UMWELTKONTAMINATION UND STRAHLENBELASTUNG BEI FREISETZUNG RADIOAKTIVER STOFFE IN DIE ATMOSPHÄRE

K. J. VOGT

Kernforschungsanlage Jülich, Zentralabteilung Strahlenschutz, 517 Jülich BRD

Zusammenfassung—Nach der Theorie der turbulenten Diffusion wurde die Ausbreitung radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre behandelt. Unter Verwendung der von Pasquill empfohlenen meteorologischen Parameter wurden die Verteilung der Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre, die Ablagerung der Luftkontaminationen am Boden und die Abnahme der Aktivität der Abluftwolke durch Fallout, Washout und radioaktiven Zerfall berechnet, aus denen sich die Inhalations- und Ingestionsgefährdung herleiten läßt.

Während bei Emissionen radioaktiver Aerosole die Inkorporation durch Atmung und Nahrungsaufnahme die kritische Belastungsart darstellt, muß bei Freisetzung radioaktiver Gase die äußere Bestrahlung ermittelt werden. Dabei kann die Strahlenbelastung durch β-Strahlung wegen ihrer geringen Reichweite aus der Aktivitätskonzentration am Ort der exponierten Person berechnet werden. Die Submersionsdosis für γ-Strahlung ergibt sich durch Integration über die Bestrahlungsbeiträge der Volumenelemente des Halbyraums. In die Rechnung gehen neben der dreidimensionalen Verteilungsfunktion u. a. die Energie, die Halbwertszeit und die Dosiskonstante des freigesetzten Nuklids sowie die Absorption und Streuung der γ-Strahlung in Luft ein. Die Submersionsdosis wurde für ^{41}Ar und für Spaltgasgemische berechnet. Die Verteilungsfunktionen der ausgewerteten Größen wurden in Abhängigkeit von der Quelldistanz in Kurvenscharen und Nomogrammen dargestellt. Eingangsparameter sind Schornsteinhöhe, Diffusionskategorie, Windgeschwindigkeit und die Ablagerungskonstanten für Fallout und Washout. Die graphischen Auswertehilfen erlauben bei Zwischenfällen mit Freisetzung radioaktiver Stoffe in die Atmosphäre schnelle Prognosen über die Ausbreitung der Abluftfahne und die dadurch bedingten Umweltbelastungen.

Bei der Standortwahl kerntechnischer Anlagen, bei der Planung von Schornsteinhöhen und Filtereinrichtungen für Emittenten radioaktiver Abluft, bei der Umgebungsüberwachung unter normalen Betriebsbedingungen und besonders nach Aktivitätsfreisetzungen infolge von Zwischenfällen ist die Kenntnis des Ausbreitungsverhaltens von Abluftfahnen in der Atmosphäre erforderlich.

Auf der Grundlage der Theorie der turbulenten Diffusion[1, 2] wurden daher die Kontamination und Strahlenbelastung in der Umgebung von Emissionsquellen berechnet. Die Ergebnisse wurden in Kurvenscharen und Nomogrammen zusammengestellt, die als Unterlagen für Schornsteingutachten und Sicherheitsberichte dienen und vor allem in Unfallsituationen schnelle Analysen und Prognosen ermöglichen sollen. Ausgehend von der Verteilungsfunktion der Luftaktivität bei Gaussförmiger Ausbreitung momentaner Emissionen (Puffs)

$$C(x,y,z,t) = \frac{Q}{(2\pi)^{3/2}\sigma_x\sigma_y\sigma_z} e^{-(x-ut)^2/2\sigma_x^2} \cdot e^{-y^2/2\sigma_y^2} \cdot \left(e^{-(z-H)^2/2\sigma_z^2} + e^{-(z+H)^2/2\sigma_z^2}\right) \quad (1)$$

(Ci/m³)

Q(Ci) = Aktivität der Abluftwolke,
H(m) = Emissionshöhe (z-Richtung),
u(m/s) = Windgeschwindigkeit (x-Richtung),

$t(s)$ = Transportzeit,
$\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$(m) = von der Quelldistanz x abhängige Ausbreitungsparameter,

wurden die Hauptbeiträge zur Strahlenbelastung berechnet,[3] nämlich

1. Die durch die Kontamination der bodennahen Luft mit radioaktiven Aerosolen bedingte Inhalationsbelastung unter der Ausbreitungsachse

$$I(x, 0, 0) = \frac{Q}{\pi\sigma_y\sigma_z u} e^{-H^2/2\,\sigma_z^2} \quad (\text{Ci s/m}^3), \quad (2)$$

aus der sich durch Multiplikation mit dem Inhalationsdosisfaktor g (rem m³/Ci s) die Dosisbelastung des kritischen Organs ergibt.

2. Die Ingestionsbelastung, die auf Nahrungsmittelkontaminationen infolge Ablagerungen radioaktiver Stoffe auf dem Boden durch trockenen Fallout

$$F(x, 0) = v_g\, I(x, 0, 0) \quad (\text{Ci/m}^2) \quad (3)$$

und durch niederschlagsbedingten Washout

$$W(x, 0) = \Lambda Q/\sqrt{2\pi}\,\sigma_y u \quad (\text{Ci/m}^2) \quad (4)$$

beruht, wobei v_g (m/s) die Falloutkonstante und Λ (s^{-1}) die Washoutkonstante bedeuten.

3. Die äußere Strahlenbelastung durch β-Strahlung aus der unmittelbaren Umgebung der exponierten Person

$$D_\beta\,(x, 0, 0) = 0{,}27\, E_\beta\, I(x, 0, 0)\ (\text{rem}), \quad (5)$$

wobei E_β (MeV) die mittlere β-Energie pro Zerfall ist.

4. Die äußere Strahlenbelastung durch γ-Strahlung aus dem Halbraum

$$D_\gamma\,(d, 0, 0) = I_\gamma \iiint\!\!\iint B \frac{e^{-\mu r}}{r^2} C(x, y, z, t)\, dx\, dy\, dz\, dt\ (\text{R}) \quad (6)$$

mit I_γ (R m²/Ci s) = Dosisleistungskonstante,
μ (m^{-1}) = Absorptionskoeffizient von Luft,
$r = [(d-x)^2 + y^2 + z^2]^{1/2}$ (m) = Abstand des Aufpunkts $(d, 0, 0)$ vom Quellelement (x, y, z),
B = Aufbaufaktor.

Beim Einsetzen von Q ist zu berücksichtigen, daß die Wolkenaktivität infolge von radioaktivem Zerfall, Washout- und Falloutеffekten nach der Transportzeit $t = x/u$ auf den Bruchteil

$$Q/Q_0 = e^{-\lambda\frac{x}{u}} \cdot e^{-\Lambda\frac{x}{u}} \cdot e^{-\frac{v_g}{u}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\int_0^x \frac{1}{\sigma_z} e^{-H^2/2\sigma_z^2}\, dx} \quad (7)$$

der Quellstärke Q_0 zurückgegangen ist.

Hinsichtlich der theoretischen Herleitung dieser die Strahlenbelastungsbeiträge beschreibenden Berechnungen aus den grundlegenden Modellvorstellungen muß auf die Literatur verwiesen werden.[4, 5] Die numerische Auswertung der Gleichungen (2) bis (7) erfolgte unter Verwendung der von Pasquill[6] empfohlenen Ausbreitungsparameter σ_y und σ_z unter Variation der Parameter Quelldistanz, Emissionshöhe, Diffusionskategorie sowie Fallout- und Washoutkonstante. Als Beispiele für die Auswertungsergebnisse werden nachfolgend einige Kurvenscharen und Nomogramme gezeigt.

In Abb. 1 sind die normierten Ausbreitungsfunktionen bei einer Emissionshöhe von 100 m für die verschiedenen Diffusionskategorien A bis F, die durch zunehmende Stabilität der Schichtung charakterisiert sind, dargestellt. Dividiert durch die Windgeschwindigkeit und multipliziert mit der differentiellen oder integralen Quellstärke (Ci/s bzw. Ci) erhält man daraus die Aktivitätskonzentration der bodennahen Luft unter der Ausbreitungsachse (Ci/m³) oder die Inhalationsbelastung (Ci s/m³). Aus der Abbildung ist ersichtlich, daß die Entfernung des Aktivitätsmaximums und in geringerem Maße seine Größe von der Stabilität der Schichtung abhängen. Die Abhängigkeit der Aktivitätskonzentration von der Emissionshöhe bei mäßig stabiler Schichtung (Diffusionskategorie E) ist in Abb. 2 veranschaulicht.

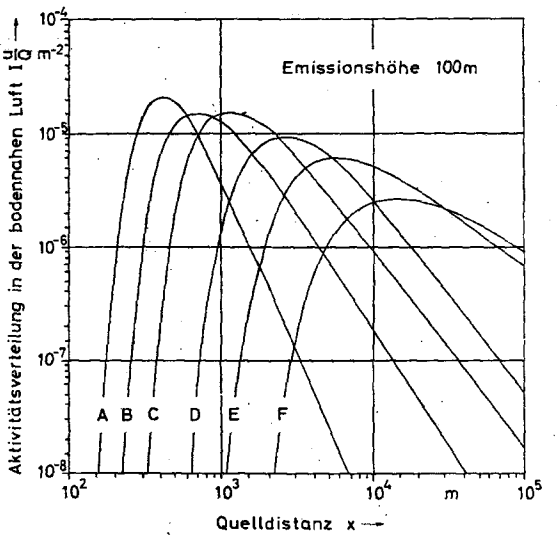

ABB. 1. Auf die Einheit der Emissionsstärke und der Windgeschwindigkeit bezogene Aktivitätskonzentration der bodennahen Luft unter der Ausbreitungsachse in Abhängigkeit von Quelldistanz und Diffusionskategorie bei einer Emissionshöhe von 50 m.

Für einige Nuklide, wie z.B. Radiojod, stellt unter Umständen nicht die Inhalationsbelastung, sondern, bei Ablagerung auf landwirtschaftlich genutzten Flächen, die Ingestionsbelastung als Folge der Kontamination der Nahrungskette die überwiegende Gefährdung dar. Die Ablagerung durch trockenen Fallout ergibt sich durch Multiplikation der bodennahen Aktivitätskonzentration mit der Falloutkonstanten (Werte für v_g werden in der Literatur angegeben [7, 8]). Die Ablagerung durch Niederschläge läßt sich dem in Abb. 3 gezeigten Nomogramm entnehmen. Sie ist nach dem zugrundeliegenden Modell von der Emissionshöhe unabhängig und ergibt sich, ausgehend von der Quelldistanz über die durch die Diffusionskategorie und den Quotienten aus Washoutkonstante und Windgeschwindigkeit gegebenen Hilfslinien. Wenn die von der Niederschlagsintensität, der Tropfengröße und der Partikelgröße des radioaktiven Aerosols abhängige Washoutkonstante [7, 9] nicht genauer bekannt ist, kann näherungsweise der Wert $2{,}5 \cdot 10^{-4}$ s^{-1}, multipliziert mit der Maßzahl der in mm/h gemessenen Niederschlagsintensität verwendet werden. Bei Kenntnis der abgelagerten Nuklide können die vom Boden ausgehende β- und γ-Strahlung und, zusammen mit anderen Parametern, die Nahrungsmittelkontamination und die Ingestionsbelastung abgeschätzt werden.

Die Abnahme der Wolkenaktivität durch Washout und radioaktiven Zerfall während der Transportzeit läßt sich durch einfache Exponentialfunktionen berücksichtigen. Der Korrekturfaktor für das Falloutdefizit wurde aus der letzten Exponentialfunktion in Gl. (7) durch numerische Integration bestimmt. Am Beispiel einer Wetterlage mit mäßig stabiler Schichtung

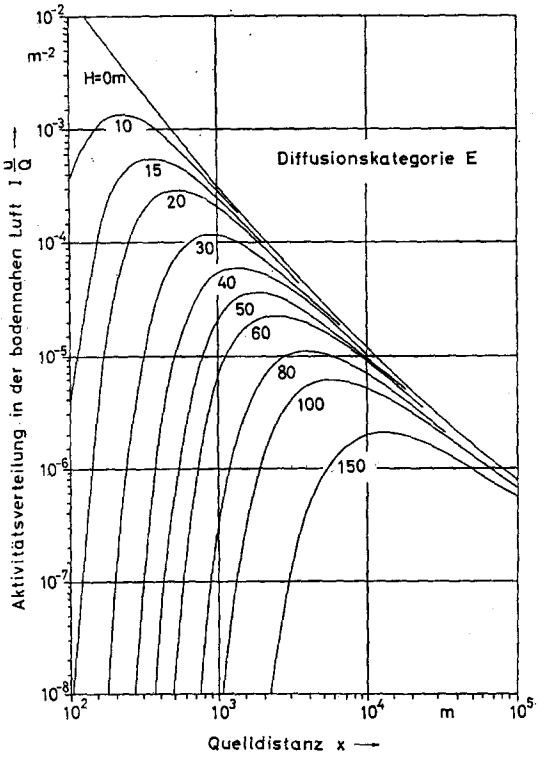

ABB. 2. Auf die Einheit der Emissionsstärke und der Windgeschwindigkeit bezogene Aktivitätskonzentration der bodennahen Luft unter der Ausbreitungsachse in Abhängigkeit von Quelldistanz und Emissionshöhe bei mäßig stabiler Schichtung (Diffusionskategorie *E*).

(Diffusionskategorie E) sind die Ergebnisse in Abb. 4 dargestellt. Ausgehend von der Quelldistanz läßt sich aus dem Nomogramm durch "Spiegelung" an der Emissionshöhe und dem Verhältnis von Falloutkonstante und Windgeschwindigkeit die Aktivitätsabnahme der Wolke ermitteln.

Während die Inkorporationsbelastung durch Inhalation und Ingestion von Radionukliden im allgemeinen bei Aerosolen sowie bei Radiojod überwiegen, spielt die Submersionsdosis durch äußere β- und γ-Strahlung vor allem bei der Emission radioaktiver Edelgase eine Rolle.

Die β-Dosis, der Haut und Augen ausgesetzt sind, ist nach Gl. (5) der Aktivitätskonzentration am Ort der exponierten Person proportional. Von Nukliden mit sehr geringer γ-Emissionswahrscheinlichkeit wie ^{85}Kr abgesehen, kann sie im allgemeinen gegenüber der γ-Dosis vernachlässigt werden.

Bei der Berechnung der γ-Dosis ist nach Gl. (6) über die räumliche Verteilung der Wolkenaktivität unter Berücksichtigung von Absorption, Vielfachstreuung und radioaktivem Zerfall zu integrieren. Im Vergleich zu früheren Autoren [10-13], die vielfach von isotroper Ausbreitung ausgehen und die Ausbreitungsformel von Sutton benutzen, oder Absorption und Aufbaufaktor vernachlässigen, oder sich auf bodennahe Emissionen bzw. bestimmte Energien beschränken (z.B. 0,7 MeV für Spaltproduktgemische), oder relativ grobe Mitteilungen der Verteilungsfunktion zugrunde legen, haben wir die Berechnung im wesentlichen ohne derartige Vernachlässigungen vorgenommen. Allerdings wurde die dreidimensionale numerische Integration nur im mittleren Entfernungsbereich durchgeführt. Für kleine Entfernungen konnte die Verteilung durch eine Linienquelle und für große Entfernungen durch eine homogene Ver-

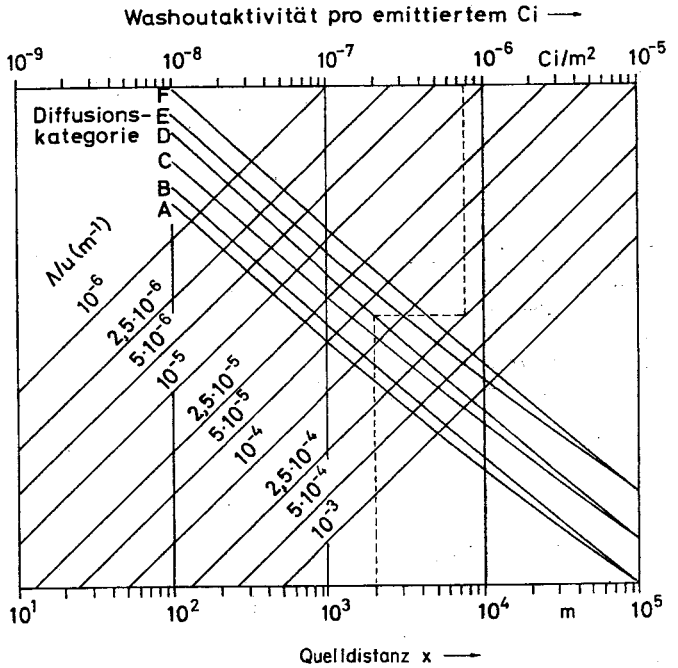

ABB. 3. Auf die Einheit der emittierten Aktivität bezogene Bodenkontamination durch Washout in Abhängigkeit von Quelldistanz, Windgeschwindigkeit, Diffusionskategorie und Washoutkonstante.

teilung angenähert und dadurch die Rechnung vereinfacht werden).*

Entsprechend den wichtigsten Anwendungen wurde die γ-Dosis für ^{41}Ar und für Spaltgas-Emissionshöhe 50 m für verschiedene Diffusionskategorien, die jeweils mit ihrer charakteristischen Windgeschwindigkeit angesetzt wurden, dargestellt.

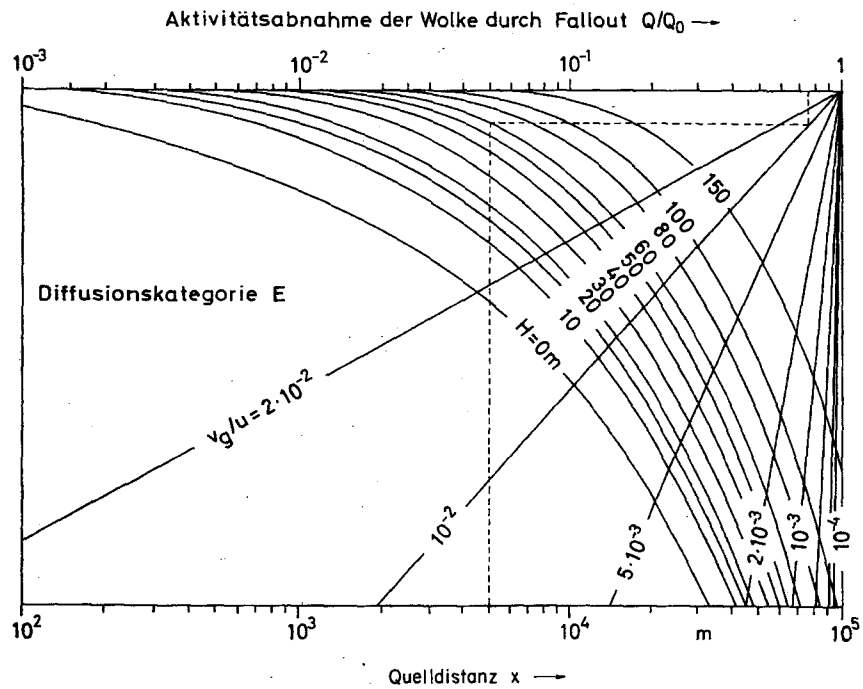

ABB. 4. Abnahme der Wolkenaktivität durch Fallout in Abhängigkeit von Quelldistanz. Windgeschwindigkeit, Emissionshöhe und Falloutkonstante bei mäßig stabiler Schichtung (Diffusionskategorie *E*).

gemische†) berechnet. Als Beispiel zeigt Abb. 5 die γ-Dosis, der eine Person aus der über sie hinwegziehenden Abluftfahne bei einer Emission von 1 Ci ^{41}Ar exponiert wird, in Abhängigkeit von der Emissionshöhe bei neutraler Schichtung (Diffusionskategorie *D*). In Abb. 6 ist, ebenfalls für ^{41}Ar, die γ-Dosis bei der

Außerdem haben wir die Abhängigkeit der γ-Dosis von der Energie zwischen 0,25 und 2 MeV untersucht. Es ergab sich etwas überraschend, daß die auf die Einheit der Dosisleistungskonstante normierte γ-Dosis, trotz der starken Energieabhängigkeit der Absorption und des Aufbaufaktors, nur sehr wenig von der Energie abhängt. Bei der Berechnung der γ-Dosis kann man also für alle Energien von den gleichen Kurvenscharen ausgehen, wobei die Werte nur noch mit der Dosisleistungskonstanten zu multiplizieren sind. Die γ-Dosis hängt damit im wesentlichen in gleicher Weise von der Energie ab wie die Dosisleistungskonstante, d. h., im betrachteten Energiebereich ist die

* Die numerische Auswertung wurde mit einer elektronischen Datenverarbeitungsmaschine vom Typ IBM 7090 beim Deutschen Rechenzentrum Darmstadt durchgeführt. Für die Aufstellung des Programms bin ich meinem Kollegen F. Rohloff zu Dank verpflichtet.

† Es wurde Gleichgewicht der Spaltgase (außer ^{85}Kr) nach längerer Reaktorbetriebszeit angenommen.

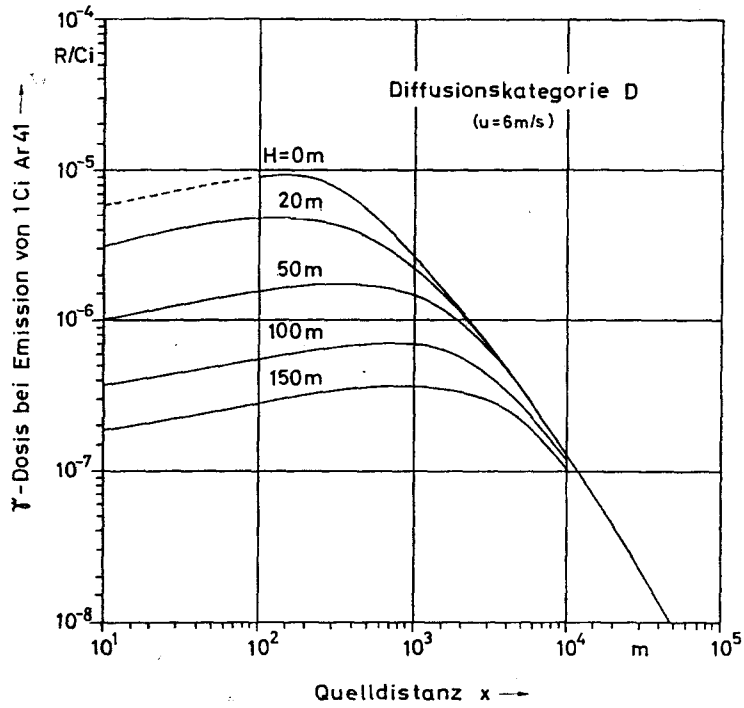

ABB. 5. Auf die Einheit der emittierten Aktivität bezogene Submersions-γ-Dosis bei der Freisetzung von ^{41}Ar in Abhängigkeit von Quelldistanz und Emissionshöhe bei neutraler Schichtung (Diffusionskategorie *D*) und einer Windgeschwindigkeit von 6 m/s.

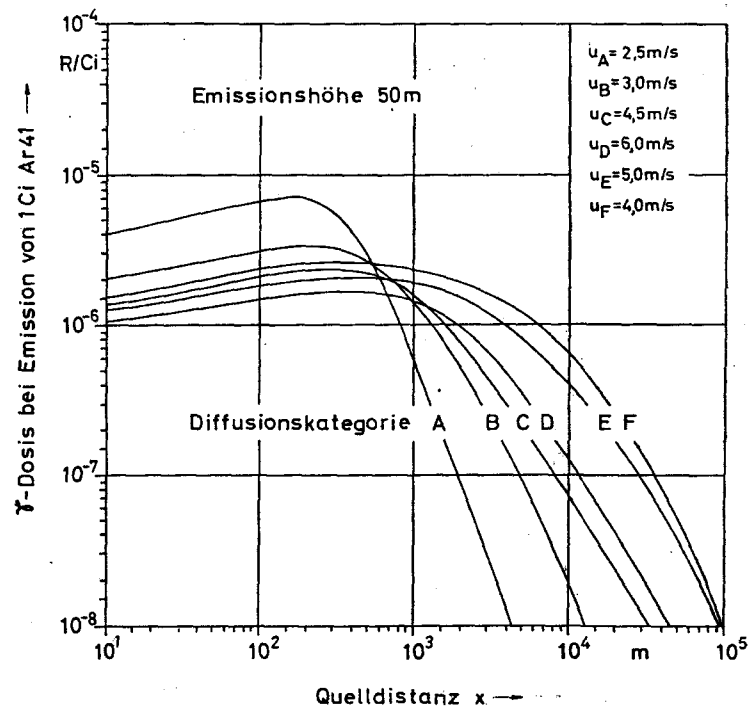

ABB. 6. Auf die Einheit der emittierten Aktivität bezogene Submersions-γ-Dosis bei der Freisetzung von ^{41}Ar in Abhängigkeit von Quelldistanz und Diffusionskategorie bei einer Emissionshöhe von 50 m. (Für jede Diffusionskategorie wurde mit einer charakteristischen Windgeschwindigkeit gerechnet.

γ-Dosis für Nuklide mit gleicher γ-Emissionswahrscheinlichkeit näherungsweise der Energie proportional.

Hinsichtlich näherer Angaben über die physikalischen und meteorologischen Aspekte der Ausbreitung (effektive Schornsteinhöhe,[14] Bestimmung der Diffusionskategorie[15] usw.) sowie über Voraussetzungen und Grenzen bei der Anwendung der Ausbreitungsformeln sei auf die einschlägige Literatur verwiesen.

REFERENZEN

1. O. G. Sutton. *Micrometeorology*, McGraw-Hill, New York, 1953.
2. F. Pasquill. *Atmospheric Diffusion.* Van Nostrand, London, 1962.
3. K. J. Vogt. *Kerntechnik* **8,** 453 (1966).
4. Meteorology and Atomic Energy. AECU (1955).
5. G. Blässer und K. Wirtz. *Nukleonik* **3,** 210 (1961).
6. F. Pasquill. *Met. Mag.* **90,** 33 (1961).
7. A. C. Chamberlain. AERE HP/R 1261 (1953).
8. J. R. Beattie. AHSB (S) R 64 (1963).
9. F. G. May. *Quart. J. Roy. Met. Soc.* **84,** 451 (1958).
10. P. H. Lowry. BNL-81 (1950).
11. I. A. Singer. BNL-292 (1954).
12. J. Z. Holland. *Proc. Internat. Conf. Peaceful uses Atomic Energy* P/572 (1955).
13. M. Tsunokawa und T. Aoki. *J. Atom. Energy Soc. Japan* **5,** 110 (1963).
14. H. Moses, G. H. Strom und J. E. Carson. *Nucl. Saf.* **6,** 1 (1964).
15. G. Polster. *Kerntechnik* **8,** 409 (1966).