

**Verfahren zur kontinuierlichen
gammaskopmetrischen Bestimmung der
Aktivitätskonzentration von
aerosolpartikelgetragenen Radionukliden
in der bodennahen Luft
– Filterbandverfahren –**

A- γ -SPEKT-AEROS-02

Bearbeiter:

W. Kiesewetter

H. Diedrich

W. Dyck

T. Steinkopff

H. Ulbricht

Leitstelle für Luft und Niederschlag

3 Verfahren zur kontinuierlichen gammaskopmetrischen Bestimmung der Aktivitätskonzentration von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden in der bodennahen Luft – Filterbandverfahren

1 Anwendbarkeit

Das Verfahren ist zur schnellen, kontinuierlichen Bestimmung der Aktivitätskonzentration aerosolpartikelgetragener gammastrahlender Radionuklide in der bodennahen Luft geeignet. Die Probenentnahme der aerosolpartikelgetragenen Radionuklide und die gammaskopmetrische Messung der Aktivitäten erfolgen gleichzeitig. Das Verfahren wird an den Messstellen des Deutschen Wetterdienstes (DWD) gemäß den Vorgaben der AVV-IMIS (1) eingesetzt. Das Verfahren ist insbesondere für Radionuklide geeignet, deren Halbwertszeit mindestens um den Faktor 5 größer als die jeweilige Messzeit ist. Kurzlebige Radionuklide lassen sich bei Verwendung entsprechender Korrekturfaktoren ebenfalls bestimmen.

2 Probenentnahme

Die Probenentnahme der Aerosolpartikeln und die Messung der Aktivität auf dem Filter erfolgen gleichzeitig. Die Probeentnahmeeinrichtung besteht aus einer Ansaugleitung mit einer Filterband-Transporteinrichtung, einer Bestäubungseinheit, einer Pumpe sowie einem Glasfaserfilterband. Das Ansaugrohr und andere luftführende Teile sind so konzipiert, dass Ablagerungen an den Wänden, zum Beispiel durch elektrostatische Wirkungen oder Impaktion, weitgehend vermieden werden. Die Probenentnahmeleitung soll so kurz wie möglich und möglichst krümmungsfrei sein. Ein Insektenschutz mit einer Maschenweite von mindestens 5 mm ist vorzusehen (siehe Verfahren A- γ -SPEKT-AEROS-01).

Beim DWD wird ein Probenentnahmesystem mit einem geregelten Seitenkanalgebläse und einem einstellbaren Luftvolumenstrom von ca. $10 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ eingesetzt. Dieser wird kontinuierlich gemessen. Zusätzlich kann ein beheizbarer Ansaugkopf installiert werden, wobei die Eintrittsgeschwindigkeit zu optimieren ist. Die Abscheidung der Aerosolpartikeln erfolgt auf einem Glasfaserfilterband, Klasse S nach DIN 25184 (2) oder besser als Klasse H 12 nach DIN EN 1822 (3). Die kreisförmige Bestäubungsfläche hat einen Durchmesser von 5 cm.

Nach Ablauf der wählbaren Bestäubungs- und Messdauer erfolgt der Weitertransport des Filterbands, so dass die Bestäubungsfläche nicht mehr im Erfassungsbereich des Detektors liegt.

3 Analytik

3.1 Probenvorbereitung

Es ist keine Probenvorbereitung erforderlich.

3.2 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist bei dem hier beschriebenen Verfahren nicht notwendig.

4 Messung der Aktivität

4.1 Prinzip der Methode

Die Messung der Aktivitäten der gammastrahlenden Radionuklide erfolgt während der Probenentnahme mittels hoch auflösender Gammaskpektrometrie. Grundlagen und Hinweise dazu finden sich in Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen. Die nuklidspezifische Auswertung kann während der Messung erfolgen, im Allgemeinen am Ende der vorgegebenen Messdauer. Abbildung 1 zeigt das Prinzip der Filteranordnung der nuklidspezifisch messenden Schrittfilteranlage. Es wird ein Reinstgermanium-Detektor (p-type) mit einem relativen Ansprechvermögen von 15 % bezogen auf einen 3" \times 3" NaI(Tl)-Kristall eingesetzt. Der Detektor ist mit einer Bleiabschirmung von 50 mm Dicke umgeben.

4.2 Kalibrierung

Die Kalibrierung der hier beschriebenen Filterbandanlage wird in einem zweistufigen Verfahren vorgenommen. In einem ersten Schritt wird mittels eines Mischaktivitätsnormals aus Ba-133, Eu-152 und Cs-137 (je 15 kBq) in einem Abstand von 20 bis 30 cm das energieabhängige Nachweisvermögen bestimmt. In dieser Geometrie können Summationskorrekturen für die Zerfälle von Eu-152 und Ba-133 vernachlässigt werden. Mit dieser Messung wird auch die Energiekalibrierung durchgeführt. In einem zweiten Schritt wird mit einem Cs-137-Flächenpräparat (3 kBq) in der Größe der Bestäubungsfläche das Nachweisvermögen für Cs-137 bei der gegebenen Messgeometrie bestimmt. Das Verhältnis der Nachweisvermögen für Cs-137 aus dem zweiten und dem ersten Schritt ergibt einen Umrechnungsfaktor. Mithilfe dieses Umrechnungsfaktors werden die Werte der energieabhängigen Nachweisvermögen für die gegebene Messgeometrie berechnet.

Während der Messungen wird kontinuierlich die Energiekalibrierung durch Vergleich mit der Gammastrahlung eines systemintegrierten K-40 Strahlers überprüft.

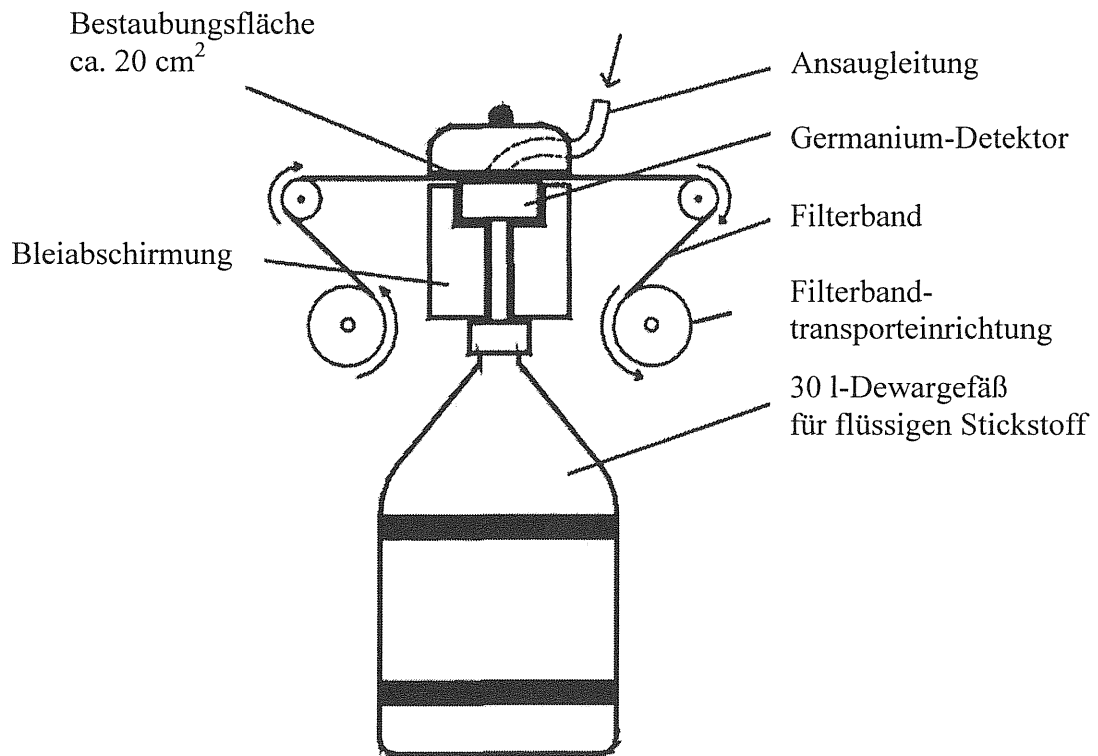


Abb. 1: Prinzip der nuklidspezifisch-messenden Schrittfilteranlage

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Berechnung der Aktivitätskonzentrationen erfolgt nach Gleichung (1). Eine Herleitung dieser Gleichung wird im Anhang dieser Messanleitungen gegeben.

$$c_r = \frac{R_n}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \eta_y \cdot \dot{V} \cdot t_m} \cdot f_1 \cdot f_2 \quad (1)$$

$$f_2 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - \frac{1}{\lambda_r \cdot t_m} \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})} \quad (2)$$

Für Radionuklide mit fünfmal höheren Halbwertszeiten als die jeweilige Messdauer, geht der Wert des Korrekturfaktors f_2 gegen 2. Für Radionuklide mit deutlich kürzeren Halbwertszeiten als die Messdauer muss der Korrekturfaktor f_2 nach Gleichung (2) berechnet werden.

In den Gleichungen (1) und (2) bedeuten:

- c_r Aktivitätskonzentration des Radionuklides r in der Luft in Bq · m⁻³
- λ_r Zerfallskonstante des Radionuklides r in s⁻¹
- R_n Nettozählrate im Linienbereich b in s⁻¹
- ϵ_r Nachweisvermögen für das Radionuklid r im Linienbereich b in Bq⁻¹ · s⁻¹

p_γ	Emissionswahrscheinlichkeit für Gammastrahlung pro Kernumwandlung für das Radionuklid r Volumenstrom in $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
η_y	Rückhaltegrad des Schwebstofffilters
t_m	Messdauer in s
f_1	Summationskorrektionsfaktor
f_2	Korrektionsfaktor gemäß Gleichung (2)

Die Standardabweichung $s(c_r)$ der Aktivitätskonzentration des Radionuklids r wird nach Gleichung (3) berechnet.

$$s(c_r) = \frac{f_1 \cdot f_2}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \eta_y \cdot \dot{V} \cdot t_m} \sqrt{\frac{R_n}{t_m} + \frac{b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right)} \quad (3)$$

mit

b	Fußbreite der Gamma-Linie in Kanälen
E_γ	Energie der Gammastrahlung
$\bar{R}_0(E_\gamma)$	Mittlere Zählrate des Nulleffektes pro Kanal in der Linie der Energie E_γ in s^{-1}
L	Anzahl der Kanäle für die Untergrundermittlung

5.2 Rechenbeispiel

In diesem Beispiel wird die Aktivitätskonzentration von Cs-137 in der bodennahen Luft berechnet. Dabei wird eine natürliche Aktivität der kurzlebigen Radonfolgeprodukte Bi-214 und Pb-214 von ca. $4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ zugrunde gelegt, die im Linienbereich von Cs-137 eine Nulleffektzählrate von $0,023 \text{ s}^{-1}$ verursacht.

$$\bar{R}_0(E_\gamma)$$

Folgende Zahlenwerte liegen vor:

R_0	= $0,023 \text{ s}^{-1}$
R_b	= $0,055 \text{ s}^{-1}$
R_n	= $0,032 \text{ s}^{-1}$
ε	= $0,017 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
p_γ	= $0,851$
\dot{V}	= $0,0031 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
b	= 8
$\bar{R}_0(E_\gamma)$	= $0,00287 \text{ s}^{-1}$
E_γ	= 662 keV
L	= 4 Kanäle
η_y	= $1,0$
t_m	= 14400 s
λ	= $7,26 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$
f_1	= 1
f_2	= 2

Der Wert der Aktivitätskonzentration von Cs-137 beträgt nach Gleichung (1):

$$c_{\text{Cs-137}} = \frac{0,032}{0,017 \cdot 0,851 \cdot 1,0 \cdot 0,0031 \cdot 14400} \cdot 1 \cdot 2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

$$c_{\text{Cs-137}} = 0,099 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Der Wert der Standardabweichung der Aktivitätskonzentration $s(c_r)$ beträgt nach Gleichung (3):

$$s(c_{\text{Cs-137}}) = \frac{1 \cdot 2}{0,017 \cdot 0,851 \cdot 1,0 \cdot 0,0031 \cdot 14400} \cdot \sqrt{\frac{0,032}{14400} + \frac{8 \cdot 0,00287}{14400} \cdot \left(1 + \frac{8}{2 \cdot 4}\right)} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

$$s(c_{\text{Cs-137}}) = 7,2 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Als Ergebnis erhält man folgenden Wert der Cs-137-Aktivitätskonzentration:

$$c_{\text{Cs-137}} = (9,9 \pm 0,7) \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Fehlerbetrachtung

Zur Abschätzung der Unsicherheit wird Gleichung (3) betrachtet. Bei erhöhter natürlicher Aktivität resultiert ein erhöhter Untergrund, womit auch eine Erhöhung der Gesamtunsicherheit verbunden ist. Weitere Beiträge resultieren aus den Standardabweichungen der Mischaktivitätsnormale, die für das zweistufige Kalibrierverfahren eingesetzt werden. Bei der Volumenstrommessung treten Messunsicherheiten von ca. 2 bis 3 % auf. Die Gesamtunsicherheit des Verfahrens beträgt ca. 10 %.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze g für die Aktivitätskonzentration wird in Anlehnung an Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen nach Gleichung (4) berechnet.

$$g = \frac{(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot f_1 \cdot f_2}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \eta \cdot t_m} \cdot \sqrt{\frac{b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right)} \quad (4)$$

mit

$k_{1-\alpha}$ Quantil der Standard-Normalverteilung

$k_{1-\beta}$ Quantil der Standard-Normalverteilung

6.2 Rechenbeispiel

Für die Berechnung der Nachweisgrenze von Cs-137 werden die im Abschnitt 5.1 aufgeführten Zahlenwerte eingesetzt.

Mit den Quantilen der Standard-Normalverteilung $k_{1-\alpha} = 1,645$ und $k_{1-\beta} = 1,645$ erhält man:

$$g = \frac{3,29 \cdot 1 \cdot 2}{0,017 \cdot 0,851 \cdot 1,0 \cdot 0,0031 \cdot 14400} \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 8 \cdot 0,00287}{14400}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$
$$g = 1,82 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Für den Wert der Nachweisgrenze von Cs-137 erhält man unter diesen Bedingungen einen Wert von $1,8 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Flüssiger Stickstoff

Mischaktivitätsnormal aus Eu-152, Ba-133, Cs-137 und Aktivitätsnormal Cs-137

(aktive Fläche mit einem Durchmesser von 5 cm)

Glasfaserfilterband (Klasse S gemäß DIN 24184 oder besser als Klasse H12 gemäß DIN EN 1822-1)

7.2 Geräte

Nuklidspezifisch messende Schrittfilteranlage

Literatur

- (1) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS), Bundesanzeiger 47, Nummer 200 a vom 24. Oktober 1995
- (2) Norm DIN 24184 Typprüfung von Schwebstofffiltern. 1990-12
- (3) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA). 1998-07
- (4) Hornung-Lauxmann, L.: Persönliche Mitteilung 1999

ANHANG:**Herleitung der Gleichung (1) zur Berechnung der Aktivitätskonzentration**

Die zeitliche Entwicklung der Anzahl der Atome eines gammastrahlenden Radionuklids r auf dem Filter während der Beaufschlagung (ohne Berücksichtigung der Aktivitätszufuhr durch ein Mutterradionuklid) wird durch die folgende inhomogene Differentialgleichung (A1) beschrieben:

$$\frac{dn_r(t)}{dt} = -\lambda_r \cdot n_r(t) + \dot{V} \cdot C_r \cdot \eta_Y \quad (\text{A1})$$

Hier und in den folgenden Gleichungen bedeuten:

- $n_r(t)$ Anzahl der Atome des Radionuklids r auf dem Filter
- c_r Konzentration der Atome des Radionuklids r in der Luft in m^{-3}
- λ_r Zerfallskonstante des Radionuklids r in s^{-1}
- $A_r(t)$ Aktivität des Radionuklids r auf dem Filter zum Zeitpunkt t in Bq
- R_b Bruttozählrate im Linienbereich b in s^{-1}
- R_0 Nulleffektzählrate im Linienbereich b in s^{-1}
- R_n Nettozählrate im Linienbereich b in s^{-1}
- ε_r Nachweisvermögen für das Radionuklid r im Linienbereich b in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
- p_γ Emissionswahrscheinlichkeit für Gamma-Strahlung des Radionuklids r
- \dot{V} Volumenstrom in $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
- η_Y Filtrerrückhaltegrad
- A_r Aktivität des Radionuklids r auf dem Filter in Bq
- t_m Messdauer in s
- c_r Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$

Aus der allgemeinen Lösung von Gleichung (A1) und unter der Annahme einer konstanten Konzentration der Atome des Radionuklids r in der Luft ergibt sich für die Aktivität als Funktion der Zeit gemäß Gleichung (A2):

Unter der Randbedingung, dass das Filter zu Beginn der Messung aktivitätsfrei ist, ergibt sich aus Gleichung (A2) die Gleichung (A3):

Unter der Voraussetzung, dass die Sammeldauer t_b gleich der Messdauer t_m ist, folgt für die

$$A_r(t) = \lambda_r \cdot n(t) = \dot{V} \cdot C_r \cdot \eta_Y \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t}) + \lambda_r \cdot n_r(0) \cdot e^{-\lambda_r \cdot t} \quad (\text{A2})$$

$$A_r(t) = \lambda_r \cdot n_r(t) = \dot{V} \cdot C_r \cdot \eta_Y \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t}) \quad (\text{A3})$$

über die Messdauer gemittelte Aktivität \bar{A}_r gemäß Gleichung (A4):

$$\bar{A}_r = \frac{1}{t_m} \cdot \int_0^{t_m} A_r(t) dt = \frac{\dot{V} \cdot C_r \cdot \eta_Y}{t_m} \cdot \left[t_m - \frac{1}{\lambda_r} \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}) \right] \quad (\text{A4})$$

Die Gleichung (A4) wird nach C_r aufgelöst und mit λ_r multipliziert, um die Aktivitätskonzentration c_r in der Luft gemäß Gleichung (A5) zu erhalten:

$$c_r = \lambda_r \cdot C_r = \frac{\bar{A}_r \cdot \lambda_r \cdot t_m}{\dot{V} \cdot \eta_Y} \cdot \frac{1}{t_m - \frac{1}{\lambda_r \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})}} \quad (\text{A5})$$

\bar{A}_r wird durch die Nettozählrate R_n gemäß Gleichung (A6) ausgedrückt:

$$\bar{A}_r = \frac{R_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma} \quad (\text{A6})$$

Daraus resultiert Gleichung (A7):

$$c_r = \lambda_r \cdot C_r = \frac{R_n \cdot \lambda_r \cdot t_m}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \dot{V} \cdot \eta_Y} \cdot \frac{1}{t_m - \frac{1}{\lambda_r} \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})} \quad (\text{A7})$$

Schließlich wird der Wert der Aktivitätskonzentration c_r nach Gleichung (A8) berechnet:

$$c_r = \lambda_r \cdot C_r = \frac{R_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \dot{V} \cdot \eta_Y \cdot t_m} \cdot \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - \frac{1}{\lambda_r \cdot t_m} \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})} \quad (\text{A8})$$

Der Korrektionsfaktor f_2 berücksichtigt den Zerfall der Radionuklide während der Probenentnahme und damit auch während der Messung. Der Wert von f_2 geht gegen 2, wenn die Halbwertszeit mindestens fünfmal höher als die Messdauer ist.

$$c_r = \frac{R_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot \eta_Y \cdot \dot{V} \cdot t_m} \cdot f_2$$

mit

$$f_2 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - \frac{1}{\lambda_r \cdot t_m} \cdot (1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})} \quad (\text{A9})$$