

**Verfahren zur Bestimmung
von Radionukliden
an der Oberfläche von Hausmülldeponien
mittels In-Situ-Gammaspektrometrie**

H-IS-SPEKT-RESAB-01

Bearbeiter:

Th. Bünger

I. Gans

D. Obrikat

H. Rühle

H. Viertel

Leitstelle für Trinkwasser, Grundwasser, Abwasser, Klärschlamm,
Reststoffe und Abfälle, Abwasser aus kerntechnischen Anlagen

ISSN 1865-8725

Version September 1992

Messanleitungen für die „Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“

2 Verfahren zur Bestimmung von Radionukliden an der Oberfläche von Hausmülldeponien mittels In-situ-Gammaspektrometrie

1 Anwendbarkeit

Die radioaktive Kontamination von Hausmülldeponien, deren Oberfläche bereits verfestigt, jedoch noch nicht mit Humusboden abgedeckt ist, kann durch folgenden Kontaminationszustände charakterisiert werden:

1.1

Die Deponie ist an der Oberfläche durch frischen Fallout kontaminiert, wobei die Aktivitätskonzentration im Innern der Deponie gegenüber der Konzentration an der Oberfläche vernachlässigt werden kann. Die Radioaktivität dringt in die «offene» Deponieoberfläche ein, so daß die Abnahme der Aktivitätskonzentration $c(z)$ mit zunehmender Tiefe z in grober Näherung durch folgende Exponentialfunktion beschrieben werden kann.

$$c(z) = c_0 \cdot e^{-\alpha z} \quad (1)$$

Hierin bedeuten:

c_0 : Aktivitätskonzentration an der Deponieoberfläche in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$

$1/\alpha$: Relaxationslänge in cm

Bei einer frischen radioaktiven Kontamination einer Grasfläche durch trockene Deposition muß von einer Relaxationslänge $1/\alpha = 0,3 \text{ cm}$ und bei feuchter Deposition von $1/\alpha = 1 \text{ cm}$ ausgegangen werden. Auf Grund der trotz Verdichtung relativ offenen Oberflächenstruktur einer Hausmülldeponie wird die Aktivität rasch in größere Tiefen transportiert, so daß $1/\alpha = 1$ und 3 cm für trockene bzw. feuchte Deposition angenommen werden muß. Die Dichte an der Oberfläche beträgt bei mittlerer Verdichtung $\rho = 0,8 \text{ cm}^3$.

1.2

Die spezifische Aktivität ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) des deponierten Hausmülls ist annähernd konstant, d. h. unabhängig vom Ort und der Tiefe z , wenn über eine größere Masse (z. B. $> 1000 \text{ kg}$) gemittelt wird.

1.3

Die Aktivitätskonzentration an der Oberfläche und im oberflächennahen Bereich der Deponie ist sowohl klein- als auch weiträumig so stark inhomogen, daß die In-situ- γ -Spektrometrie an verschiedenen Stellen der Deponie Meßwerte liefert, die sich um mehr als 100% voneinander unterscheiden. In diesem Fall ist die quantitative Aktivitätsbestimmung von Radionukliden an der Deponieoberfläche nur durch die zeitaufwen-

dige Methode der Probeentnahme mit anschließender γ -spektrometrischer Laboranalyse möglich.

Im Fall einer exponentiellen (Punkt 1.1) oder einer annähernd homogenen Tiefenverteilung (Punkt 1.2) ist die geeignetste Methode zur schnellen Abschätzung der Flächenaktivität ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$) und der spezifischen Aktivität ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$) an der Deponieoberfläche die Direktmessung durch In-situ-Gammaspektrometrie. Gegenüber der aus Probeentnahme und Labormessung bestehenden klassischen Methode ergeben sich folgende Vorteile:

1. Eine grobe Abschätzung der Kontamination ist bereits während der Messung nach einer Meßzeit von einigen Minuten möglich.
2. Die Meßergebnisse stehen unmittelbar nach der Messung und Auswertung am Meßort zur Verfügung.
3. Die Aktivitätswerte weisen eine bessere Repräsentativität gegenüber der Laboranalyse einer einzelnen Stichprobe auf, da eine größere Probemenge zur Messung gebracht wird.
4. Die zur Erzielung einer guten Repräsentativität erforderliche Entnahme einer Vielzahl von Proben, der Probentransport und die Probenaufbereitung entfallen.
5. Die Meßzeit verkürzt sich gegenüber der Labormessung auf 30 bis 50 %, wenn eine 0,3- bis 1-l-Meßgeometrie verwendet wird. Bei Einsatz eines Ringbechers sind die Meßzeiten beider Methoden etwa gleich.

Diese Vorteile der schnellen Verfügbarkeit der Meßergebnisse sind mit folgenden Nachteilen verbunden:

1. Ein Gesamtfehler der Methode von $< \pm 25\%$ wird nur dann erreicht, wenn
 - die auszumessende Fläche (Umkreis von ca. 15 m um den Detektor) eben, ohne starke Oberflächenrauigkeit und frei von Hindernissen ist sowie
 - die Flächenaktivität bzw. spezifische Aktivität im Bereich der «Sichtweite» des Detektors konstant und folgende Größen bekannt sind:
 - Tiefenverteilung der Aktivitätskonzentration
 - mittlere Dichte bzw. Feuchtigkeitsgehalt des Deponiematerials
2. Der Gesamtfehler der Methode kann Werte von $+100\% / -50\%$ erreichen oder überschreiten, wenn die für das Berechnungsverfahren erforderlichen Modellparameter nur annähernd bekannt sind und deshalb nur grob abgeschätzt werden können.
3. Eine Bestimmung der Flächenaktivität ist nur dann möglich, wenn kleinräumige Aktivitätsschwankungen auftreten und die über eine Fläche von 1 bis 5 m^2 gemittelte Aktivität unabhängig von der Entfernung zum Detektor ist.
4. Der Einsatz der Methode ist mit erheblichen Schwierigkeiten verbunden, wenn Oberflächen- und Volumenkontaminationen am Meßort gleichzeitig auftreten.
5. Bei höherer Aktivitätskonzentration der Luft kann der Radionuklidgehalt auf und im Boden mit dieser Methode nicht bestimmt werden, wenn der Beitrag der Luftaktivität zur Gammaflußdichte am Meßort unbekannt ist.

Trotz der skizzierten Genauigkeitseinschränkungen ist die In-situ-Gammaspektrometrie eine wirkungsvolle Schnellmethode zur Abschätzung des Radionuklidgehaltes an der Oberfläche von Hausmülldeponien.

2 Probeentnahme

entfällt

3 Analytik

entfällt

4 Messung der Aktivität

Die Aktivitätsmessung erfolgt mit einem tragbaren HPGe- oder Ge(Li)-Detektor (10 bis 30 % relative Detektoreffektivität für die 1,33 MeV-Linie von Co-60). Der Detektor wird nach Abb. 1 in einem Meßgestell in $(1 \pm 0,1)$ m Höhe über der auszumessenden Fläche platziert, so daß die Endkappe des Detektors auf den Boden gerichtet ist. Im Umkreis der «Sichtweite» des Detektors sollte die Fläche möglichst eben und frei von Hindernissen sein. Die «Sichtweite» ist durch den Radius derjenigen Kreisfläche definiert, aus der 90 % der gesamten Flußdichte der ungestreuten Gammaquanten herrührt, die am Detektorort vorliegt. Sie ist eine Funktion der Detektorhöhe, der Energie der emittierten Gammaquanten, der Bodendichte und der Tiefenverteilung der Radionuklide im Boden. Für Cs-137 beträgt die «Sichtweite» bei einer Oberflächenkontamination (Relaxationslänge ca. 3 cm) ca. 20 m und bei einer konstanten spezifischen Aktivität des Deponiematerials ca. 10 m (4). Daraus ergeben sich Meßflächen von ca. 1200 bzw. 300 m². Hierbei muß berücksichtigt werden, daß bei Vernachlässigung der Absorption der Beitrag zur Nettopeakzählrate, der von 1 m² Deponiefläche unterhalb des Detektors herrührt, nach dem quadratischen Abstandsgesetz etwa 100mal größer ist als von der gleichen Fläche in einem Abstand von 10 m.

Die erforderliche Meßzeit hängt von dem nachzuweisenden bzw. tatsächlich vorhandenen Aktivitätsniveau, dem Detektorwirkungsgrad und dem tolerierbaren statistischen Zählfehler ab. Mit einem HPGe-Detektor (23 % relative Effektivität) beträgt z. B. bei einer Cs-137-Oberflächenaktivität von 5000 Bq · m⁻² ($1/\alpha = 3$ cm) und einer Meßzeit von 30 Minuten der relative statistische 2σ -Zählfehler nur ca. 4 % (vgl. Tabelle 1). Eine mit konstanter spezifischer Aktivität von 100 Bq · kg⁻¹ Cs-137 kontaminierte Deponie kann bei gleicher Meßzeit mit einem Zählfehler von ca. 3 % quantitativ analysiert werden (vgl. Tabelle 2). Daraus folgt, daß bereits bei geringen Kontaminationen und Meßzeiten der statistische Zählfehler bedeutend kleiner als der minimal erreichbare methodische Fehler der In-situ-Gammaspektrometrie von ± 25 % ist. Bei einem derartigen Kontaminationsniveau ist es deshalb nicht sinnvoll, eine Meßzeit > 30 Minuten zu wählen. Statt dessen sollte der Vorteil der Schnellmethode, in kurzen Zeiten das Kontaminationsniveau der Deponie abschätzen zu können, durch Training des Auf- und Abbaus der Meßanordnung und der Bedienung des Auswerteprogramms am Meßort voll zur Wirkung gebracht

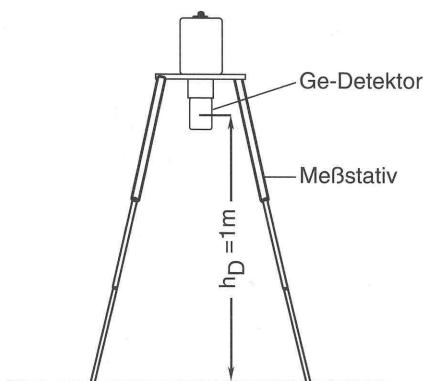


Abb. 1: In-situ-Gammaspektrometer

werden. Bei Verdacht auf starke Inhomogenitäten der Deponie kann eine Zweit- oder Drittmessung sinnvoll sein. Die Meßorte sind entsprechend der «Sichtweite» des Detektors auszuwählen.

Tabelle 1: Relative statistische 2σ -Fehler bei der In-situ-Messung von Flächenaktivitäten auf Hausmülldeponien (Meßzeit 10, 30 und 100 Minuten)

Radionuklid : Cs-137
 Relative Detektoreffektivität: 23 %
 Bodendichte : $0,8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$
 Relaxationslänge : 3 cm

Flächenaktivität in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$	Relativer statistischer 2σ -Fehler in % bei einer Meßzeit von		
	6000 s	1800 s	600 s
50000	0,6	1,2	2,0
20000	1,0	1,9	3,2
10000	1,5	2,7	4,6
5000	2,1	3,9	6,7
2000	3,6	6,6	11
1000	5,7	10	18
500	9,4	17	30
200	20	37	64
100	38	69	>100
50	72	>100	>100

Anmerkung zu Tabelle 1

Die angegebenen Werte beziehen sich auf einen Detektor mit einer relativen Detektoreffektivität $\epsilon_D = 23\%$. Weicht die Effektivität des verwendeten Detektors von 23% ab, so sind die angegebenen Werte für den relativen statistischen Fehler bzw. für die minimal nachweisbare Aktivität mit dem Korrekturfaktor $\sqrt{23/\epsilon_D}$ zu multiplizieren. Die Berechtigung für diese vereinfachende Behandlungsweise, die die Detektor-kapselung und die geometrische Abmessungen des Detektors vernachlässigt, ergibt sich aus dem relativ großen methodischen Gesamtfehler des Meßverfahrens.

Tabelle 2: Relative statistische 2σ -Fehler bei der In-situ-Messung von spezifischen Aktivitäten auf Hausmülldeponien (Meßzeit 10, 30 und 100 Minuten)

Radionuklid : Cs-137
 Relative Detektoreffektivität: 23 %

Spezif. Aktivität in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$	Relativer statistischer 2σ -Fehler in % bei einer Meßzeit von		
	6000 s	1800 s	600 s
1000	0,5	1	1,7
500	0,8	1,4	2,4
200	1,2	2,2	3,8
100	1,7	3,2	5,5
50	2,5	4,6	8
20	4,4	8	14
10	7,1	13	22
5	12	22	38
2	27	48	84
1	50	92	>100

Anmerkung zu Tabelle 2

Siehe Tabelle 1

5 Berechnung der Analyseergebnisse

Die Flächenaktivität a_{Fr} bzw. die spezifische Aktivität a_r des Radionuklids r berechnen sich nach den Gleichungen 2 und 3 (3, 4):

$$a_{Fr} = \frac{R_r}{Q_{Dr} \cdot G_{Fr} \cdot p_\gamma} \quad \text{in Bq} \cdot \text{m}^{-2} \quad (2)$$

$$a_r = \frac{R_r}{Q_{Dr} \cdot G_{Sr} \cdot p_\gamma} \quad \text{in Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \quad (3)$$

Hierin bedeuten:

R_r : Nettopeakzählrate des Radionuklides r in s^{-1}

$Q_{Dr} = \frac{R_r}{\Phi_r}$: Funktionswert der Detektorresponsefunktion Q_D für die ausgewertete Gammalinie des Radionuklides r in m^2 , d. h. der Quotient zwischen der Zählrate im Fotopeak und der am Detektorort vorhandenen Gammaflußdichte Φ

Φ : Gammaflußdichte in $\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$, d. h. die Zahl der ungestreuten Gammaquanten am Meßort, die aus beliebiger Richtung pro Quadratmeter und Sekunde dort eintreffen.

$G_{Fr} = \frac{\Phi_r}{L_{Fr}}$: Geometriefunktion für einen Detektor, der in 1 m Höhe über dem Boden angeordnet ist, als dimensionslose Zahl (G_{Fr}) bzw. in $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ (G_{Sr}).

bzw. Die Geometriefunktion wird definiert als Gammaflußdichte, bezogen auf die im Boden pro Quadratmeter bzw. pro kg emittierte Zahl von Gammaquanten.

$L_{Fr} = a_{Fr} \cdot p_\gamma$: Spezifische Emissionsdichte in $\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ (L_{Fr}) bzw. $\text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$ (L_{Sr}), d. h.

$L_{Sr} = a_r \cdot p_\gamma$ die Zahl der Gammaquanten einer Gammalinie des Radionuklides r pro Sekunde, die auf einem Quadratmeter Boden bzw. pro kg durch radioaktiven Zerfall erzeugt werden.

p_γ : Absolute Emissionswahrscheinlichkeit der gemessenen Gammalinie des Radionuklides r (dimensionslose Zahl)

Die Detektorresponsefunktion wird durch Kalibrierungsmessungen und die Geometriefunktion durch Modellrechnungen ermittelt.

5.1 Detektorresponsefunktion Q_D

Die von der γ -Energie und der relativen Detektoreffektivität abhängige Detektorresponsefunktion $Q_D(E_\gamma)$

$$Q_{Dr} = \frac{R_r}{\Phi_r} \quad (4)$$

berechnet sich mit der Gammaflußdichte Φ_r

$$\Phi_r = \frac{A_r \cdot p_\gamma}{4\pi \cdot L^2} \quad (5)$$

nach Gleichung 6:

$$Q_{Dr} = \frac{R_r \cdot 4\pi \cdot L^2}{A_r \cdot p_\gamma} \quad (6)$$

Hierin bedeuten:

A_r : Aktivität des punktförmigen Kalibrierstandards in Bq

R_r : Nettopeakzählrate in s^{-1} der Gammalinie r des Radionuklidstandards

L : Abstand zwischen der punktförmigen Standardquelle und dem Detektormittelpunkt in m

Zur Bestimmung der Energieabhängigkeit von Q_D wird ein Kalibrierstandard senkrecht zur Detektorachse (in Höhe des Detektormittelpunktes) in einem Abstand von $L = (1 \pm 0,005)$ m plziert und die Nettopeakzählrate R_r mit einem statistischen Zählfehler $< \pm 3\%$ ermittelt (Abbildung 2). Der bei Abstandsänderung von $\pm 0,5$ cm entstehende Kalibrierfehler von ca. 1% ist zu vernachlässigen. Die Kalibrierung sollte im Energiebereich 80 bis 1500 keV mit einem un abgeschirmten Ge-Detektor und Ba-133- sowie Eu-152-Punktquellen (Aktivität 10 MBq) erfolgen. Beschränkt man sich auf den Energiebereich 120 bis 1500 keV, so kann auf eine Kalibrierung mit Ba-133 verzichtet werden. Eine Meßzeit von 5000 Sekunden ist ausreichend, wenn der statistische Zählfehler von R_r 3% nicht überschreiten soll und eine 10 MBq-Punktquelle sowie ein Detektor mit 10 bis 30% relativer Effektivität für die Effektivitätskalibrierung verwendet werden. Das Ergebnis ist für einen Detektor von 23% relativer Nachweiswahrscheinlichkeit für verschiedene γ -Energien in Tabelle 3 zusammengestellt.

Die Kalibrierung des Detektors wird in horizontaler Einstrahlungsrichtung vorgenommen, da der Hauptteil der bei der In-situ-Gammaspektrometrie von der Oberfläche auf den Detektor treffenden Gammaquanten in nahezu horizontaler Richtung einfällt.

Auf Grund der gewählten Einstrahlungsrichtung kann auf eine Kontrolle der Isotropie der Zähleffektivität des Detektors verzichtet werden. Der durch eventuelle Anisotropie bedingte Fehler von $< 20\%$ ist im Vergleich zu den im Pkt. 6.3 diskutierten Fehlern zu vernachlässigen.

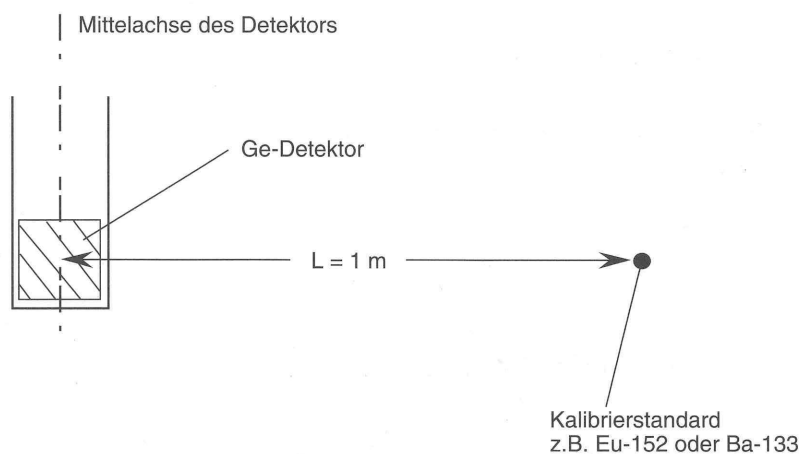


Abb. 2: Meßgeometrie zur Kalibrierung des Ge-Detektors

Tabelle 3: Detektorresponsefunktion Q_D als Funktion der Gammaenergie für einen Ge-Detektor mit 23 % relativer Nachweiswahrscheinlichkeit

Kalibrierstandards: Ba-123
Eu-152
Cs-137

Radio-nuklid	Energie der Gammalinie in keV	Emissions-wahrscheinlichkeit in %	Q_D in m ²
Ba-133	79,6	2,6	0,00088
Ba-133	81	34,0	
Eu-152	122	28,4	0,00137
Eu-152	245	7,5	0,00108
Ba-133	276	7,1	0,000970
Ba-133	303	18,3	0,000896
Ba-133	356	62,3	0,000783
Eu-152	411	2,2	0,000694
Eu-152	443,9	2,8	0,000650
Eu-152	444	0,3	
Cs-137	662	85,0	0,000464
Eu-152	779	13,0	0,000405
Eu-152	867	4,2	0,000370
Eu-152	964	14,5	0,000338
Eu-152	1112	13,6	0,000300
Eu-152	1408	20,8	0,000245

5.2 Geometriefunktion

Die zur Berechnung der Flächenaktivität notwendige Geometriefunktion G_F wird bei einer exponentiellen Vertikalverteilung der Aktivitätskonzentration im Deponieboden nach (4, 5, 6) folgendermaßen berechnet:

$$G_F = \frac{1}{2} EX_1(\mu_L \cdot h_D) - \exp\left(\frac{\alpha}{\mu_B} \cdot \mu_L \cdot h_D\right) EX_1\left(1 + \frac{\alpha}{\mu_B}\right) \mu_L \cdot h_D \quad (7)$$

Hierin bedeuten:

EX_1 : Exponentialintegralfunktion 1. Ordnung

μ_L : linearer Schwächungskoeffizient für Luft in cm^{-1}

μ_B : linearer Schwächungskoeffizient für den Boden in cm^{-1}

h_D : Höhe des Detektors über dem Boden in cm

$1/\alpha$: Relaxationslänge der Radionuklide im Boden in cm

Für den Energiebereich 100 bis 3000 keV, eine Detektorhöhe $h = 100$ cm, die Bodendichte $\rho = 0,4; 0,8$ und $1,2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, die Relaxationslänge $1/\alpha = 1,3$ und 5 cm wurde die Geometriefunktion G_F berechnet und in den Tabellen 4, 5 und 6 angegeben. Zusätzlich sind für den Fall einer frischen Fallout-Kontamination (d.h. $1/\alpha = 0$) die Daten der Geometriefunktion G_F in Tabelle 7 zusammengestellt.

Da bei Oberflächenkontaminationen von Hausmülldeponien die Tiefenverteilung der Aktivitätskonzentration in der Regel unbekannt ist, sollte bei ausschließlich trockener Deposition eine Relaxationslänge $1/\alpha = 1$ cm und bei feuchter Deposition $1/\alpha = 3$ cm an-

Tabelle 4: Geometriefunktion G_F zur Berechnung der Flächenaktivität bei der In-situ-Gammaspektrometrie für den Energiebereich 100 bis 3000 keV

Dichte : $\rho = 0,4 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$

Relaxationslänge: $1/\alpha = 1,3$ und 5 cm

Energie in keV	Geometriefunktion G_F		
	$\frac{1}{\alpha} = 1 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 3 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 5 \text{ cm}$
100	1,086	0,759	0,602
150	1,155	0,829	0,672
200	1,205	0,872	0,713
250	1,244	0,907	0,745
300	1,278	0,937	0,773
350	1,306	0,962	0,797
400	1,332	0,986	0,819
450	1,351	1,008	0,840
500	1,372	1,028	0,859
550	1,392	1,047	0,876
600	1,411	1,064	0,893
650	1,428	1,080	0,908
700	1,444	1,095	0,922
750	1,460	1,110	0,936
800	1,474	1,123	0,949
850	1,488	1,136	0,961
900	1,500	1,148	0,973
950	1,513	1,160	0,984
1000	1,525	1,171	0,995
1500	1,621	1,264	1,084
2000	1,694	1,335	1,153
2500	1,752	1,392	1,208
3000	1,801	1,440	1,256

genommen werden. Die Relaxationslänge $1/\alpha = 1 \text{ cm}$ bei trockener Deposition berücksichtigt die Schwächung der Gammastrahlung, die bei alleiniger Oberflächenkontamination auf Grund der Rauigkeit der Deponieoberfläche auftritt. Der Wert $1/\alpha = 3 \text{ cm}$ bei feuchter Deposition ist durch die im Vergleich zum natürlichen Boden bedeutend höhere Geschwindigkeit des Eindringens der Radioaktivität in die Deponie bedingt. Die Hauptursache dafür ist die «offene» Struktur der Deponieoberfläche. Ein weiterer Grund ist die kleine spezifische Gesamtoberfläche des Deponiematerials ($\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$), die das Adsorptionsvermögen zur Anlagerung der Radionuklide vermindert.

Aus den Tabellen 4 bis 6 folgt, daß die Geometriefunktion und damit die Flächenaktivität sehr stark von der Relaxationslänge und der Dichte des Bodens abhängen.

Die zur *Berechnung der spezifischen Aktivität* benötigte Geometriefunktion G_S wird bei konstanter Aktivitätskonzentration im Deponieboden gemäß

$$G_S = \frac{\rho_B}{2 \cdot \mu_B} EX_2(\mu_L \cdot h_D) \quad (8)$$

berechnet.

Tabelle 5: Geometriefunktion G_F zur Berechnung der Flächenaktivität bei der In-situ-Gammaspektrometrie für den Energiebereich 100 bis 3000 keV

Dichte : $\rho = 0,8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$
 Relaxationslänge: $1/\alpha = 1,3$ und 5 cm

Energie in keV	Geometriefunktion G_F		
	$\frac{1}{\alpha} = 1 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 3 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 5 \text{ cm}$
100	0,874	0,550	0,410
150	0,936	0,602	0,457
200	0,983	0,642	0,493
250	1,020	0,675	0,523
300	1,052	0,703	0,544
350	1,080	0,728	0,566
400	1,105	0,750	0,586
450	1,127	0,770	0,604
500	1,149	0,788	0,620
550	1,169	0,805	0,635
600	1,187	0,821	0,650
650	1,204	0,836	0,663
700	1,219	0,850	0,676
750	1,234	0,863	0,688
800	1,248	0,875	0,699
850	1,262	0,887	0,710
900	1,275	0,899	0,720
950	1,287	0,910	0,730
1000	1,299	0,920	0,740
1500	1,395	1,007	0,821
2000	1,467	1,074	0,883
2500	1,526	1,129	0,935
3000	1,576	1,176	0,979

Hierin bedeuten:

ρ_B : Dichte des Deponiebodens in $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$

μ_B : linearer Schwächungskoeffizient für den Deponieboden in m^{-1}

EX_2 : Exponentialintegralfunktion 2. Ordnung

Die Geometriefunktion G_G (Funktionswerte siehe Tabelle 8) ist nach Gleichung 8 nur vom Massenschwächungskoeffizienten $\frac{\mu_B}{\rho}$ und nicht von der Dichte des Bodens abhängig. Böden verschiedener Dichte, jedoch gleicher spezifischer Aktivität, erzeugen demnach eine identische Flußdichte ungestreuter Gammaquanten. Andererseits führt ein steigender Feuchtigkeitsgehalt des Bodens auf Grund der konstanten Aktivitätskonzentration zur reziprok proportionalen Abnahme der spezifischen Aktivität und damit der Gammaflußdichte.

Tabelle 6: Geometriefunktion G_F zur Berechnung der Flächenaktivität bei der In-situ-Gammaspektrometrie für den Energiebereich 100 bis 3000 keV

Dichte : $\rho = 1,2 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$
 Relaxationslänge: $1/\alpha = 1,3$ und 5 cm

Energie in keV	Geometriefunktion G_F		
	$\frac{1}{\alpha} = 1 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 3 \text{ cm}$	$\frac{1}{\alpha} = 5 \text{ cm}$
100	0,759	0,437	0,309
150	0,829	0,498	0,358
200	0,872	0,532	0,386
250	0,907	0,559	0,409
300	0,937	0,583	0,429
350	0,962	0,603	0,447
400	0,986	0,622	0,462
450	1,008	0,640	0,478
500	1,028	0,657	0,492
550	1,047	0,673	0,506
600	1,064	0,688	0,519
650	1,080	0,702	0,531
700	1,095	0,715	0,542
750	1,110	0,727	0,553
800	1,123	0,739	0,563
850	1,136	0,750	0,573
900	1,148	0,761	0,583
950	1,160	0,771	0,592
1000	1,171	0,781	0,600
1500	1,264	0,864	0,674
2000	1,335	0,928	0,732
2500	1,392	0,981	0,780
3000	1,440	1,027	0,822

Tabelle 7: Geometriefunktion G_F zur Berechnung der Flächenaktivität bei der In-situ-Gammaspektrometrie für den Energiebereich 100 bis 3000 keV und die Relaxationslänge $1/\alpha = 0$

Energie in keV	G_F	Energie in keV	G_F
100	1,68	700	2,03
150	1,75	750	2,05
200	1,79	800	2,06
250	1,83	850	2,08
300	1,86	900	2,09
350	1,88	950	2,10
400	1,91	1000	2,11
450	1,93	1500	2,21
500	1,96	2000	2,29
550	1,98	2500	2,34
600	2,00	3000	2,39
650	2,01		

Tabelle 8: Geometriefunktion G_s zur Berechnung der spezifischen Aktivität bei der In-situ-Gammaspektrometrie für den Energiebereich 100 bis 3000 keV

Energie in keV	G_s in $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$	Energie in keV	G_s in $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$
100	27,6	700	63,2
150	33,0	750	65,4
200	36,9	800	67,9
250	40,3	850	69,7
300	43,1	900	71,7
350	45,8	950	73,7
400	48,4	1000	75,7
450	51,0	1500	92,9
500	53,5	2000	107,5
550	56,0	2500	120,5
600	58,5	3000	132,5
650	60,9		

5.3 Berechnungsbeispiel

5.3.1 Berechnung der Flächenaktivität

Die Deponieoberfläche ist mit Cs-137 kontaminiert. Mit einem 23 %-Ge-Detektor wird in einer Meßhöhe von $h_D = 1 \text{ m}$ die Kontamination quantitativ bestimmt.

Meßzeit:

$$t_m = 1800 \text{ s}$$

Nettozählrate:

$$R_r = 0,694 \text{ s}^{-1}$$

Dichte des Deponiematerials:

$$\rho = 0,8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$$

Funktionswert der Detektorresponsefunktion bei $E = 662 \text{ keV}$ gemäß Tab. 3:

$$Q_{Dr} = 0,000464 \text{ m}^2$$

Funktionswert der Geometriefunktion G_F für $\rho = 0,8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ und $E = 662 \text{ keV}$ gemäß Tab. 5:

$$G_{Fr} = 0,835$$

Absolute Emissionswahrscheinlichkeit:

$$p_\gamma = 0,85$$

Hieraus folgt für die Cs-137-Flächenaktivität:

$$a_F = \frac{R_r}{Q_{Dr} \cdot G_{Fr} \cdot p_\gamma}$$

$$a_F = \frac{0,694}{0,000464 \cdot 0,835 \cdot 0,85}$$

$$a_F = 2110 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

5.3.2 Berechnung der spezifischen Aktivität

Die Deponie ist homogen mit Cs-137 kontaminiert. Die in-situ-Messung erfolgt mit einem 23 %-Ge-Detektor.

Meßzeit:	$t_m = 1800 \text{ s}$
Nettozählrate:	$R_r = 0,833 \text{ s}^{-1}$
Funktionswert der Detektorresponsefunktion bei $E = 662 \text{ keV}$ gemäß Tab. 3:	$Q_{Dr} = 0,000464 \text{ m}^2$
Funktionswert der Geometriefunktion G_S für $E = 662 \text{ keV}$ gemäß Tab. 8:	$G_{Sr} = 61,4 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-2}$
Absolute Emissionswahrscheinlichkeit:	$p_\gamma = 0,85$

Hieraus folgt die spezifische Aktivität von Cs-137 des Deponiematerials:

$$a = \frac{R_r}{Q_{Dr} \cdot G_{Sr} \cdot p_\gamma}$$

$$a = \frac{0,8}{0,000464 \cdot 61,4 \cdot 0,85}$$

$$a = 34,4 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$$

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Untere Nachweisgrenze

Die untere Nachweisgrenze der In-situ-Gammaspektrometrie hängt von folgenden Parametern ab:

- Untergrundzählrate des betrachteten Peaks (abhängig von der spezifischen Aktivität höherenergetischer, künstlicher und natürlicher Radionuklide, die in der Deponie enthalten sind)
- Relative Effektivität und Energieauflösungsvermögen des Ge-Detektors
- Meßzeit
- Eindringtiefe der Radionuklide in den Deponieboden
- Dichte des Deponiebodens

Die nuklidspezifische minimal nachweisbare Flächenaktivität g_{Fr} bzw. spezifische Aktivität g_r berechnen sich unter Berücksichtigung der Gleichung 2.16 im Kapitel IV.5 dieser Meßanleitungen nach den Gleichungen 9 und 10:

$$g_{Fr} = \frac{k}{Q_{Dr} \cdot G_{Fr} \cdot p_\gamma} \sqrt{\frac{2b \cdot \bar{R}_o}{t_m}} \text{ in Bq} \cdot \text{m}^{-2} \quad (9)$$

$$g_r = \frac{k}{Q_{Dr} \cdot G_{Sr} \cdot p_\gamma} \sqrt{\frac{2b \cdot \bar{R}_o}{t_m}} \text{ in Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \quad (10)$$

Hierin bedeuten die zusätzlichen Größen:

k : $k_{1-\alpha} + k_{1-\beta} = 4,65$

Q_{Dr} : Funktionswert der Detektorresponsefunktion Q_D für die Gammalinie r in m^2 (vgl. Pkt. 5.1)

G_{Fr} : Funktionswert der Geometriefunktion G_F bzw. G_S für die Gammalinie r als G_{Sr} dimensionslose Zahl bzw. in $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$ (vgl. Pkt. 5.2)

Für einen Ge-Detektor mit der relativen Effektivität von 23 % wurden nach den Gleichungen 9 und 10 die minimal nachweisbaren Oberflächenaktivitäten in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ (Relaxationslänge $1/\alpha = 3 \text{ cm}$) und die minimal nachweisbaren spezifischen Aktivitäten in $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ berechnet und in den Tabellen 9 und 10 zusammengestellt. Zugrunde gelegt wurde ein Deponieboden, der mit folgenden natürlichen Radionukliden kontaminiert ist:

K-40	$400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$
Ra-226 und seine Zerfallsprodukte	$15 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$
Th-232 und seine Zerfallsprodukte	$20 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$

Die berechneten Nachweisgrenzen gelten nur für das jeweils angegebene Einzelnuclid, d. h. bei Abwesenheit anderer künstlicher Radionuklide. Treten neben dem betrachteten Radionuklid noch weitere Nuklide auf, die höherenergetische Gammalinien aufweisen, so wird der Untergrund durch die Überlagerung mehrerer Comptonkontinua erhöht. Gemäß den Gleichungen 9 und 10 steigen dadurch die Nachweisgrenzen mit der Wurzel der Untergrundzählrate R_0 an.

Tabelle 9: Minimal nachweisbare Flächenaktivitäten für auf dem Boden abgelagerte künstliche Radionuklide bei der In-situ-Gammaspektrometrie auf Hausmülldeponien

Relative Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors: 23 %
 Energieauflösungsvermögen des Detektors : 2 keV bei 1,33 MeV
 Bodendichte : $0,8 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$
 Relaxationslänge : 3 cm

Nuklid	Energie in keV	Emissions- wahrschein- lichkeit in %	Minimal nachweisbare Flächenaktivität in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ bei einer Meßzeit von		
			6000 s	1800 s	600 s
Cr-51	320	9,8	590	1080	1870
Mn-54	835	100	44	80	140
Fe-59	1099	56,1	82	150	260
Co-57	122	85,6	110	200	350
Co-58	811	99,5	43	79	137
Co-60	1173	99,9	48	88	151
Zn-65	1116	50,4	92	170	290
Zr-95	757	54,3	82	150	260
Nb-95	766	99,8	45	82	140
Ru-103	497	90,9	62	110	200
Ru-106	622	10	490	900	1600
Ag-110m	885	73,4	60	110	190
Sb-124	1691	47,5	58	105	185
Sb-125	428	29,4	210	390	660
Te-123m	159	84	80	145	250
I-131	364	81,6	68	125	215
Cs-134	796	85,4	50	92	160
Cs-137	662	85	52	96	166
Ba-140	537	24,4	220	410	700
La-140	1596	95,4	28	51	89
Ce-141	145	48,9	175	320	550
Ce-144	133	11,1	830	1500	2600

Anmerkung zu Tabelle 9

Siehe Tabelle 1

Tabelle 10: Minimal nachweisbare spezifische Aktivität für künstliche Radionuklide bei der In-situ-Gamma-spektrometrie auf Hausmülldeponien

Relative Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors: 23 %

Energieauflösungsvermögen des Detektors : 2 keV bei 1,33 MeV

Nuklid	Energie keV	Emissions- wahrschein- lichkeit in %	Minimal nachweisbare spezif. Aktivität in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ bei einer Meßzeit von		
			6000 s	1800 s	600 s
Cr-51	320	9,8	9,5	17	30
Mn-54	835	100	0,56	1	1,8
Fe-59	1099	56,1	1	1,8	3,1
Co-57	122	85,6	2,1	3,9	6,8
Co-58	811	99,5	0,56	1,0	1,8
Co-60	1173	99,9	0,56	1,0	1,8
Zn-65	1116	50,4	1,1	2	3,4
Zr-95	757	54,3	1,1	2	3,4
Nb-95	766	99,8	0,58	1,1	1,8
Ru-103	497	90,9	0,92	1,7	2,9
Ru-106	622	10	6,8	12	22
Ag-110m	885	73,4	0,8	1,4	2,4
Sb-124	1691	47,5	0,6	1,1	1,9
Sb-125	428	29,4	3,3	5,9	10
Te-123m	159	84	1,5	2,7	4,6
I-131	364	81,6	1,1	2	3,4
Cs-134	796	85,4	0,65	1,2	2,1
Cs-137	662	85	0,71	1,3	2,3
Ba-140	537	24,4	3,2	5,8	10
La-140	1596	95,4	0,3	0,55	0,9
Ce-141	145	48,9	3,2	5,9	10
Ce-144	133	11,1	15	28	50

Anmerkung zu Tabelle 10

Siehe Tabelle 1

6.2 Obere Nachweisgrenze

Die obere Nachweisgrenze, d. h. die maximal nachweisbare Flächenaktivität bzw. spezifische Aktivität, wird in erster Linie durch die maximale Impulsrate, die der Vorverstärker, Hauptverstärker und der ADC des Vielkanalanalysators verarbeiten kann, sowie durch die relative Effektivität des Detektors und die Radionuklidparameter (Anzahl der Gammalinien pro Zerfall, Energie und Emissionswahrscheinlichkeit der Gammalinien) bestimmt. Bei einem handelsüblichen Vielkanalanalysator mit einem 100 MHz-Wilkinson-ADC wird die maximale Impulsrate durch den Konversionsprozeß im ADC begrenzt. Die Maximalzahl der Impulse liegt bei einer Totzeit von 50 % bei ca. 20 000 pro Sekunde. Daraus folgt für eine Cs-137-Oberflächenkontamination ($1/\alpha = 3 \text{ cm}$) eine maximal nachweisbare Flächenaktivität von $10 \text{ MBq} \cdot \text{m}^{-2}$. Dies entspricht einer Ortsdosisleistung von $15 \mu\text{Gy} \cdot \text{h}^{-1}$. Zugrunde gelegt wurde ein Ge-Detektor mit 23 % relativer Effektivität.

Die maximal nachweisbare Cs-137-Aktivität nimmt ab, wenn in der Deponie weitere Gammastrahlung emittierende Radionuklide auftreten.

6.3 Genauigkeit

Der Gesamtfehler der Methode setzt sich aus den statistischen und systematischen Einzelfehlern der in die Aktivitätsberechnung eingehenden Größen R_r (Peakzählrate), Q_D (Detektorresponsefunktion) und G_F bzw. G_S (Geometriefunktion) gemäß den Gln. (4) und (5) zusammen.

Der statistische Zählfehler der Peakzählrate R_r hängt von der Flächenaktivität bzw. der spezifischen Aktivität der Deponie, der Meßzeit, dem zu bestimmenden Radionuklid und der relativen Effektivität des Detektors ab. Für Meßzeiten von 10 bis 100 Minuten und die Cs-137-Aktivitätsbereiche $0,05$ bis $50 \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-2}$ bzw. 12 bis $1000 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ ergeben sich die in den Tabellen 1 und 2 zusammengestellten Zählfehler.

Der Einzelfehler der Detektorresponsefunktion beträgt $< \pm 5$, da hier nur der statistische Fehler bei der Kalibrierung und Fehler der verwendeten Radionuklidstandards sowie der Kalibriergeometrie eingehen.

Der größte Beitrag zum Gesamtfehler ergibt sich daraus, daß

1. die Modellannahmen zwar erfüllt, jedoch die zur Beschreibung des Geometriemodells benötigten Parameter fehlerbehaftet oder unbekannt sind und deshalb auf der Basis von Annahmen nur näherungsweise abgeschätzt werden können oder
2. die Voraussetzungen für die Anwendung des Berechnungsmodells (z. B. exponentielle oder konstante Vertikalverteilung der Aktivitätskonzentration, radiale Konstanz der Flächen- oder spezifischen Aktivität) nicht exakt erfüllt sind.

Zu 1.:

Bei Variation der in das Rechenverfahren eingehenden Parameter

- Dichte des Deponiematerials
- Feuchtigkeitsgehalt
- Eindringtiefe der Radionuklide (Relaxationslänge)
- Rauigkeit der Deponieoberfläche

ergeben sich für die Bestimmung der Flächenaktivität und der spezifischen Aktivität die in der Tabelle 11 zusammengestellten Fehler. Ausgegangen wurde von einer mittleren Dichte an der Deponieoberfläche von $0,80 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ und der Annahme, daß im Fall der Oberflächenkontamination die Aktivitätskonzentration mit der Tiefe exponentiell gemäß $1/\alpha = 3 \text{ cm}$ abnimmt.

Jede vom angenommenen Wert des Modellparameters auftretende Abweichung verändert die Schwächung der Gammastrahlung und damit die Geometriefunktion G_F . Die größten Fehler ergeben sich bei Abweichungen der Dichte und der Relaxationslänge. Liegt beispielsweise eine Relaxationslänge $1/\alpha = 1 \text{ cm}$ vor, obwohl $1/\alpha = 3 \text{ cm}$ angenommen wurde, so wird die Flächenaktivität um $+60\%$ gegenüber dem tatsächlichen Wert überschätzt (100 keV-Gammalinie). Eine Unterschätzung um -26% ergibt sich, wenn die Relaxationslänge $1/\alpha = 5 \text{ cm}$ beträgt.

Aus der Gegenüberstellung der Fehler in Tabelle 11 ergibt sich, daß bei der Bestimmung der Oberflächenaktivität erheblich größere Fehler auftreten als bei der Bestimmung der spezifischen Aktivität, wenn von einer konstanten Aktivitätskonzentration ausgegangen werden kann.

Zu 2.:

In den Fällen, in denen die Voraussetzungen für die Anwendung des Berechnungsmodells nicht erfüllt sind, muß mit erheblich größeren Fehlern gerechnet werden. Das

Tabelle 11: Einzelfehler bei der In-situ-Messung der Flächenaktivität und spezifischer Aktivität auf Hausmülldeponien bei Variation der Modellparameter

Modellparameter	Relativer Fehler in % bei der Bestimmung der	
	Flächenaktivität	Spezif. Aktivität
Dichte: $(0,8 \pm 0,4) \text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$		
100 keV	-20% / +38%	-
1000 keV	-15% / +27%	-
Bodenfeuchtigkeit: $\pm 10\%$	$< \pm 5\%$	$\pm 10\%$
Oberflächenrauigkeit: $1/\alpha = (3 \pm 1) \text{cm}$		
100 keV	-15% / +25%	-
1000 keV	-11% / +18%	-
Relaxationslänge: $1/\alpha = (3 \pm 2) \text{cm}$		
100 keV	-26% / +60%	-
1000 keV	-20% / +40%	-

trifft beispielsweise dann zu, wenn eine frische Kontamination durch starke Regenfälle in tiefere Deponieschichten gespült wird und die Aktivitätskonzentration dort wesentlich höher als an der Oberfläche ist. Durch die Schwächung der Gammastrahlung in der inaktiven Deckschicht wird eine zu niedrige Flächenaktivität vorgetäuscht.

Eine Unterschätzung der Kontamination ergibt sich auch dann, wenn die Flächenaktivität in der unmittelbaren Umgebung des Detektors erheblich niedriger als in den äußeren Bereichen der «Sichtweite» des Detektors ist. Der durch derartige Inhomogenitäten bedingte relative Fehler kann Werte von 100% erreichen und überschreiten.

7 Verzeichnis der erforderlichen Geräte

- Tragbarer Ge-Detektor mit einer relativen Detektoreffektivität von ca. 10%
- Meßgestell (höhenverstellbar)
- Batteriegespeicher tragbarer Vielkanalanalysator (≥ 2000 Kanäle) oder sonstige mobile Meß- und Auswerteelektronik zur Aufnahme und quantitativen Auswertung von Gamma-Spektren
- Punktförmige 0,4 MBq-Kalibrierquellen (Eu-152, Ba-133)
- 25-l-Dewargefäß

Literatur

- (1) Beck, H.L., De Campo, J., Gogolak, C.V.: In situ Ge(Li) and Na I(Tl) Gamma-Ray Spectrometry, HASL 258, 1972
- (2) Winkelmann, I. et al.: Ergebnisse von Radioaktivitätsmessungen nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl, ISH-Bericht 99, Neuherberg, 1986
- (3) Haimerl, W., Wolff, S., Weimer, S.: Kalibrierung eines In-situ-Spektrometers, Praktische Anleitung, ABE-237, Neuherberg, 1982
- (4) Winkelmann, I., Haimerl, W., Wutz, J.: Nuklidspezifische Messungen der Ortsdosisleistung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen, ISH-Bericht 12, Neuherberg, 1982
- (5) Gogolak, C.V.: Calibration of a Ge(Li)Spectrometer for In-Situ-Measurements, ISH-Bericht 6, Neuherberg, 1981
- (6) Murth, Ch., Voelke, H., Huber, O.: Radioactivity Measurements in the Vicinity of Swiss Nuclear Power Plants, Nucl. Instr. Meth. A 243, 549-560, 1986

Zusätzliche Größenbezeichnungen

Symbol	Erklärung	Einheit
Q_D	Detektorresponsefunktion	m^2
G_F	Geometriefunktion zur Bestimmung der Flächenaktivität	
G_S	Geometriefunktion zur Bestimmung der spezifischen Aktivität	$kg \cdot m^{-2}$
$\frac{1}{\alpha}$	Relaxationslänge	cm
Φ	Gammaflußdichte	$s^{-1} \cdot m^{-2}$
L	Abstand zwischen der Standardquelle und dem Detektormittelpunkt bei der Kalibrierung des In-situ-Gammadetektors	
h_D	Höhe des Ge-Detektors über dem Boden	m
μ_L	linearer Schwächungskoeffizient für Luft	cm
μ_B	linearer Schwächungskoeffizient für den Boden	cm
EX_1	Exponentialintegralfunktion 1. Ordnung	
EX_2	Exponentialintegralfunktion 2. Ordnung	