

OEFZS--4704

AT 94 000 36

Abscheideverhalten von Jod auf Aktivkohlepapier

K. Mück, B. Schuster

OEFZS--4704

Dezember 1993



Abscheideverhalten von Jod auf Aktivkohlepapier

Arbeitsbericht

Konrad Mück
Barbara Schuster

Hauptabteilung Strahlenschutz
Bereich Lebenswissenschaften



Abscheideverhalten von Jod auf Aktivkohlepapier

K. Mück, B. Schuster

Kurzfassung

Um in der Abluftüberwachung von Anlagen die Messung von Jodisotopen mit niedriger Energie (^{123}J , ^{125}J , ^{129}J) ohne Probenaufbereitung durch direkte gammaspektroskopische Messung durchführen zu können, wurden Abscheide- und Retentionsversuche mit käuflich erhältlichem Aktivkohlepapier von 0,4 mm Dicke durchgeführt. Unter der Voraussetzung, daß kein Methyljodid in der Abluft vorliegt, wie es typischerweise für die Radiopharmakaproduktion, für Spitalsbereiche (Radiopharmakaapplikation) und Verbrennungsanlagen für schwachradioaktive Abfälle gegeben ist, ergibt sich je nach Luftdurchsatz durch die Bypassleitung ein Abscheidegrad von 95,6 % (5,4 m³/h) bis 99,8 % (0,08 m³/h).

Bei einwöchigem Einsatz des Filters werden 0,95 % der ursprünglichen deponierten Aktivität resuspendiert, bei zweiwöchigem Einsatz 1,4 %. Es können somit auch dünne Aktivkohlepapiere mit vergleichsweise geringen Verweilzeiten der Bypassluft im Filter für die Bestimmung der Aktivitätskonzentration in den Emittenten dieser Anlagen optimal verwendet werden.

Abstract

In order to perform the measurement of iodine isotopes with low gamma energies (^{123}J , ^{125}J , ^{129}J) in the exhaust surveillance of plants without sample preparation by direct gammaspectroscopic measurement, a series of deposition and retention experiments with commercially available active charcoal paper of 0,4 mm thickness were performed. In the case of no methyl iodide being present in the exhaust air which may be considered typical for radiopharmaceutical production facilities, for hospitals (utilizers of radiopharmaceuticals) and low level radioactive waste incinerating plants, according to the ventilation rate in the bypass duct a deposition factor of from 95,6 % (5,4 m³/h) to 99,8 % (0,08 m³/h) is observed.

With a one week application of the filter in the bypass duct 0,95 % of the originally deposited activity, with a two week application 1,4 % are resuspended. Thin active charcoal paper filters with comparatively low residence times of the bypass air in the filter, therefore, may be utilized in an optimum way for the determination of the activity concentrations in the exhaust ducts of these facilities.

Abscheideverhalten von Jod auf Aktivkohlepapier

1. Einleitung

Um die Abgabe von radioaktivem Jod in der Abluftleitung von Anlagen zu überwachen, ist bei bestimmten Emittenten neben der üblichen Messung der radiologisch bedeutsamen Nuklide ^{131}J und ^{133}J auch eine Überwachung auf die Jodisotope ^{123}J , ^{125}J und ^{129}J erforderlich. Während an einem Forschungsreaktor im wesentlichen nur mit den ersten beiden Nukliden, eventuell auch mit ^{128}J zu rechnen ist, wird bei der Radiopharmakaproduktion auch mit den Isotopen ^{123}J und ^{125}J umgegangen. Eine Abluftüberwachung auf diese Nuklide wird daher bei der Herstellung von Radiopharmaka wegen der Leichtflüchtigkeit von Jod als notwendig erachtet. ^{129}J ist eigentlich nur in einer Wiederaufarbeitungsanlage in beachtenswerten Konzentrationen zu erwarten und daher bei der Überwachung in einem Forschungszentrum unbedeutend.

Im Bereich der Verbrennungsanlage wird durch organisatorische Maßnahmen (Verbrennen von Abfällen erst nach einer Zwischenlagerzeit von mehr als 6 Monaten) sichergestellt, daß keine kurzlebigen Radionuklide wie ^{123}J , ^{125}J , ^{128}J , ^{131}J oder ^{133}J in die Abluft gelangen können. Da jedoch rein theoretisch die Möglichkeit besteht, daß Abfall vorzeitig verbrannt wird, wenn auch zu einem Zeitpunkt, bei dem Jodisotope mit sehr kurzen Halbwertszeiten (< 3 Tage) wie ^{123}J , ^{128}J und ^{133}J bereits abgeklungen sind, erscheint zumindest eine Abluftüberwachung auf etwas längerlebige Radionuklide wie ^{125}J und ^{131}J erforderlich.

^{123}J und ^{125}J sind ϵ -Einfänger, die nur sehr niederenergetische Gammalinien emittieren. Insbesondere ^{125}J mit einer Energie von 35,0 keV stellt hierbei meßtechnisch ein gewisses Problem dar, da bereits durch geringe Schichten von Aktivkohle eine erhebliche Selbstabschirmung in der Probenschicht auftritt. Eine Verwendung von dünnen Schichten von Aktivkohle ist daher erforderlich, um dieses Nuklid noch gut - ohne wesentliche Meßverluste - messen zu können. Andererseits ergeben sehr dünne Schichten von Aktivkohle geringe Abscheidegrade, insbesondere wenn neben J_2 auch Methyljodid vorliegt.

Sowohl in der Radiopharmakaproduktion als in der Verbrennungsanlage kann Methyljodid oder andere organische Jodverbindungen aber praktisch ausgeschlossen werden, in der Radiopharmaka, weil Methyljodid nicht verwendet oder hantiert wird, in der Verbrennungsanlage, weil nach dem Verbrennen organische Jodverbindungen sicher oxidiert sind. Die Abscheidung sollte unter diesen Umständen erheblich besser als bei Vorhandensein von Methyljodid sein, sodaß bereits bei vergleichsweise dünnen Aktivkohleschichten ein hoher Abscheidegrad erreicht wird.

Der Zweck der vorliegenden Arbeit war daher, den Abscheidegrad von Jod, das in der Radiopharmakaproduktion erzeugt bzw. verarbeitet wird, auf dünnen Aktivkohleschichten zu bestimmen. Dadurch soll die Anwendung von dünnen Aktivkohleschichten (Aktivkohlepapier) für den Jodnachweis in der Radiopharmakaabluft geprüft und durch Verwendung solcher Filterpapiere der Nachweis von Jodisotopen mit niederenergetischen Gammalinien optimiert werden.

2. Meßmethode

Die Messung wurde im Radiopharmakalabor durch Freisetzen von ^{131}J bzw. ^{123}J in einer Handschuhbox durchgeführt. Das freigesetzte Jod wurde aus der Handschuhbox durch Absaugen über einen etwa 30 cm langen Plastikschlauch mittels zweier verschiedener Rotationsschieberpumpen (maximale Pumpleistung 12 m^3/h , jedoch unterschiedliche Kennlinien) bzw. einer Mem-

branpumpe (maximale Pumpleistung 4 m³/h) auf einen vor der Pumpe befindlichen Filtersatz geleitet. Durch den Filterwiderstand bedingt, betrug der tatsächliche Durchfluß während der Messung jedoch 0,082 m³/h, 1,26 m³/h bzw. 5,40 m³/h. Dies war durchaus beabsichtigt, da der Abscheidegrad bei unterschiedlichen, jedoch generell niedrigeren Durchflüssen zu bestimmen war.

Um das Abscheideverhalten in der Aktivkohle, bzw. die Penetrationstiefe und somit die erforderliche Tiefe des Aktivkohlebetts zu bestimmen, wurde in die Meßleitung ein ganzer Filtersatz eingesetzt. In diesem Filtersatz waren nacheinander folgende Filter montiert:

- ein Glasfaserfilter Schleicher&Schüll No.8
- ein Aktivkohlepapierfilter Macherey-Nagel MN 728
- drei 3 mm Aktivkohleschichten
- eine 10 mm Aktivkohleschichte
- eine 20 mm Aktivkohleschichte

Sowohl beim Glasfaserfilter als auch beim Aktivkohlepapier hatte die bestaubte Fläche einen Durchmesser von 47 mm, der durch den Dichtring definiert war. Die Dicke des Aktivkohlepapiers betrug 0,4 mm.

Die Aktivkohleschichten bestanden aus KJ-imprägnierten Aktivkohlestäbchen von etwa 1 mm Ø und durchschnittlich 2 mm Länge hergestellt von AAF. Durch die Verwendung von KJ-imprägnierten Schichten war sichergestellt, daß auch Jodkomponenten, die in reiner Aktivkohle nicht oder nicht ausreichend abgeschieden werden (Methyljodid, HJO) und die Aktivkohlepapier-schicht leicht penetrieren, in der nachfolgenden Aktivkohleschicht sicher erfaßt und nachgewiesen werden. Die einzelnen Aktivkohleschichten waren durch Glasfaserfilter (ebenfalls Sch&Sch No.8) voneinander getrennt, um eine Vermischung zu vermeiden und um sie nach der Bestaubung getrennt voneinander messen zu können.

Der Aufbau des Filtersatzes ist in Abbildung 1 ersichtlich.

Die für den Abscheidegrad bedeutenden Verweilzeiten in den einzelnen Aktivkohleschichten in Abhängigkeit vom Luftdurchsatz sind in Tab. 1 angegeben.

Tabelle 1 Verweilzeiten in den verschiedenen Filterschichten

Filter	Verweilzeit in der Filterschicht [s]		
	bei 0,082 m ³ /h	bei 1,26 m ³ /h	bei 5,40 m ³ /h
Aktivkohlepapierfilter	0,031	0,0020	0,0005
3 mm Aktivkohleschichte	0,21	0,014	0,003
10 mm Aktivkohleschichte	0,70	0,045	0,011
20 mm Aktivkohleschichte	1,40	0,091	0,021

Die auf der jeweiligen Filterschicht deponierte Aktivität wurde mittels Gammaspektroskopie auf einem Ge(Li)-Detektor von 18 % relativer Ansprechwahrscheinlichkeit, der zuvor mit verschiedenen Eichquellen von Amersham kalibriert worden war (1), bestimmt. Die Meßzeiten lagen je nach Aktivität auf der Filterschicht zwischen 100 s (erste Filterschicht) und 50000 s (letzte Schicht). Auch die auf den Glasfaserfiltern zwischen den Aktivkohleschichten deponierte Aktivität wurde gemessen, wenngleich sie auch sehr gering zu erwarten war.

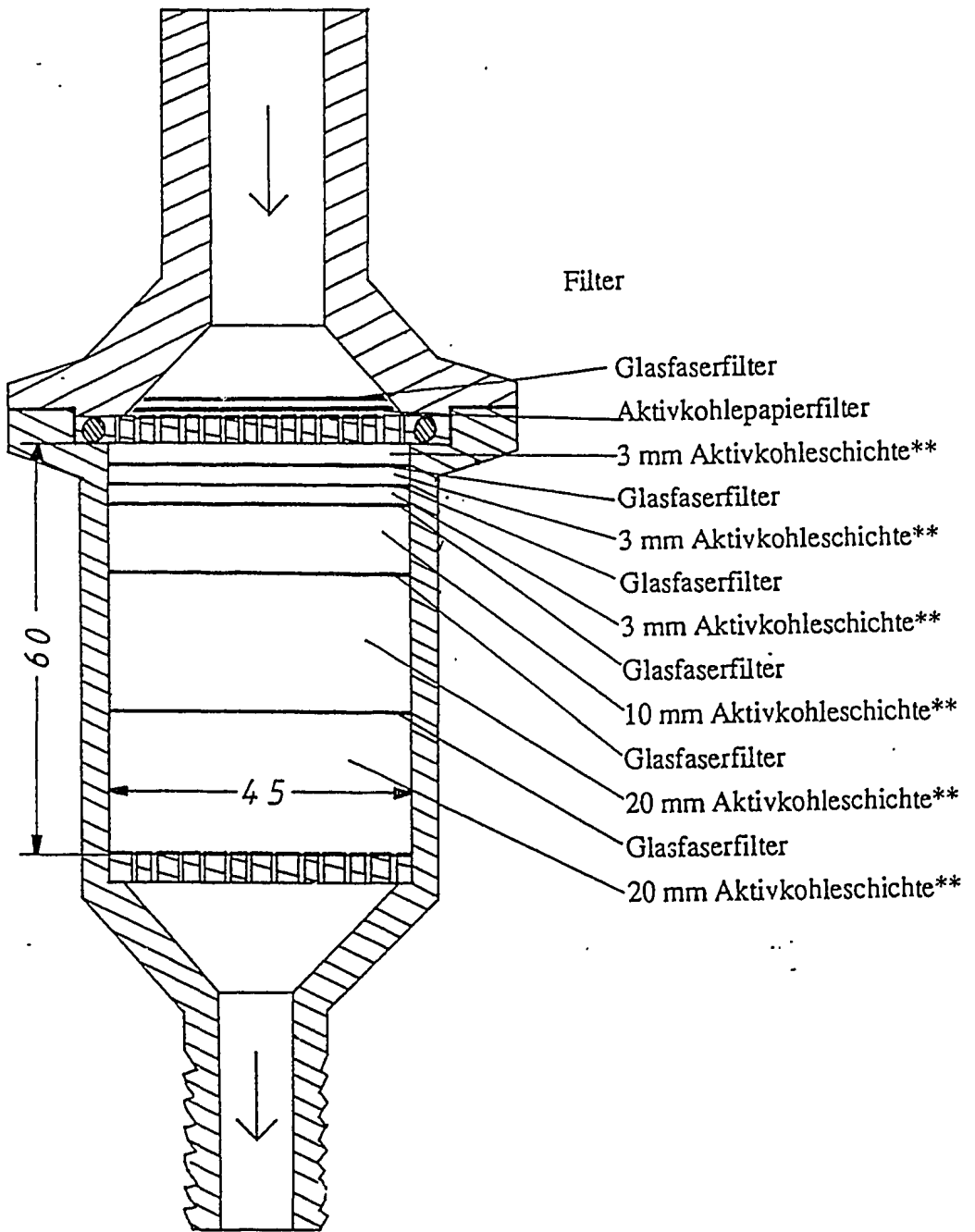


Abb. 1 Anordnung der Filter und Aktivkohleschichten im Filtersatz

Der Luftdurchsatz durch den Filtersatz wurde jeweils mit einem Balgengaszähler der Type ELSTER NB3 bestimmt.

3. Ergebnisse

Das Abscheideverhalten wurde bei verschiedenen Durchflußgeschwindigkeiten getestet, um die Abhängigkeit von der Durchflußrate zu ermitteln. Dabei wurde das Abscheideverhalten nicht aus der freigesetzten Aktivität bzw. der insgesamt angesaugten Aktivität im Verhältnis zu der auf dem jeweiligen Filter abgeschiedenen Aktivität bestimmt, da eine Bestimmung der freigesetzten und auf das Filter gesaugten Aktivität schwierig und zu ungenau ist. Vielmehr erfolgte die Ermittlung des Abscheideverhaltens durch eine Messung der auf den einzelnen Filtern abgeschiedenen Aktivitäten und Bestimmung des relativen Teils der abgeschiedenen Aktivität in jeder Schicht.

Diese Methode birgt grundsätzlich die Gefahr, daß Jodkomponenten, die in der eingesetzten Aktivkohleschicht kaum abgeschieden werden, durch alle folgenden Schichten ebenfalls mit hoher Wahrscheinlichkeit penetrieren und so das Abscheideverhalten des gesamten Blocks und somit auch der einzelnen Schichten überschätzt wird. Dieses Problem gilt jedoch nur dann, wenn die eingesetzten Schichten dünn oder gleichen Filtertyps sind (z.B. gleiche Aktivkohleschichten). Um diesen Effekt zu vermeiden, bestand die letzte oder die letzten Schichten grundsätzlich aus einer oder mehreren vergleichsweise dicken, kaliumjodid-imprägnierten Aktivkohleschichten, die einen besonders hohen Abscheidegrad auch gegenüber schwierig abzuschiedenden Jodkomponenten (Methyljodid bei hoher Feuchtigkeit) besitzen. Dadurch war sichergestellt, daß auch diese Komponenten innerhalb des Filterpacks abgeschieden wurden und so bei der Messung der insgesamt durchgetretenen Jodaktivität nicht verloren gingen.

Der erste Versuch wurde bei einem vergleichsweise niedrigen Luftdurchsatz von $0,082 \text{ m}^3/\text{h}$ durchgeführt, um eine möglichst lange Verweilzeit in der ersten Aktivkohleschicht (Aktivkohlepapierfilter) und damit ein hohes Abscheidevermögen sicherzustellen. Die in den einzelnen Schichten abgeschiedenen Aktivitäten sind in Tab. 2 dargestellt.

Wie ersichtlich, werden 99,8 % der insgesamt durch das Filter gesaugten Aktivität in den beiden ersten Papierfilterschichten, d.i. Glasfaser- und Aktivkohlepapierfilter, abgeschieden. 63,3 % davon werden auf der Aktivkohlepapierschicht, in der die Verweilzeit des Luftstroms $0,03 \text{ s}$ beträgt, zurückgehalten. Weniger als 0,2 % sind in den folgenden Schichten zu finden. Nach einer Bettiefe von 9 mm Aktivkohle (äquivalent einer Verweilzeit von $0,66 \text{ s}$) liegt die noch hindurchpenetrierende Aktivität unter der Nachweisgrenze von $0,004 \%$.

Aus diesen Ergebnissen folgt, daß auch bei einer Abluftüberwachung, die nur aus einem Aerosolfilter besteht, eine Abschätzung der Aktivitätsabgabe möglich ist. Die insgesamt Aktivitätsabgabe liegt etwa 3fach über der mit dem Aerosolfilter gemessenen. Die Auswertung über das Aktivkohlepapierfilter liefert eine bessere Abschätzung, da in diesem Fall fast $2/3$ der Aktivität bereits am Filter gemessen wird. Berücksichtigt man überdies, daß die Aktivkohlepapierschicht auch Jod in aerosolförmiger Form mit hoher Wahrscheinlichkeit abscheidet, so folgt, daß ein Aktivkohlepapierfilter alleine einen ähnlich hohen Abscheidegrad erreichen sollte wie die beiden Papierfilter zusammen.

Tabelle 2 Abscheideverhalten der verschiedenen Filter im Filterpack

Radionuklid: ^{123}J
 Luftdurchsatz: $0,082 \text{ m}^3/\text{h}$
 Bestäubungsdauer: 2 min.

Filter	Aktivität* [Bq]	Anteil an Gesamtaktivität [%]
1. Glasfaserfilter	4200 ± 210	36,5
2. Aktivkohlepapierfilter	7282 ± 360	63,3
3. Glasfaserfilter	$0,80 \pm 0,17$	0,007
4. 3 mm Aktivkohleschicht**	$14,5 \pm 0,8$	0,126
5. Glasfaserfilter	< 1,6	< 0,014
6. 3 mm Aktivkohleschicht**	$3,8 \pm 0,3$	0,033
7. Glasfaserfilter	< 1,7	< 0,015
8. 3 mm Aktivkohleschicht**	$1,28 \pm 0,21$	0,011
9. Glasfaserfilter	< 1,7	< 0,015
10. 10 mm Aktivkohleschicht**	< 0,5	< 0,004
11. Glasfaserfilter	-	-
12. 20 mm Aktivkohleschicht**	-	-
13. 20 mm Aktivkohleschicht**	-	-
Gesamt	11502,4	100

* ^{123}J -Aktivität am Filter zum Entnahmezeitpunkt

** Aktivkohlestäbchen mit durchschnittlich 1 mm \varnothing und 2 mm Länge

Um das Abscheidevermögen bei einem höheren Durchfluß zu ermitteln, wurde der zweite Versuch bei einem Luftdurchsatz von $1,26 \text{ m}^3/\text{h}$ durchgeführt. Die eingesetzte Aktivität lag erheblich niedriger. Da beim vorliegenden Experiment jedoch die relativen Aktivitäten in den einzelnen Schichten zu bestimmen sind, sollte dies das Ergebnis - mit Ausnahme einer Vergrößerung des Fehlers - nicht beeinflussen.

Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 ersichtlich. Auch bei dem höheren Luftdurchsatz durch das Filter ergibt sich ein Abscheidegrad von 99 % in den ersten beiden Papierfiltern. Dies unterscheidet sich nur unwesentlich vom Abscheidegrad im ersten Fall und kann in anbeacht der Meßgenauigkeit des Verfahrens als identisch bezeichnet werden. Im Aktivkohlepapierfilter werden 69 % der gesamten Aktivität abgeschieden. In der folgenden 3 mm Aktivkohleschicht beträgt die abgeschiedene Aktivität nur mehr 0,44 % der Gesamtaktivität.

Es zeigt sich, daß ein Luftdurchsatz in der Bypassleitung von $1,3 \text{ m}^3/\text{h}$ keine nennenswerte Einbuße im Abscheideverhalten und damit in der Nachweiswahrscheinlichkeit von Jodisotopen bringt.

Tabelle 3 Abscheideverhalten der verschiedenen Filter im Filterpack

Radionuklid: ^{131}J
 Luftdurchsatz: $1,26 \text{ m}^3/\text{h}$
 Bestäubungsdauer: 2 min.

Filter	Aktivität* [Bq]	Anteil an Gesamtaktivität [%]
1. Glasfaserfilter	$151 \pm 7,8$	30,0
2. Aktivkohlepapierfilter	$347 \pm 17,7$	69,0
3. 3 mm Aktivkohleschicht**	$2,23 \pm 0,20$	0,44
4. Glasfaserfilter	$0,12 \pm 0,008$	0,02
5. 3 mm Aktivkohleschicht**	$1,51 \pm 0,09$	0,30
6. Glasfaserfilter	$0,05 \pm 0,008$	0,01
7. 3 mm Aktivkohleschicht**	$0,34 \pm 0,03$	0,07
8. Glasfaserfilter	<0,04	<0,008
9. 10 mm Aktivkohleschicht**	$0,306 \pm 0,024$	0,06
10. Glasfaserfilter	$0,05 \pm 0,03$	0,01
11. 20 mm Aktivkohleschicht**	<0,03	<0,007
12. Glasfaserfilter	<0,04	<0,008
13. 20 mm Aktivkohleschicht**	<0,04	<0,008
Gesamt	502,6	100

* ^{131}J -Aktivität am Filter zum Entnahmezeitpunkt

** Aktivkohlestäbchen mit durchschnittlich 1 mm \varnothing und 2 mm Länge

Ermutig aus diesen Ergebnissen der beiden ersten Versuche, wurde ein Versuch bei einem deutlich höheren Luftdurchsatz von $5,4 \text{ m}^3/\text{h}$, wie er in Abluftüberwachungssystemen mit hohen Abluftraten typisch ist, durchgeführt. Die Verweilzeit des Luftstroms im Aktivkohlepapierfilter bzw. im Glasfaserfilter betrug in diesem Fall nur mehr jeweils $0,0005 \text{ s}$. Dennoch ist noch immer ein sehr hoher Abscheidegrad in beiden Papierfiltern beobachtbar, wie aus Tabelle 4 ersichtlich ist. 64,4 % der Aktivität werden im Aktivkohlepapier und 31,2 % im Glasfaserfilter abgeschieden, zusammen also über 95 %. Nur etwa 4,3 % werden in den folgenden Schichten deponiert und passieren somit ungefiltert das Glasfaser- und das Aktivkohlepapierfilter.

Dieser hohe Abscheidegrad auch bei einem Luftdurchsatz von $5,4 \text{ m}^3/\text{h}$ ermöglicht einen Einsatz des Papierkohlefilters auch in Bypassleitungen, in denen aus Nachweis- oder Repräsentativitätsgründen ein größerer Luftstrom der Abluft genommen werden soll.

Tabelle 4 Abscheideverhalten der verschiedenen Filter im Filterpack

Radionuklid: ^{123}J
 Luftdurchsatz: $5,4 \text{ m}^3/\text{h}$
 Bestaubungsdauer: 2 min.

Filter	Aktivität* [Bq]	Anteil an Gesamtaktivität [%]
1. Glasfaserfilter	2629 ± 134	31,2
2. Aktivkohlepapierfilter	5423 ± 282	64,4
3. 10 mm Aktivkohleschicht**	$314,8 \pm 16,4$	3,74
4. Glasfaserfilter	< 0,5	< 0,005
5. 10 mm Aktivkohleschicht**	$45,1 \pm 2,5$	0,54
6. Glasfaserfilter	< 0,5	< 0,005
7. 40 mm Aktivkohleschicht**	$6,4 \pm 0,5$	0,08
Gesamt	8418	100

* ^{123}J -Aktivität am Filter zum Entnahmezeitpunkt

** Aktivkohlestäbchen mit durchschnittlich 1 mm \varnothing und 2 mm Länge

Tabelle 5 Abscheideverhalten der verschiedenen Filter im Filterpack

Radionuklid: ^{123}J
 Luftdurchsatz: $2,51 \text{ m}^3/\text{h}$
 Bestaubungsdauer: 2 min.

Filter	Aktivität* [Bq]	Anteil an Gesamtaktivität [%]
1. Aktivkohlepapierfilter Nr.1	2042 ± 106	97,80
2. Aktivkohlepapierfilter Nr.2	$10,3 \pm 0,7$	0,49
3. 10 mm Aktivkohleschicht**	$35,12 \pm 1,75$	1,68
4. Glasfaserfilter	< 0,3	< 0,012
5. 10 mm Aktivkohleschicht**	$0,48 \pm 0,01$	0,023
6. Glasfaserfilter	< 0,4	< 0,016
7. 40 mm Aktivkohleschicht**	< 0,3	< 0,012
Gesamt	2087,9	100

* ^{123}J -Aktivität am Filter zum Entnahmezeitpunkt

** Aktivkohlestäbchen mit durchschnittlich 1 mm \varnothing und 2 mm Länge

Um die Nachweiswahrscheinlichkeit für den Fall zu prüfen, daß ausschließlich ein Aktivkohlepapierfilter in der Bypassleitung verwendet wird, wurde ein weiteres Experiment durchgeführt. Der Aufbau des Filterpacks bestand in diesem Fall aus zwei Aktivkohlepapierfilter gefolgt von zwei Aktivkohleschichten à 10 mm und einer Aktivkohleschicht à 40 mm, getrennt jeweils wieder durch ein Glasfaserfilter wie oben. Der Unterschied zum vorhergehenden Experiment bestand somit in dem Ersetzen des ersten Glasfaserfilters durch ein Aktivkohlepapierfilter.

Durch den Einsatz von 2 Aktivkohlepapierfilter ergab sich jedoch ein reduzierter Luftdurchsatz von 2,51 m³/h. Die Bestäubung dauerte wieder 2 min.

Die Ergebnisse sind in Tab. 5 dargestellt. Wie ersichtlich, werden 97,8 % der Aktivität auf dem ersten Aktivkohlepapierfilter abgeschieden. Nur 0,5 % werden auf dem zweiten, nachfolgenden Aktivkohlepapierfilter und 1,7 % auf der nachfolgenden Aktivkohleschicht deponiert.

In allen diesen Tests war die Zeitdauer des Luftdurchsatzes durch das Filter gering (2 min.). Bei einem längerdauernden Einsatz, wie er sich z.B. aus einem wöchentlichen Filtertausch ergibt, besteht jedoch prinzipiell die Möglichkeit, daß die auf der Aktivkohle bereits abgeschiedene Aktivität nachfolgend wieder resuspendiert wird und in der Meßschicht verloren geht. Daraus würde sich ein geringerer scheinbarer Abscheidegrad ergeben, der bei der Berechnung der Aktivitätsabgabe über den überwachten Emittenten zu berücksichtigen ist. Für einen Einsatz bei der Abluftüberwachung war daher das Langzeitresuspensionsverhalten der Aktivkohleschichten zu prüfen.

Um dieses zu untersuchen, wurde der gleiche Filtersatz wie in Tab.5 dargestellt, verwendet. Es wurde zunächst der Filtersatz 2 min. mit etwa 40 kBq ¹³¹I im Radiopharmakalabor bestaubt. Danach wurde die Aktivität auf den einzelnen Filterschichten bestimmt. Die Messzeiten betragen: 100 s für das 1. Aktivkohlepapier, 500 s für das 2. Aktivkohlepapier und 2000 s für die erste 10 mm Aktivkohleschicht. Nach Beendigung der Messungen nach etwa 55 min. wurden die Filter wieder analog der ursprünglichen Position im Filterpack eingesetzt, der Filterpack geschlossen und der Filtersatz wieder bei gleichem Luftdurchsatz, diesmal jedoch mit Inaktivluft, gespült. Diese Spülung wurde nach 24 h, 96 h, 168 h und 336 h (2 Wochen) unterbrochen, die Aktivität analog der ersten Messung auf den verschiedenen Filterschichten bestimmt und hierauf der Satz wieder zusammengebaut und weiter durchspült. Wegen der bereits nur mehr sehr geringen Abscheidung auf der 3. Schicht (1. Aktivkohleschicht) wurde auf eine Messung der folgenden Schichten verzichtet, um den Filterpack möglichst schnell wieder unter Luftspülung zu bekommen. Nur bei der letzten Messung wurde auch die 2. Aktivkohleschicht 10000 s gemessen.

Der Luftdurchsatz war während der Bestäubung etwa gleich hoch wie während der Resuspensionsphase. Er betrug während des gesamten Experimentes durchschnittlich 2,5 m³/h, wobei sich eine geringfügige Abnahme von etwa 2,54 m³/h während der Bestäubung und der ersten Inaktivspülung auf 2,42 m³/h am Ende des Experiments ergab. Dies ist vermutlich durch die Kompaktierung der Aktivkohle während der Bestäubung erklärbar.

Die Meßergebnisse der abgeschiedenen Aktivitäten in den einzelnen Schichten sind in Tab.6 ersichtlich. Dabei ist jedoch zu beachten, daß die angegebenen Fehler jeweils auch systematische und Kalibrationsfehler (Ungenauigkeit der Kalibrierstandards) enthalten. Bei der Berechnung der Fehler der relativen Anteile in den einzelnen Schichten ist zu berücksichtigen, daß systematische und Kalibrationsfehler sich herausheben, da immer in der gleichen Position gemessen

Tabelle 6 Abscheideverhalten der verschiedenen Filter im Filterpack und Retention in den einzelnen Filterschichten bei längerdauerndem Luftdurchsatz

Radionuklid: ^{131}J
 Luftdurchsatz: $2,53 \text{ m}^3/\text{h}$
 Bestäubungsdauer: 2 min.

	^{131}J -Aktivität auf der Filterschicht [Bq] (relativer Anteil der Aktivität in der jeweiligen Schicht [%])				
Zeit nach Bestäubungsende [h]	0	24	96	168	336
Dauer der inaktiven Luftspülung [h]	0	23,067	94,117	165,167	332,217
Luft durch Filtersatz [m^3]	0	57,7	233,4	399,7	780,7
Aktivkohlepapierfilter Nr.1	31680 ± 1100 (99,84 %)	31030 ± 1100 (99,40 %)	30900 ± 1100 (99,26 %)	31710 ± 1100 (98,89 %)	30470 ± 1100 (98,44 %)
Aktivkohlepapierfilter Nr.2	$28,2 \pm 1,0$ (0,09 %)	$57,0 \pm 1,0$ (0,18 %)	$72,8 \pm 3,0$ (0,23 %)	$86,8 \pm 3,5$ (0,27 %)	$109,4 \pm 3,8$ (0,35 %)
10 mm Aktivkohleschicht	$21,4 \pm 1,0$ (0,07 %)	$129,9 \pm 4,6$ (0,42 %)	$158,3 \pm 5,5$ (0,51 %)	$270,4 \pm 9,4$ (0,84 %)	$344,7 \pm 12,1$ (1,11 %)
10 mm Aktivkohleschicht	-	-	-	-	$28,5 \pm 1,0$ (0,09 %)

gemessen wurde. Die Fehler der prozentuellen Angaben sind daher praktisch nur durch den statistischen Fehler der Messung gegeben. Für die erste Messung würden sich so beispielsweise $99,84 \pm 0,34 \%$ für das 1. Aktivkohlepapierfilter, $0,09 \pm 0,005 \%$ für das 2. Aktivkohlepapierfilter und $0,07 \pm 0,002 \%$ für die 1. Aktivkohleschicht ergeben. Wegen dieser geringen Fehler und der geringen Unterschiede bei den verschiedenen Messungen wurde auf eine detaillierte Angabe der Fehler bei den prozentuellen Werten in Tab.6 verzichtet.

Die Ergebnisse zeigen, daß im Laufe der Zeit zwar eine gewisse Verlagerung der deponierten Aktivität in tiefere Schichten erfolgt, daß diese Verlagerung jedoch sehr gering ist. Nach 24 Std. wurden 0,4 % der auf dem 1. Filter abgeschiedenen Aktivität in eine der folgenden Schichten verlagert. Nach einer Woche kontinuierlicher Inaktivspülung waren es 0,95 %. Auch nach diesem Zeitraum betrug die am 1. Filter befindliche Aktivität 98,9 % der insgesamt durchgesaugten Aktivität, was als ausreichend hoch bezeichnet werden kann, um das Aktivkohlepapier als Nachweismittel bei der Abluftüberwachung einzusetzen.

Nach 2 Wochen Einsatz werden noch 98,4 % der insgesamten Aktivität am 1. Filter nachgewiesen. In der zweiten Woche inaktiver Luftspülung waren somit nur 0,4 % der Aktivität aus dem Aktivkohlepapierfilter (1.Filter) resuspendiert worden. Insgesamt waren 1,4 % der ursprünglich auf dem ersten Filter abgeschiedenen Aktivität resuspendiert und in eine nachfolgende Schicht verlagert worden. Ein Einsatz des Aktivkohlepapiers ist daher auch bei einem Überwachungszeitraum von 2 Wochen möglich und sinnvoll.

4. Schlußfolgerung

Aus den Meßergebnissen folgt, daß sich bei Durchflußraten von $< 6 \text{ m}^3/\text{h}$ ein genügend hoher Abscheidegrad auf kommerziell erhältlichen Aktivkohlepapierfiltern mit 0,4 mm Dicke ergibt, um diese Filter in der Abluftüberwachung von Anlagen, bei denen das Vorhandensein von Methyljodid ausgeschlossen werden kann, einzusetzen. Dadurch ergibt sich die Möglichkeit, ohne Probenaufbereitung des Filters eventuell vorhandenes ^{125}J direkt auf einem Halbleiterdetektor nachzuweisen, da die Selbstabschirmung der niederenergetischen Gammaquanten dieses Nuklids (27,20 keV, 27,47 keV, 31,00 keV, und 35,46 keV) bei diesen Schichttiefen gering ist. Auch ein Nachweis von ^{129}J (29,46 keV, 29,78 keV, 33,60 keV, und 39,58 keV) ist somit möglich. Obwohl dieses Nuklid nirgends im Forschungszentrum, auch nicht in der Verbrennungsanlage zu erwarten ist, kann auf diese Weise auch meßtechnisch der Nachweis gebracht werden.

Das untersuchte Aktivkohlepapier zeigte auch bei längerem Einsatz ein geringes Resuspensionsverhalten. Nach einwöchigem Einsatz bei einer Luftspülung analog einer Abluftbypaßleitung ergab sich eine Resuspension von 0,95 %, nach 2 Wochen Standzeit eine von 1,3 %. Diese Werte sind genügend gering, um sie bei der Ermittlung der insgesamt abgegebenen Aktivität aus der gemessenen Filteraktivität ohne signifikanten Fehler in bezug auf das Gesamtergebnis zu berücksichtigen.

Danksagung

Für die Unterstützung bei der Exposition der Filterpacks im Radiopharmakalabor wird Herrn Buchheit, für die Durchführung der Experimente und die Betreuung der Messungen Fr. Anna Jagschitz herzlichst gedankt.

Literatur

- 1) Mück K.: Kalibration verschiedener Positionen am Ge(Li)-Detektor, REX-158 (1986)
- 2) Wilhelm J.G.: Testing Iodine Filters for Nuclear Installations, in "Treatment of airborne radioactive wastes", STI/PUB/195, SM-110/60 (1968)

Als Manuskript vervielfältigt.

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor.

OEFZS-Berichte

ISSN 0253-5270

Herausgeber, Verleger, Redaktion, Hersteller:

Österreichisches Forschungszentrum Seibersdorf Ges.m.b.H.

A-2444 Seibersdorf, Austria

Telefon 02254-780-0, Fax 02254-74060, Telex 14-353



S E I B E R S D O R F