhandensein von HP muß in solchen Fällen vor der Probenpräparation eine Untersuchung des Filters mit ortsauflösenden Verfahren stattfinden, wie sie im Abschnitt 5 beschrieben sind.



4.2 Niederschlag

HP gelangen entweder durch Trockendeposition auf die Auffangfläche oder werden mit dem Niederschlag deponiert. Bei einfachen Probeentnahmeverfahren wird nicht zwischen Trockendeposition und Nassdeposition unterschieden. Der aus trockener Deposition stammende Probenanteil ist bei kurzen Probenahmeintervallen und regelmäßigem Säubern der Auffangfläche verhältnismäßig gering.

Im Routinemessbetrieb kann ein zufällig deponiertes HP, das in den Eindampfrückstand der Niederschlagsprobe gelangt, den Messwert für die langlebige Betaaktivität signifikant erhöhen. Weitere Indizien für die Anwesenheit von HP können aus einer gammaspektrometrischen Messung des Rückstandes gewonnen werden.

Liegt eine erhöhte Radioaktivität der Luft vor und wird eine entsprechende Kontamination des Niederschlags erwartet, so wird in der Regel eine gammaspektrometrische Direktmessung der Niederschlagsprobe in einem Kunststoffgefäß vorgenommen. Wasserlösliche Anteile der in vorhandenen HP gebundenen Radioaktivität werden als lösliche Anteile der Niederschlagsprobe erfasst, so dass deren Aktivität überschätzt wird. Suspendierte unlösliche HP beeinflussen je nach ihrer geometrischen Verteilung in der Probe das Messergebnis; insbesondere durch Sedimentation der HP während der Messung erfolgt eine Verfälschung. Eine Aussage über die homogen in der Niederschlagsprobe enthaltene lösliche Aktivitätskonzentration ist dann nicht mehr zulässig. Andererseits kann ggf. durch Wiederholungsmessungen nach angemessenen Standzeiten, Filtration oder durch Änderung der Messgeometrie auf vorhandene HP geschlossen werden.

4.3 In-situ-Gammaspektrometrie

Während einer routinemäßig durchgeführten Messung ist eine Unterscheidung zwischen deponierter Aerosol-Radioaktivität und der Aktivität einzelner oder mehr oder weniger homogen auf einer Fläche verteilter HP mit der In-situ-Gammaspektrometrie nicht möglich. Da das In-situ-Gammaspektrometer die Aktivität über eine vergleichsweise große Fläche mittelt, ist es relativ unempfindlich gegen den Einfluß durch einzelne HP, es sei denn, sie befinden sich in unmittelbarer Nähe zum Detektor. Bei Störfällen oder anderweitigem Verdacht auf HP können durch Vergleichsmessungen an verschiedenen Standorten des Messareals oder besser durch "Abscannen" des Nahbereiches (Handmonitor) evtl. Hinweise auf Stellen mit erhöhter Radioaktivität gefunden werden. Dabei ist zu prüfen, ob die erhöhten Messwerte nicht durch andere Inhomogenitäten, z.B. eingetrocknete Regenpfützen, hervorgerufen wurden.

Ein technisches Hilfsmittel zum Erkennen von heterogenen Aktivitätsverteilungen mittels In-situ-Gammaspektrometrie sind Kollimatorblenden, mit denen sich das "Blickfeld" des Detektors in verschiedene Sektoren einteilen läßt. Mobile Gammaspektrometer mit geeigneten Kollimatoren ermöglichen auch eine gezielte Suche nach HP.

5 Suchstrategien, Detektion und Analyse von HP

Da bei nuklearen Störfällen auch eine möglichst frühzeitige Information über das Auftreten von HP notwendig ist, sind parallel zu vorhandenen Störfallmessprogrammen gezielte Probenahme- bzw. Suchstrategien zum Aufspüren von HP erforderlich [Lux, 1995]. Wie bereits unter 2.1 erwähnt, machen sich HP auf Schrittfiltergeräten durch sprunghafte Aktivitätsanstiege bemerkbar, die durch geeignete Auswertelgorithmen während der Probenahme erfasst werden können [Iwatschenko, 1995]. Festfilter können nach der Probeentnahme mit den im folgenden genannten Verfahren untersucht werden. Es muß jedoch bedacht werden, daß aufgrund der konstruktiven Auslegung üblicher Aerosolsammler HP mit aerodynamischen Durchmesser $> ca. 10 - 20 \mu m$ das Messfilter nicht erreichen können. Eine gezielte Probenahme auch größerer Partikel kann zusätzlich durch die Exposition von Vaselineplatten und Haftfolien



erfolgen. Mit Hilfe von Impaktoren gelingt bereits bei der Aerosol-Sammlung eine Korngrößen-Klassifizierung in der Luft vorhandener HP. Zur Differenzierung zwischen inaktiven Teilchen und HP sind jedoch weitere Schritte erforderlich [z.B. Georgi et al.,1987]. Das Abscannen von geeigneten Flächen mit Handmessgeräten gibt Hinweise auf bereits deponierte HP. Die Suchstrategien für HP auf Flächen- und in Volumenproben unterscheiden sich grundsätzlich.

Im Folgenden wird eine Übersicht und kurze Bewertung der zur Detektion und Analyse von HP in Umweltproben angewendeten oder vorgeschlagenen Verfahren gegeben. Viele Hinweise hierzu sind in den Proceedings der erwähnten Symposien sowie in Review-Artikeln [z.B. Rajewsky et al.,1962; Sandalls et al.,1993] zu finden, so dass in diesem Kapitel nur neuere Publikationen zu diesem Themenbereich zitiert werden.

5.1 Volumenproben

Hier sind gemeint: Wasser-, Boden, Nahrungsmittel-, Bewuchs-, Abfallproben usw. Aus Wasser- bzw. anderen flüssigen Proben kann zunächst versucht werden, die HP abzufiltrieren oder abzuzentrifugieren. Volumenproben können auch so lange geteilt werden, bis in einem Aliquot eine in der Höhe oder in der Zusammensetzung abweichende Aktivität festgestellt wird [z.B. Balashazy et al.,1987]. Eine weitere Möglichkeit, eine Volumenprobe auf heterogene Aktivitätsverteilung durch HP zu überprüfen, besteht darin, die Messung mit veränderter Geometrie zu wiederholen.

5.2 Autoradiographie

Die zu untersuchende Fläche (Luftfilter, Haftfolie etc.) wird mit einem Röntgenfilm oder einem geeigneten Schwarz-Weiß-Film in Kontakt gebracht. Der Film wird mehrere Stunden (bis zu mehreren Tagen) exponiert und anschließend entwickelt.

Mit diesem Verfahren ist eine genaue Lokalisierung von HP möglich. Nach entsprechender Kalibrierung kann man Aussagen über Größe, Form und Gesamtaktivität der HP ableiten. Die gleichzeitige Exponierung mehrerer Filme ermöglicht einen relativ großen Probendurchsatz. Die Autoradiographie ist allerdings ein reines Laborverfahren, der Zeitaufwand ist hoch. Alternativ zu Röntgenfilmen wird auch die Verwendung von Kernspurfolien vorgeschlagen [Akopova et al.,1993; Meyer et al.,1994]. Auf eine neue Entwicklung, die SPP-Technologie (Storage Photostimulable Phosphor), mit dem Vorteil einer hohen Ortsauflösung und großer Messbereichsdynamik, sei hier hingewiesen [Cheng, Y.T., 1995].

5.3 Alpha-/Betamessung

Die zu untersuchende Fläche kann aktiv mit Oberflächenkontaminationsmonitoren "abgescannt" werden. Dieses sehr schnelle und empfindliche Verfahren ermöglicht eine ausreichend genaue Lokalisierung von HP auch auf großen Flächen (Straßen, Dächer usw.). Es eignen sich sowohl größerflächige Gasproportionalzählrohre und Szintillationszähler mit entsprechender Fensterfolie als auch Endfenster-GM-Zählrohre [Mandjukov et al.,1994]. Letztere erlauben allerdings keine Unterscheidung zwischen Alpha- und Betastrahlung.

Zur automatischen Ausmessung von Filtern, Folien, Platten etc. im Labor können Dünnschichtscanner bzw. ortsempfindliche Vieldraht-Gasproportionalzähler (digitale Autoradiographie) eingesetzt werden.



5.4 Dosisleistungsmessung

Dosisleistungsmessgeräte können nur zur orientierenden Suche nach HP von sehr hoher Aktivität ($\gg 1$ MBq) eingesetzt werden. Zu Strahlenschutz Zwecken ist ihr Einsatz jedoch sinnvoll.

5.5 Gammaspektrometrie

Für die Suche nach HP im Feld eignen sich In-situ-Gammaspektrometer nur bedingt (s. 2.3). Es gibt ferner automatische, mit NaI-Detektor bestückte Roboterfahrzeuge, die zur Suche nach HP eingesetzt werden könnten. Im Normalfall wird jedoch die Gammaspektrometrie im Labor zur weiteren Untersuchung von Volumenproben oder isolierter HP eingesetzt [z.B. Osuch et al., 1989].

5.6 Alphaspektrometrie

Wie in einigen Untersuchungen gezeigt wurde [z.B. Broda et al., 1989; Lancsarics et al., 1988], kann die direkte Alphaspektrometrie von HP mit Si-Detektoren oder Gitter-Ionisationskammern wertvolle, qualitative Informationen über Alphastrahler in HP geben. Die Güte der Spektren hängt allerdings sehr von der Präparation bzw. von der Größe der HP ab.

5.7 SEM und Röntgenfluoreszenzanalyse

Zur genauen geometrischen Vermessung von HP wird die Scanning-Electron-Microscopy (SEM) eingesetzt. Zur Bestimmung der Elementzusammensetzung dient die Mikro-Röntgenfluoreszenzanalyse, oft in Kombination mit der SEM angewandt. Diese aufwendigen Verfahren setzen eine spezielle Präparation der HP voraus [z.B. Vapirev et al., 1990].

6 Zusammenfassung

Im Rahmen der Überwachung der Umweltradioaktivität spielen HP im Allgemeinen keine Rolle und werden daher bei der Auswertung der Routinemessungen selten berücksichtigt. Die vereinzelt deponierten oder resuspendierten Teilchen stammen aus bekannten Störfällen wie z.B. Tschernobyl und werden als "Ausreißer" bezüglich Aktivität oder Isotopenverhältnis in einer Messreihe behandelt.

Besondere Probeentnahme- und Messverfahren waren bislang nicht vorgesehen, werden jedoch erforderlich, wenn bei einem aktuellen Störfall mit der Freisetzung von HP gerechnet werden muß. In diesem Falle sind durch gezielte Suchtechniken (Haftfolien, Vaselineplatten, Abscannen von Flächen) Informationen über Häufigkeit und Aktivität von HP zu sammeln. Zugleich sollten die laufenden Probeentnahmen und Messungen auf Einflüsse durch HP kontrolliert werden. Hierbei ist es z.B. erforderlich, Luftfilter vor einer Veraschung zu untersuchen und Volumenproben zu teilen oder mit geänderter Geometrie wiederholt zu messen bzw. wässrige Proben zu filtrieren/zentrifugieren. Diese zusätzlichen Untersuchungen auf HP erhöhen den Messaufwand im Störfall zunächst erheblich. Der Umfang dieser spezifischen Messungen kann wieder reduziert werden, wenn geklärt ist,

- in welchem Gebiet HP auftreten
- ob durch die Inhalation oder Ingestion der HP eine Gefährdung des Menschen erfolgt
- ob die Aktivität der HP relativ zur Gesamtaktivität eine getrennte Erfassung erforderlich macht.

Eine Übersicht über geeignete Verfahren zur Identifikation von HP in verschiedenen Medien bei einem Störfall ist in Tabelle 2 zusammengestellt. Diese Empfehlungen können jedoch nur Hinweise auf mögliche Verfahren geben, die im Ereignisfall situationspezifisch und in Absprache mit den zuständigen Behörden anzuwenden und ggf. zu modifizieren sind.



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

Blatt: 3.4.8
 Seite: 9 von 10
 Stand: 23.10.1996*)

Tabelle 2: Übersicht über geeignete Verfahren zu HP-Identifikation

Medien Identifikation	spez. Sammel- flächen (1)	Verkehrs- flächen	Boden mit Bewuchs (Fläche)	pflanzl. Le- bensmittel, Boden (Volumen)	Niederschlags- und Oberflä- chenwasser	Luftfilter (Wasser- filter)	Fahrzeuge Geräte Kleidung
Großflächenzähler (Handmonitor)	x	x	0 (2)			0	x
Szintillationszähler		x (3)	x (3)				x
In-situ-Spektrometer		0	0				
Autoradiographie(4)	x					x	
Gitterionisationskam- mer (Alpha)	x				0(5)	x	
Geometrieänderung bei γ -Spektrometrie (6)				x	x	x	
Nuklidverhältnisse		x	x	x	x	x	x
On-line-Messung Zeitverhalten					x	x (7)	

Legende: x geeignet

0 bedingt geeignet

(1) z.B. Folien, Vaselineplatten, Pflanzenblätter, etc.

(2) Beschädigung der Eintrittsfolie vermeiden (Schutzgitter)

(3) auch automat. Fahrzeuge mit Szintillationszähler

(4) auch digitale Autoradiographie mit orts-auflösenden Vieldraht-Zählrohren

(5) Eindampfrückstände

(6) auch Probenteilung

(7) Schrittfiltergeräte mit geeigneter Software



7 **Literatur**

- Akopova, A.B. et al.: Development of an autoradiographic method of investigation of hot particles from the Chernobyl nuclear power plant. Nucl. Tracks Radiat. Meas. 21 (1993) 323-328.
- Bad Schwalbach, 1959: Kolloquium über radioaktive Partikel des "Sonderausschusses Radioaktivität", Schriftenreihe "Strahlenschutz" des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, Heft 12
- Balashazy, I. et al.: Gamma-spectrometric examination of hot particles emitted during the Chernobyl accident. Hungarian Report KFKI-1987-24/K, Central Research Institute for Physics, Budapest 1987.
- Broda, R. et al.: Alpha emitters in Chernobyl hot particles. Radiochim. Acta 48 (1989) 89-96.
- CEC, IUR, SCSR: Proceedings of the Intern. Symposium on Radioecology, Chemical Speciation - Hot Particles, Znojmo, CSFR, 12-16 Oct., 1992.
- Cheng, Y.T., et al.: Radioactivity measurements using Storage Phosphor Technology. Proceedings ICRM Conference on Low-Level Measurement Techniques, Seville, Spain, 2-6 Oct., 1995.
- IAEA: The radiobiological impact of hot beta-particles from the Chernobyl-fallout: Risk assessment. Research-coordination Meeting held in Kiev, Ukraine, 26-30 Aug., 1991. Working Material reproduced by the IAEA, Vienna, Austria, 1992.
- Iwatschenko-Borho, M. et al.: On-line Erkennung von "Hot Particles" bei Aerosolmonitoren in der Umgebungsüberwachung. 9. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität (1995), 213-217. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn (Hrsg.)
- Lancsarics, Gy. Et al.: Transuranium elements in hot particles emitted during the Chernobyl accident. Radiat.Prot.Dosim. 22 (1988) 111-113.
- Lux, D.: Einfluß von "Heißen Teilchen" auf Meßverfahren bei der Umweltradioaktivität. 9. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität (1995), 176-180. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Bonn (Hrsg.)
- Mandjukov, I.G. et al.: High activity hot particles in Kozloduy nuclear power plant - status of the investigations. Radiat. Prot. Dosim. 54 (1994) 133-138.
- Meyer, K.E. et al.: Mapping of surface alpha contamination using alpha track detectors. Radiat. Prot. Dosim. 55 (1994) 265-271.
- Osuch, S. et al.: Isotopic composition of high activity particles released in the Chernobyl accident. Health Phys. 57 (1989) 707-716.
- v.Philipsborn, H. (Hrsg.): Hot Particles from the Chernobyl fallout, Proceedings of an Int. Workshop held in Theuern, 28/29 Oct., 1987, Bergbau- und Industriemuseum Ostbayern, Band 16. ISBN 3-92 5690-10-7.
- Rajewsky, B. et al.: Heiße Teilchen - Untersuchung radioaktiver Partikel aus dem Jahre 1961. Atomkernenergie 8 (1962) 3-24.
- Sandalls, F.J. et al.: Hot particles from Chernobyl: a review. J.Environ.Radioactivity 18 (1993) 5-22.
- Vapirev, E.I. et al.: Visualisation, identification and spectrometry of a hot particle. Radiat. Prot. Dosim. 30 (1990) 121-124.

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