

20 JAHRE WISSENSCHAFTLICHE ERKENNTNISSE NACH DEM REAKTORUNFALL TSCHERNOBYL : IN SITU GAMMA SPEKTROMETRIE

Ch. Murith, Bundesamt für Gesundheit, Strahlenschutz, 3003 Bern

ZUSAMMENFASSUNG

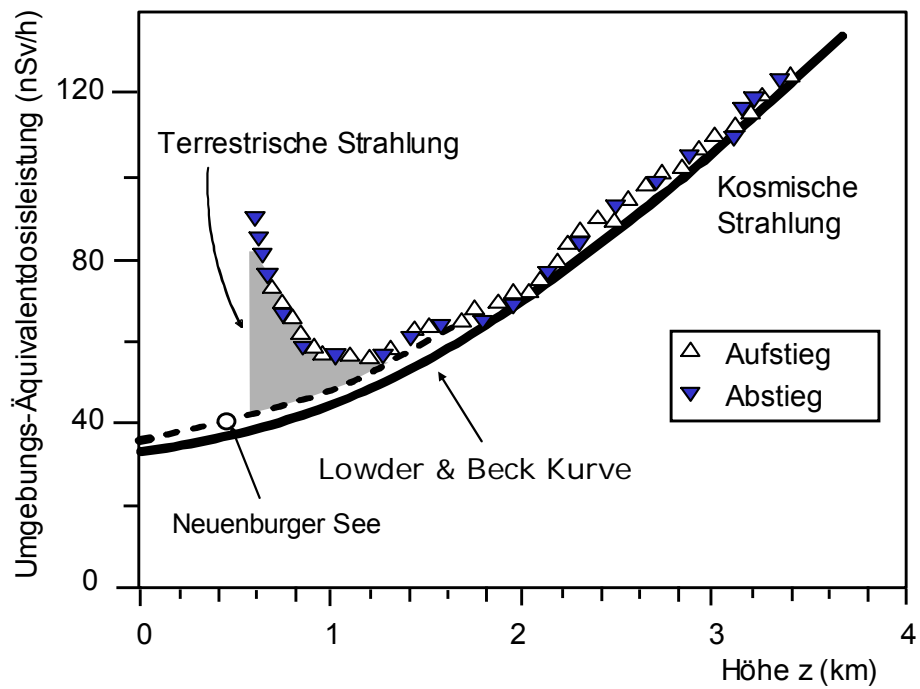
Die rasche mögliche Erfassung der Bodenkontamination, deren nuklidspezifischen Aktivitätskonzentrationen und individuellen Beiträge zur Ortsdosisleistung brachte die in situ Gamma Spektrometrie als Messverfahren nach dem Reaktorunfall Tschernobyl in der Vordergrund. Diese Vorteile gegenüber dem traditionellen Vorgehen (Probenahme und anschliessende Gamma Spektrometrie im Labor) wurden in den 90-iger Jahren immer häufiger ausgenutzt, insbesondere im Rahmen der MORAL (Mobile Radiological Laboratories) Vergleichsmessungen. Die durchgeführten Expertisen in verschiedenen Interessengebieten wie Gera (1993), Gordola (1997), Tschernobyl Exclusion Zone (1999) und Nord-Cotentin (2000) dienten auch zur Harmonisierung der Mess- und Auswerte- Methode. Dabei gelten die ICRU 53 Empfehlungen [1] als Referenz. Die Erkenntnisse nach 20 Jahren in situ Gamma Spektrometrie Erfahrung zeigen, dass dieses Verfahren besonders geeignet ist, um rasch und empfindlich die Ablagerungen in den verschiedenen Landesgebieten zuverlässig nachzuweisen und weiterzuverfolgen. In situ Gamma Spektrometrie Messungen gehören somit zum Überwachungsprogramm der Kern- und Forschungsanlagen [2]. Speziell wurden In situ Messsysteme zur Kennzeichnung herrenloser Quellen bei Metallhändlern oder bei Kehrlichtverbrennungsanlagen benutzt. Weiter sind auch Messungen im Gang zur Bestimmung der Umgebungs-Äquivalentdosisleistungsbeiträge im Hausinnern.

1. Methodologie

Seit dem 5. Oktober 2001 ist das BAG für die in situ Gamma Spektrometrie nach der Norm ISO/IEC 17025 vom Bundesamt für Metrologie und Akkreditierung (METAS) akkreditiert. Die Figur 1 zeigt die Messanordnung für in situ Messungen in der Umgebung des KKW's Beznau. Von den in situ Spektren werden die Aktivitätskonzentrationen und die zugehörige Umgebungs-Äquivalentdosisleistung $H^*(10)$ berechnet. Im Normalfall wird eine homogene Verteilung der Radionuklide im Boden angenommen. Im Ereignisfall wird eine exponentielle Verteilung der künstlichen Radionuklide je nach trockener oder nasser Ablagerung angenommen. Als Qualitätskontrolle der in situ Messergebnisse werden die berechneten Umgebungs-Äquivalentdosisleistungen summiert und mit der gemessenen gesamten Umgebungs-Äquivalentdosisleistung (Ionisationskammer) verglichen unter Berücksichtigung des kosmischen Beitrages [3]. Dieser kann analytisch bestimmt werden in Abhängigkeit der Messorthöhe, basierend auf Messungen auf dem Neuerburger See und während eines Luftballonfluges (Fig. 2). Eine Übereinstimmung innerhalb +/- 20% wird als Akzeptanzkriterium festgelegt. Aus Erfahrung können grössere Diskrepanzen vorkommen. Eine Unterschätzung der in situ Ergebnisse verglichen mit der gesamten Umgebungs-Äquivalentdosisleistung wurde zum Beispiel am Zaun des KKW's Mühleberg beobachtet. Diese war auf die Direktstrahlung (^{16}N , 6.1 und 7.1 MeV), die nicht im Energiebereich des in situ Spektrums (0.02 – 2 MeV) erfasst wird, zurückzuführen. Eine Überschätzung der in situ Ergebnisse im Vergleich zur Ionisationskammermessung wurde auch an Orten mit höheren ^{137}Cs Ablagerungen in der obersten Bodenschicht, wo die Annahme einer homogenen Verteilung nicht zutrifft, festgestellt. Dies gilt ebenfalls für die Zerfallsprodukte von Radium nach Radon Auswaschung mit dem Regen, so dass sie nicht nur homogen im Boden sondern teilweise an der Bodenoberfläche verteilt sind.



Figur 1: In situ Messanordnung in der meteorologische Station Bezau

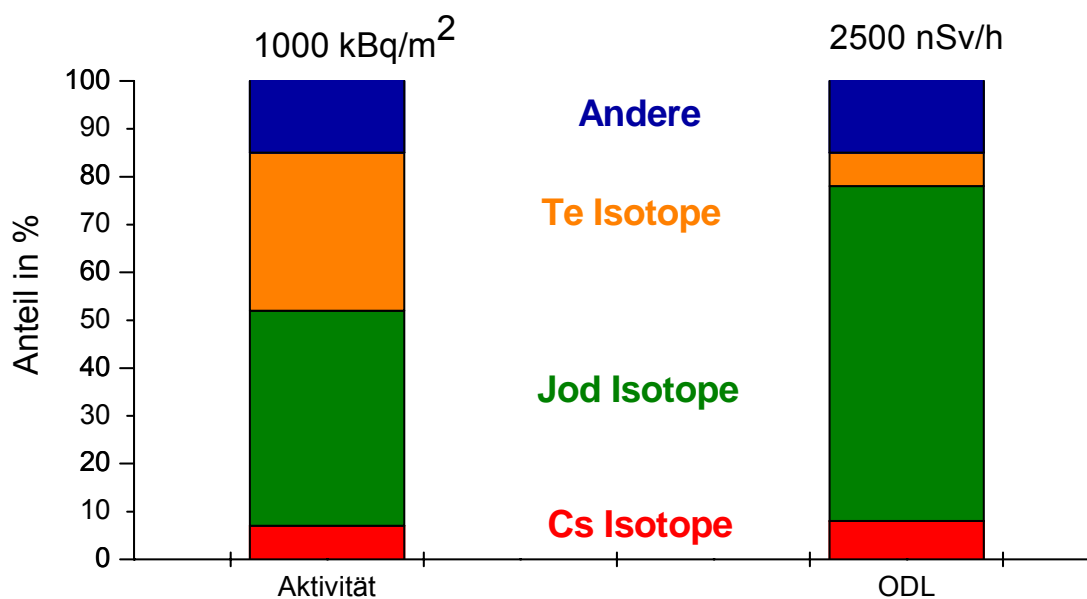


Figur 2: Beitrag der kosmischen Strahlung zur Umgebungs-Äquivalentdosisleistung [3]

2. Ergebnisse der in situ Gamma Spektrometrie nach Tschernobyl

2.1 In situ Spektrometrie und Bodenablagerungen

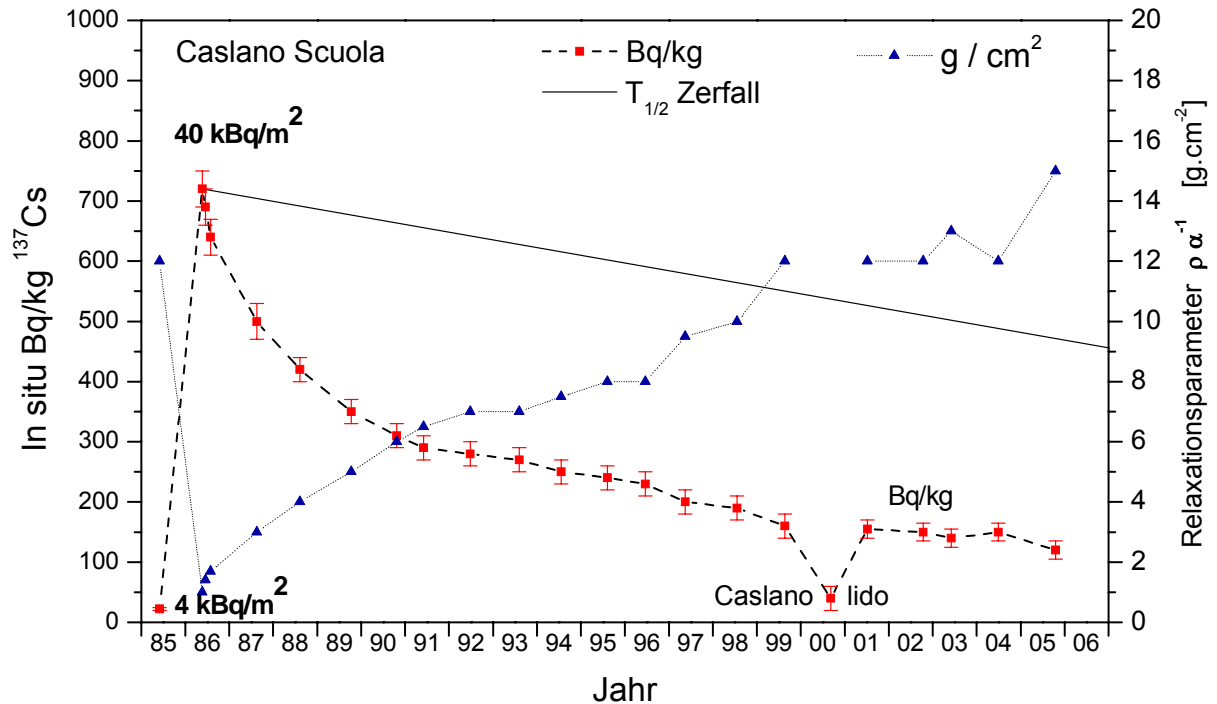
Im Jahr 1986 waren automatische ODL-Sonden des NADAM Messnetzes in 12 meteorologischen Stationen in Betrieb. Die Korrelation zwischen den ODL Anstiegen und der Regenmengen kam klar zum Vorschein. Deshalb orientierten sich die in situ Messungen vorerst im Tessin, wo die höchsten Ablagerungen stattfanden. Die Beiträge der Tschernobyl Radionuklide zur Bodenkontamination und zur Umgebungs-Äquivalentdosisleistung $H^*(10)$ sind in der Figur 3 nach Isotopen klassifiziert. Dominierend am 1. Mai 1986 waren ^{132}I und ^{132}Te , die rund 50% der Ablagerung und 70% der Umgebungs-Äquivalentdosisleistung ausmachten [4]. ^{131}I mit rund 20% bzw. 7% und die beiden Cs Isotope ^{134}Cs und ^{137}Cs mit rund 7% Anteil zur Bodenkontamination und $H^*(10)$ waren die anderen wichtigsten Radionuklide.



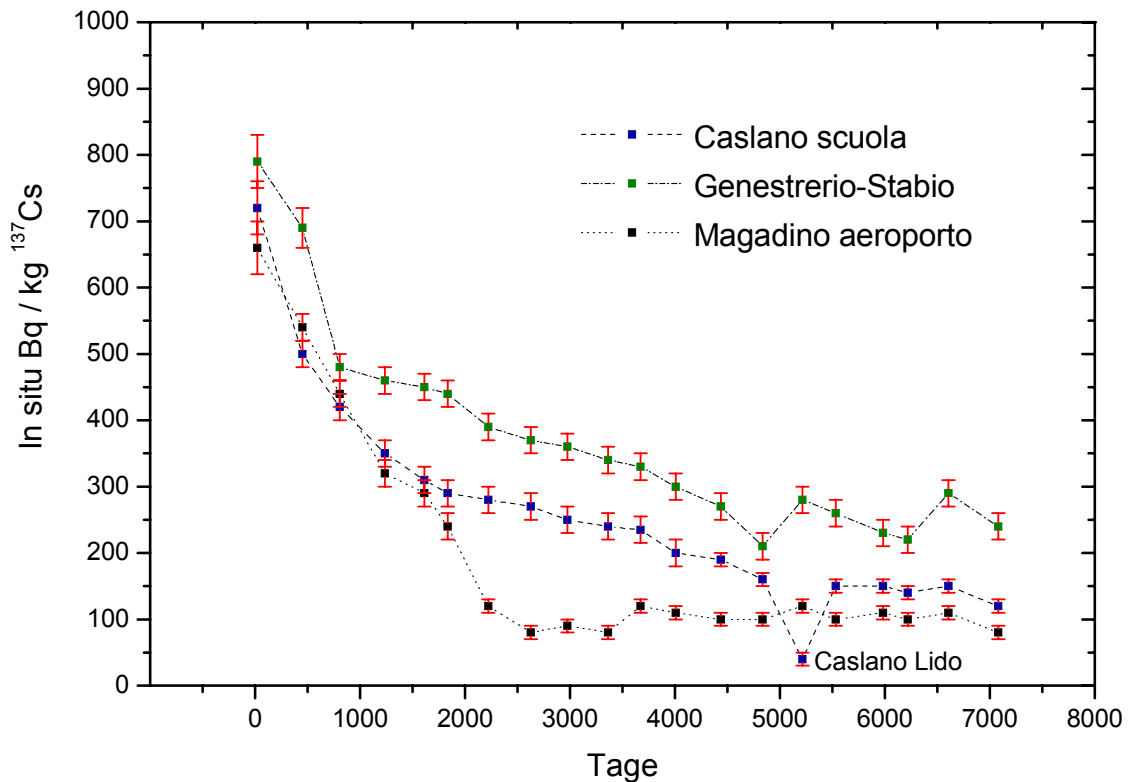
Figur 3: Isotopische Anteile zur Bodenkontamination und zur Äquivalentdosisleistung in Caslano

Es war sehr wichtig, in situ Messungen im ersten Jahre nach Tschernobyl durchzuführen, um eine repräsentative Kartographie der Kontaminationslage zu erhalten. Die Unsicherheiten bei den Messergebnissen werden immer grösser mit der Zeit, da die Verteilung der Radionuklide sich ändert und auch weil die Differenzierung des Caesiums von Tschernobyl gegenüber dem Bombenfallout Caesium mit dem Verhältnis $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ ungenauer oder sogar unmöglich wird. Um die Verteilungsdynamik des ^{137}Cs im Boden abzuschätzen zeigt die Figur 4 den Verlauf der in situ Aktivitätskonzentrationen basierend auf einer homogenen Verteilung. Das Eindringen des Caesium im Boden zeigt eine schnellere Abnahme als die nur aus der physikalischen Halbwertszeit zu erwarten wäre. Diese Differenz kann als Funktion der Relaxationslänge [α^{-1}] einer exponentiellen Verteilung ausgedrückt werden [5], so dass die Ablagerung wiedergegeben wird. Die entsprechende Zunahme des Umrechnungsfaktors von Bq/kg in Bq/m² variiert somit von rund 50 im Jahre 1986 bis zu 210 im Jahr 2005. Diese Zunahme hängt von den lokalen Eigenschaften und der Geschichte des Messfeldes ab. Figur 5 zeigt den Zeitverlauf der in situ Messwerte für 3 Standorte mit vergleichbaren regionalen Ablagerungen. Bemerkenswert ist die gute Übereinstimmung im Jahre 1988, dann die steigende Diskrepanz in den folgenden Jahren bis zum neuen Trend zu Übereinstimmung in den späteren Jahren. Die Messung am Standort Caslano lido, 500 m entfernt vom Standort

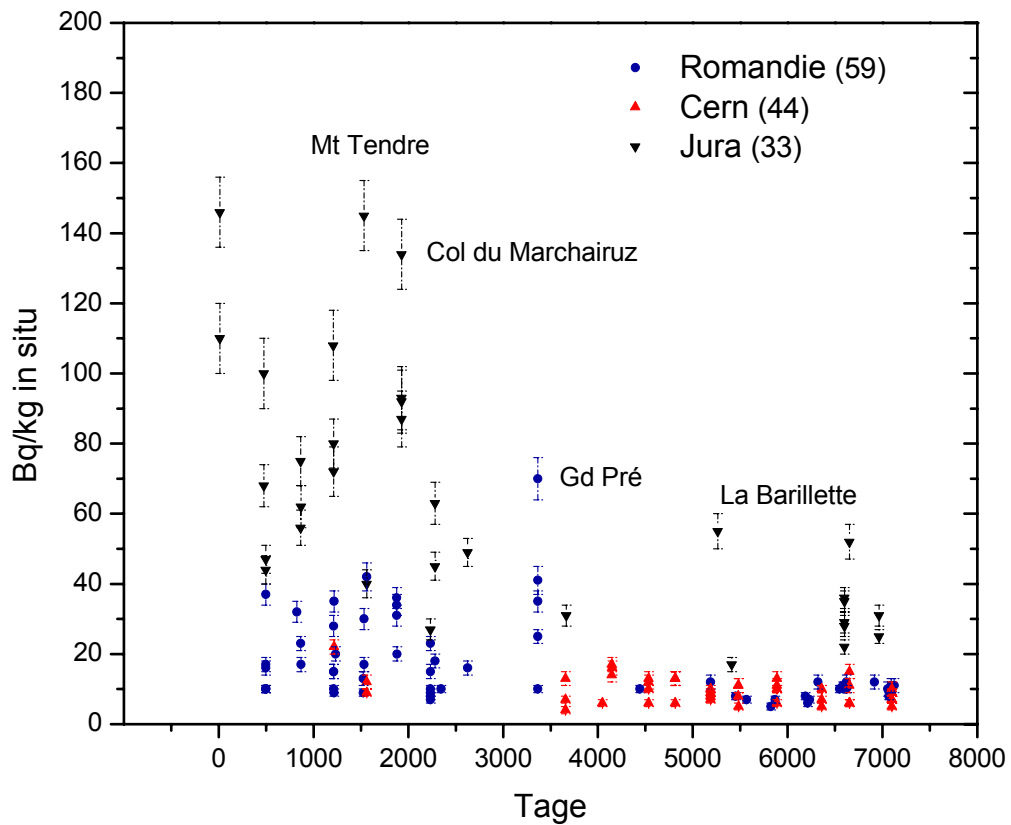
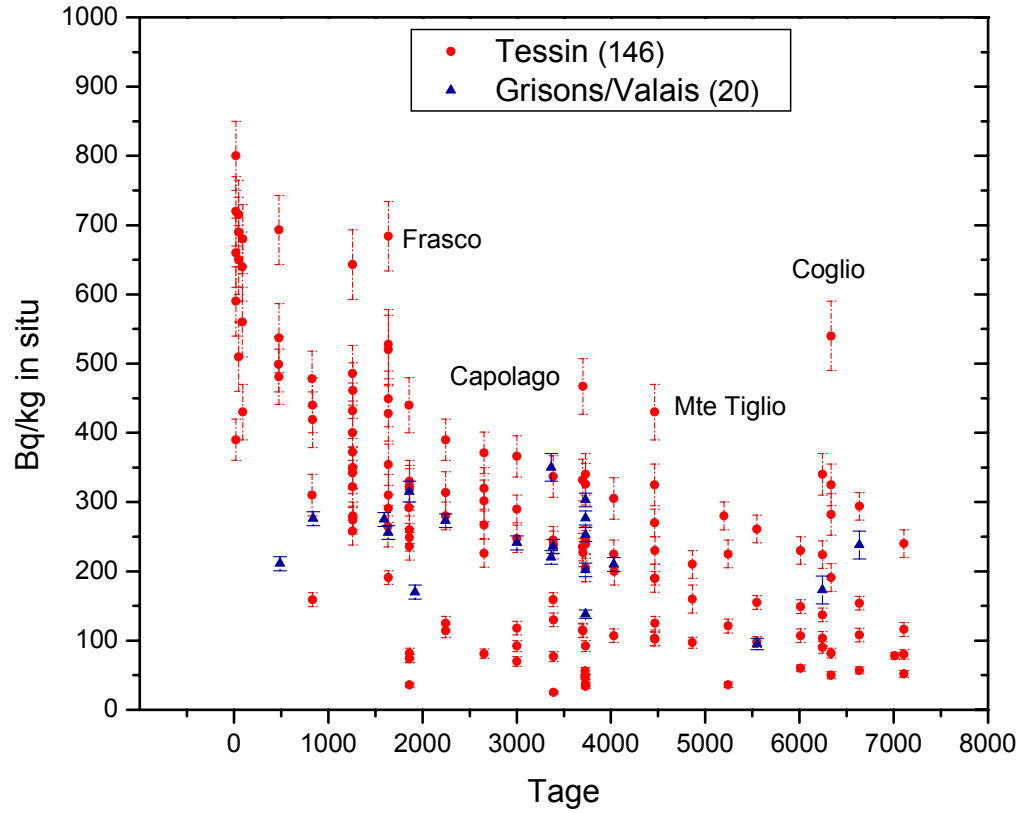
Caslano scuola, zeigt auch, dass die Unterschiede lokal gross sein können. Einen Überblick über alle in der letzten 20 Jahren durchgeführten in situ Messungen sind nach Regionen in der Figuren 7 und 8 geordnet.



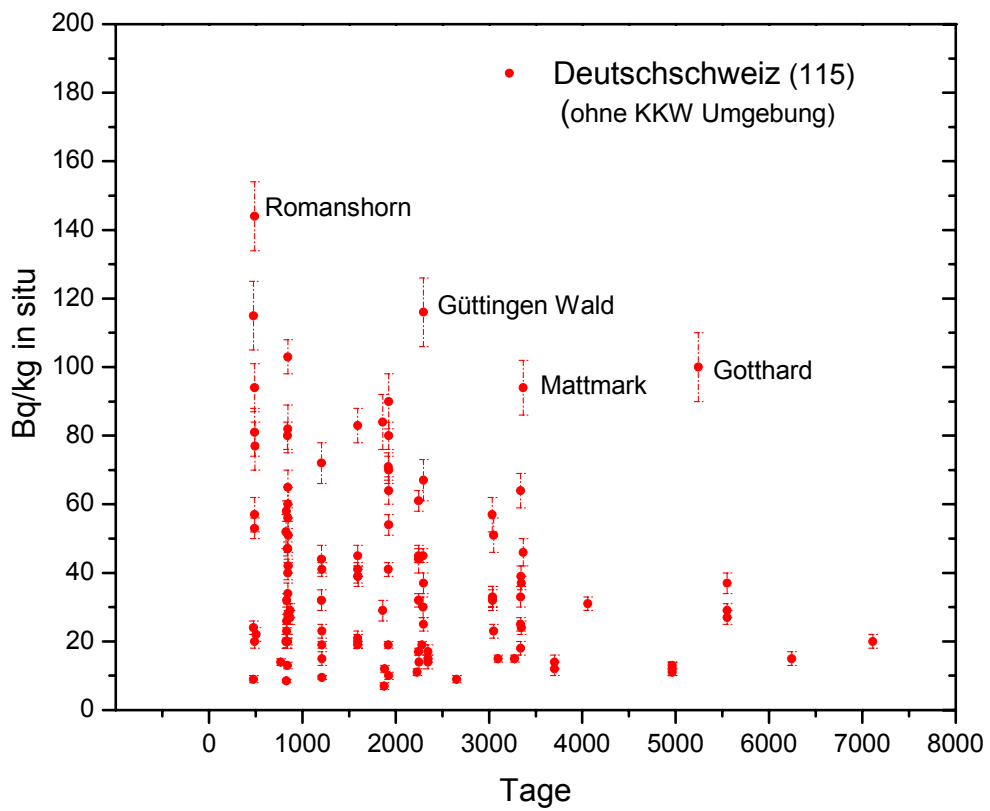
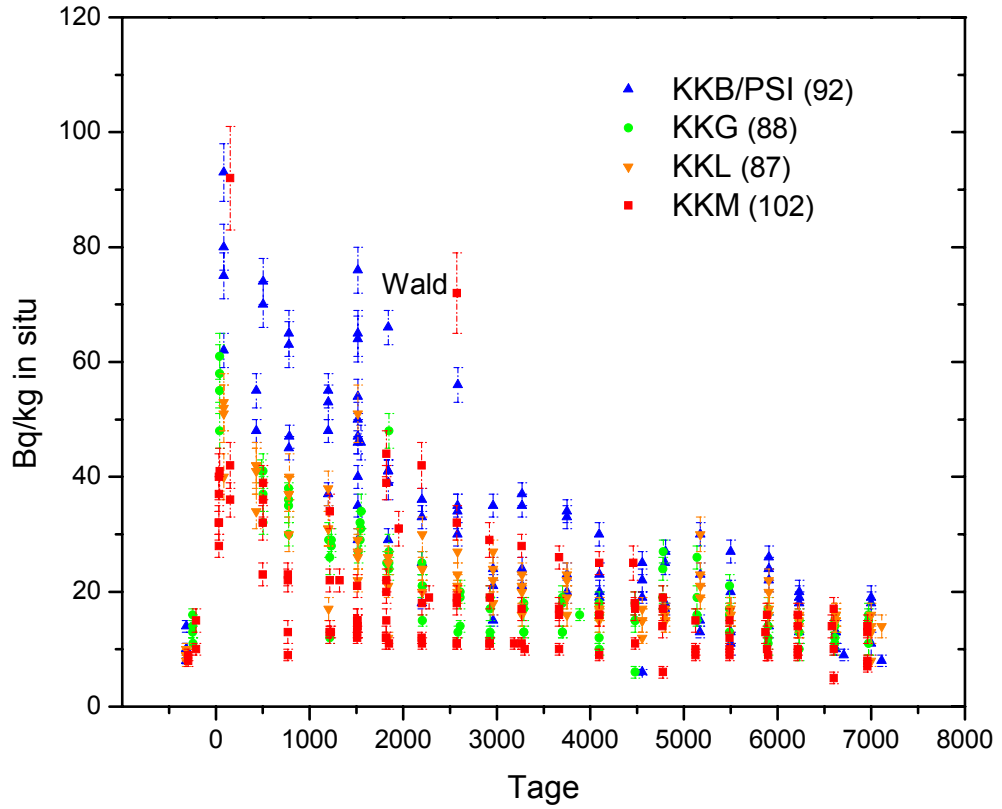
Figur 4: Zeitverlauf der Caesium Konzentrationen und des zugehörigen Eindringungsparameters



Figur 5: Zeitverlauf der Caesium Konzentrationen an 3 Standorten des Kantons Tessin



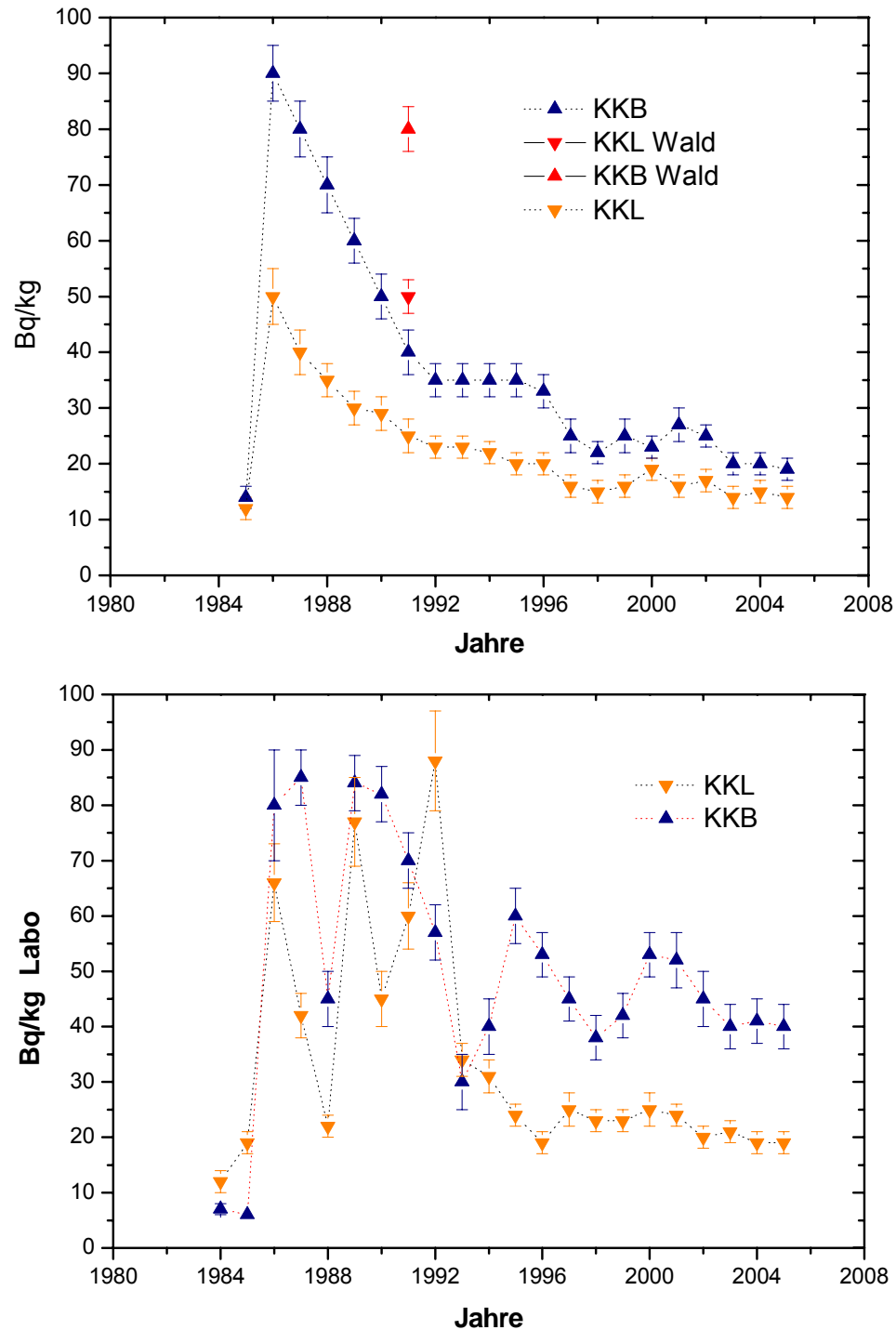
Figur 7: ^{137}Cs Zeitverlauf in der Romandie, im Tessin und in Südtaler von Graubünden und Wallis



Figur 8: ^{137}Cs Zeitverlauf in der KKW Umgebung und in der Deutschschweiz

2.2 In situ und Laborergebnisse

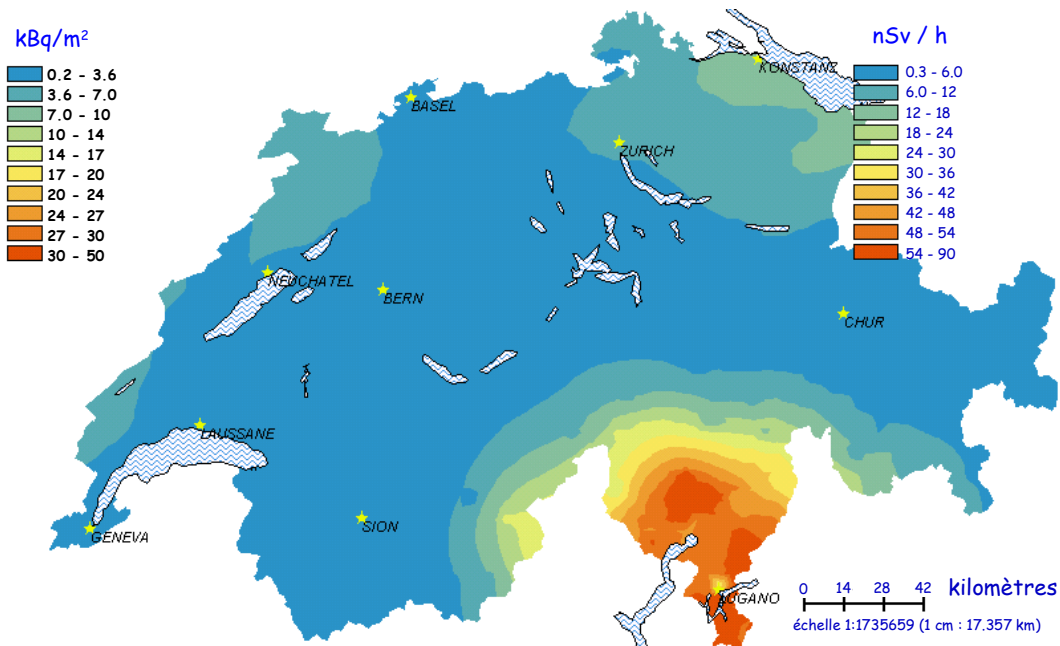
Die Figur 6 zeigt die in situ und Labor Ergebnisse für 2 Standorte in der Umgebung der KKW Beznau (KKB) und Leibstadt (KKL) im Vergleich. Bemerkenswert ist das wilde Verhalten der Laborergebnissen in den ersten Jahren nach der Ablagerung. Bei der in situ Ergebnissen zeigen die Messungen im Wald, dass Caesium scheinbar in den obersten Bodenschichten gefangen bleibt.



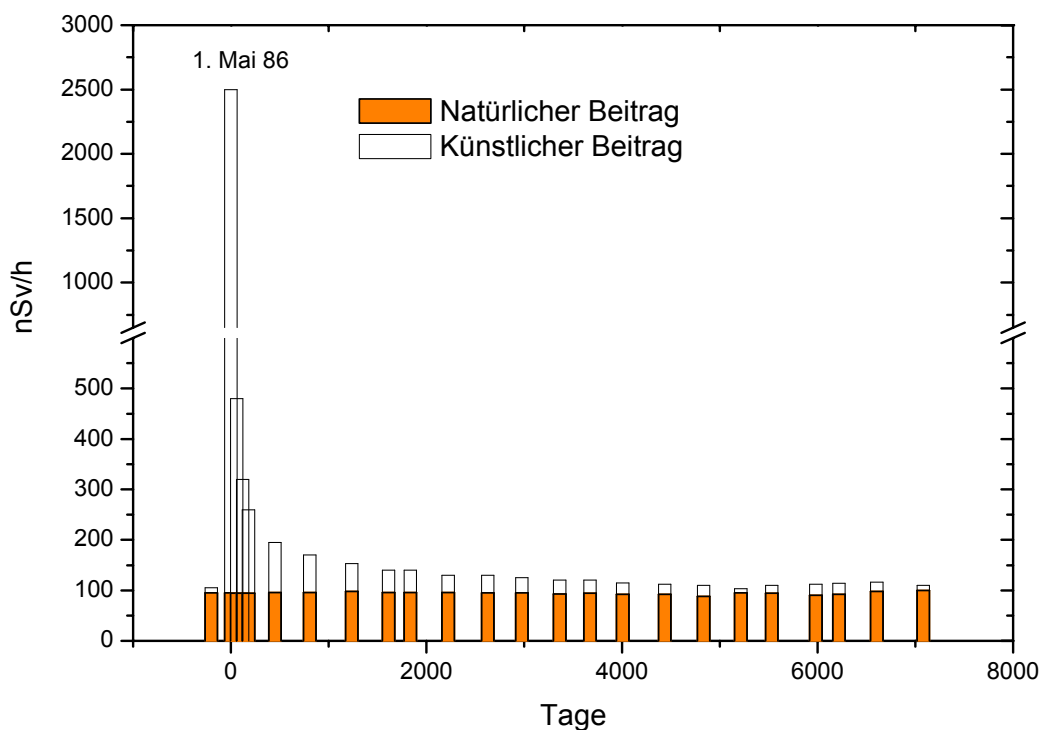
Figur 6: Vergleich der in situ und Labor Ergebnisse in der Umgebung KKB und KKL

2.3 In situ und Umgebungs-Äquivalentdosisleistung

Die auf in situ Messungen basierenden Caesium-137 Ablagerungen und deren resultierende Umgebungs-Äquivalentdosisleistungen sind in der Fig. 7 zusammengefasst. Als Beispiel zeigt speziell die Figur 8 den detaillierten Zeitverlauf der Umgebungs- Äquivalentdosisleistungen in Caslano.



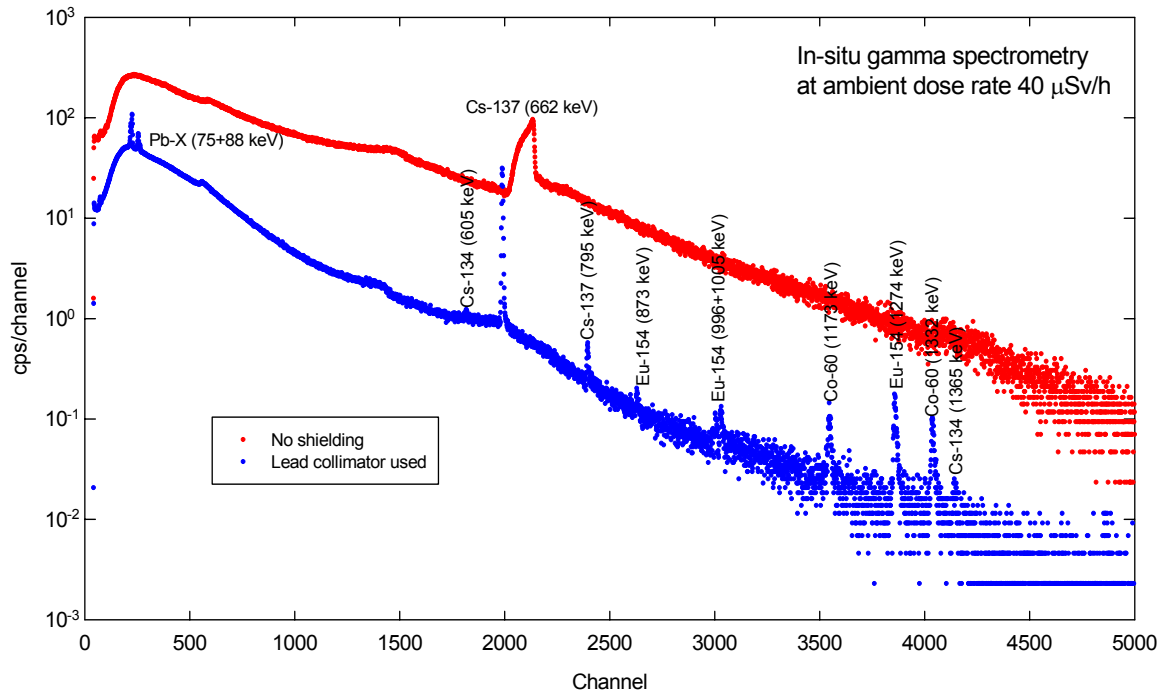
Figur 7: Kartographie der Caesium Ablagerungen und zugehörige Dosisleistungsbeiträge



Figur 8: Zeitverlauf der natürlichen und künstlichen Umgebungs-Äquivalentdosisleistungen in Caslano

2.4 In situ Spektrometrie und Intervention

Bei extremen Bedingungen sind in situ Einsätze problematisch. Dies zeigt Figur 9 am Beispiel von Messungen in der gesperrten Zone von Tschernobyl [6], wo wegen der Totzeit nur mit abgeschirmtem Detektor die Nuklidzusammensetzung gewonnen werden konnte.



Figur 9: In situ Ergebnisse in der gesperrten Zone von Tschernobyl ohne und mit Bleiabschirmung

Die Ergebnisse solcher Messungen sind mit entsprechenden Unsicherheiten behaftet. Die Arbeitsbedingungen in starken verstrahlten Gebieten erfordern Schutzmassnahme für Mensch und Geräte, um Kontamination zu vermeiden.

2.5 In situ Spektrometrie und Modelle

Auch bei Einsätzen, wo die Feldgeometrie sich von einer idealen ausgedehnten ebenen Fläche entfernt, müssen die Ergebnisse mit Vorsicht betrachtet werden [7]. Als Beispiel zeigt Bild 10 einen in situ Einsatz im Massif du Mercantour, wo die Verteilung des Caesiums sehr heterogen war, mit geprägten Hot Spots Flecken von einigen cm^2 .

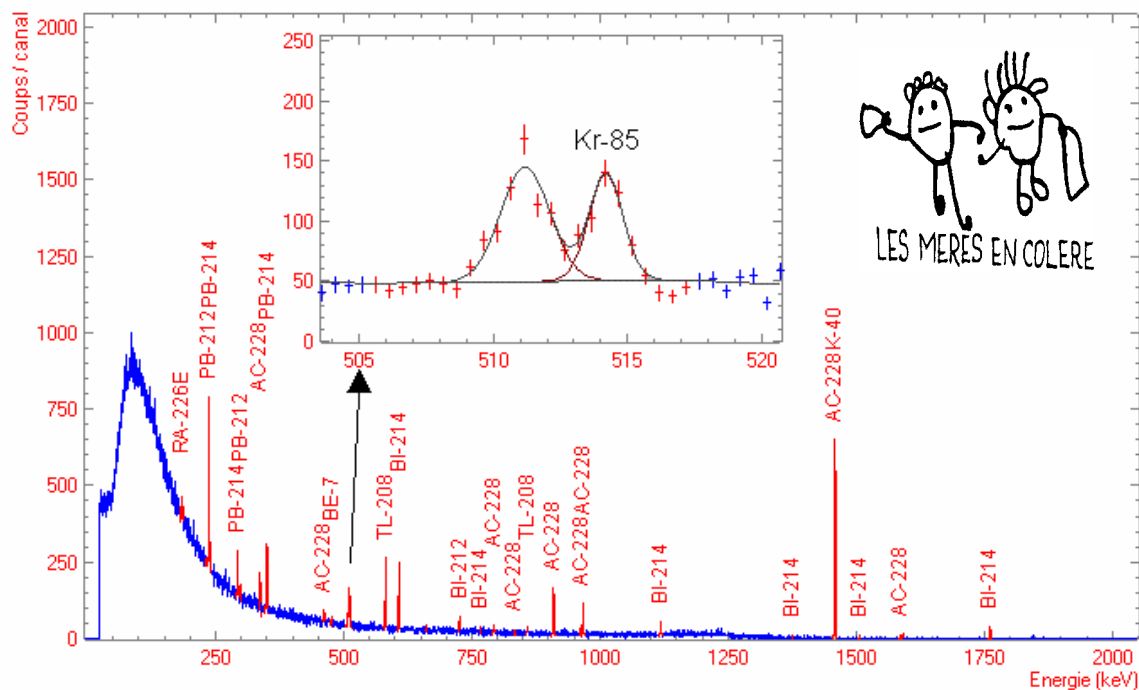


Figur 10: In situ Messungen im Gebiet Isola 2000

In Fällen, wo die Verteilung der künstlichen Radionuklide unbekannt ist oder falls es Radionuklide gibt die ausserhalb des in situ Energiebereichs liegen, kann trotzdem die in situ Gamma Spektrometrie zur Abschätzung des künstlichen Beitrags zur Umgebungs-Äquivalentdosisleistung dienen. Dies erfolgt durch Subtraktion des natürlichen in situ bestimmten Beitrages von der gesamten Ionisationskammer gemessenen Umgebungs-Äquivalentdosisleistung. Anhand dieses errechneten künstlichen Beitrags kann versucht werden, die Verteilung abzuschätzen. Zu vermerken ist, dass eine Unterschätzung bzw. Überschätzung des Relaxationsparameters nennenswerte Unterschiede in der Flächenaktivitätsbestimmung zeigen können, die sich aber bei der Bestimmung der Umgebungs-Äquivalentdosisleistung kompensieren. Die Rechnung mit der extremen Verteilungshypothese (homogen an der Oberfläche und homogen im Boden), die maximal einen Faktor 2 bei der Umgebungs-Äquivalentdosisleistung Bestimmung ausmachen kann, ermöglicht aber eine Aussage über die Verteilung. Für eine langjährige Verfolgung hat die homogene Verteilung im Boden den Vorteil, dass sie sehr empfindlich ist zur Feststellung einer neuen Ablagerung [8], obwohl dabei die Umgebungs-Äquivalentdosisleistung überschätzt wird. Diese Überschätzung nimmt mit der Zeit ab, da sich die Verteilung allmählich einer homogenen Verteilung nähert. Als weiterer Vorteil kann die direkte Vergleichbarkeit der natürlichen und künstlichen Aktivitäten erwähnt werden.

2.6 In situ Spektrometrie und "Stakeholder involvement"

Die Fähigkeit der in situ Expertise, direkt Vorort Messergebnisse über natürliche und künstliche Beiträge zur externen Strahlenexposition der Bevölkerung abzugeben, wurde in der Übung Nord Cotentin 2000 ausgenutzt [9]. Dabei ging es speziell in situ Resultate zu liefern und zusätzlich Probenahme durchzuführen an Standorten (Strände, Privat -und Schulgarten, Nahumgebung der Wiederaufbereitungsanlage von La Hague), die vom Kollektiv "Les Mères en Colère" ausgewählt wurden. Als spezielle Anwendung aus dem in situ Spektrum der Figur 11 zu entnehmen, konnte bei dieser Gelegenheit die Aktivitätskonzentration und die zugehörige Umgebungs-Äquivalentdosisleistung des Edelgases ^{85}Kr abgeschätzt werden. Diese Möglichkeit, Aussagen über in der Umgebungsluft verteilte Radionuklide abzuleiten, basierend auf einer homogenen Aktivitätsverteilung im oberen Halbraum, wurde gegebenenfalls zur besseren Quantifizierung des identifizierten ^{41}Ar Beitrags in der Umgebungsluft von Forschungsanlagen (CERN und PSI) in der Schweiz benutzt.



Figur 11: In situ Spektrometrie Nachweis von ^{85}Kr in der Umgebung von La Hague

3. SCHLUSSFOLGERUNGEN

Der Einsatz von in situ Gamma Spektrometrie zeigt, dass dieses Verfahren besonders geeignet ist, um rasch eine zuverlässige Information über die externe Strahlenexposition natürlicher und künstlicher Herkunft in der Umgebung zu erhalten. Besonders erlaubt die in situ Gamma Spektrometrie, eine Kontamination mit guter Empfindlichkeit festzustellen und zu verfolgen. Deshalb scheint es relevant, die in situ Gamma Spektrometrie in der normalen Umgebungsüberwachung (Nullpegel und Beweissicherung Messungen) zu integrieren, um gegebenenfalls Abgabenauswirkungen auf die Umwelt wie Kontamination oder langfristige Akkumulation von Gammaemissionen in der Umgebung von Kernanlagen nachzuweisen. In der Frühphase eines Ereignisses sind aber andere Messungen von Bedeutung für den Schutz der Bevölkerung, basierend entweder auf Prognosen, automatischen Messnetzen, Laboranalysen von Lebensmitteln oder direkten Messungen im menschlichen Körper.

Relevant ist insbesondere dass sich benachbarte Länder auf harmonisierte Messverfahren abstützen können, um eine Kontaminationslage einheitlich zu bewerten [10]. In diesem Kontext spielen sicher die deutsch-schweizerische Kommission und die "commission franco-suisse" eine wichtige Rolle. Für Deutschland und die Schweiz erlaubte die in situ Spektrometrie, eine konsistente Kartographie der Ablagerungen von 1986 herzustellen. Leider war dies nicht der Fall für Frankreich, wo dieses Verfahren kaum eingesetzt wurde. Seither hat sich diese Situation verbessert und eine effektive Zusammenarbeit wie diejenige mit dem LfU für die KKL Beweissicherung existiert mit Frankreich für die Umgebungsüberwachung des CERN. Schliesslich müssen die in situ Gamma Spektrometrie Ergebnisse als nutzbare Zusatzinformationen zur radiologischen Kennzeichnung eines untersuchten Standortes angesehen werden. Sicher gibt es noch Potential, dieses Messverfahren zu optimieren und noch mehr daraus zu gewinnen. Das gehört zu den zukünftigen Herausforderungen.

Referenzen

- [1] Gamma-Ray Spectrometry in the Environment, ICRU REPORT 53, 1994
- [2] I. Winkelmann, W Haimerl und J. Wutz "Nuklidspezifische Messungen der Ortsdosisleistung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen" ISH-Bericht 12, 1982
- [3] C. Murith "La radioactivité de l'environnement: une méthode rapide d'estimation de l'exposition externe du public", Radioprotection, Vol. 22 n°3, p 231-239, Prix SFRP 1986
- [4] Winkelmann et al. "Ergebnisse von Radioaktivitätsmessungen nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl", ISH-Heft 99, 1986
- [5] C. Murith, A. Gurtner "In situ Spectrometry to follow the behaviour of the Chernobyl Radionuclides in the soil", Österr. Bodenkundl. Gesellschaft, Heft 53, Seite 19-26, 1996
- [6] R. Martinčič, D. Glavič-Cindro, M. Korun, B. Pucelj and B. Vodenik, 12th Regular Workshop on Mobile Radiological Laboratories, Chernobyl IJS Report, 1999
- [7] J.-P. Laedermann, F. Byrde und C. Murith "In situ Gamma-ray Spectrometry: the Influence of Topography on the Accuracy of Activity Determination", J. Environ. Radioactivity, Vol. 38, N°1, pp. 1-16, 1998
- [8] C. Murith et al., "Environmental in situ Gamma Spectrometry in Switzerland", Environment International, Vol. 14, pp. 353-361, 1988
- [9] C. Murith "Rapport sur l'exercice Nord Cotentin 2000", www.irsn.org
- [10] Winter et al. "Radioactivity in the Federal Republic of Germany and Switzerland after the reactor accident at Chernobyl, FS-86-39-AKU, 1986