

Verfahren zur kontinuierlichen Überwachung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration im Meerwasser

D- γ -GESAMT-MWASS-01

Bearbeiter:

M. Grützmüller

S. Schmied

K. Becker

C. Wedekind

G. Kanisch

J. Herrmann

I. Goroncy

H. Nies

H.-J. Gabriel†

Leitstelle für Meerwasser, Meeresschwebstoff und -sediment

Verfahren zur kontinuierlichen Überwachung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration im Meerwasser

1 Anwendungsbereich

Das nachstehend beschriebene Verfahren wird als Screeningverfahren zur zeitnahen kontinuierlichen Überwachung des Meerwassers auf auch geringe Aktivitätskonzentrationen an künstlichen, gammastrahlenden radioaktiven Stoffen eingesetzt.

Um eine flächendeckende Überwachung zu gewährleisten, wurde ein Messnetz aus Sonden eingerichtet, das die Anforderungen der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift zum „Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Umweltradioaktivität“ (AVV-IMIS) nach dem Strahlenschutzgesetz (StrlSchG) im Umweltbereich „Meerwasser“ erfüllt [1, 2, 3, 4].

Die Sonden sind auf offener See stationär auf ozeanographischen Messbojen und auf festen Einrichtungen an der Küste wie Molen, Seebrücken oder Pegelhäusern im Meerwasser frei hängend angebracht [5]. Darüber hinaus sind Schiffe des Bundesamtes für Seeschifffahrt und Hydrographie (BSH) als fahrende Stationen mit einer entsprechenden Messeinrichtung ausgestattet, deren Sonde in einer Vertiefung im Schiffsboden (Koker) montiert ist.

Mit diesem Verfahren kann eine künstliche Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration von etwa $800 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ nachgewiesen werden.

2 Probeentnahme

Eine Probeentnahme ist nicht erforderlich.

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Bei diesem integralen Verfahren werden die Zählraten infolge der Gammastrahlung im Meerwasser quasi-kontinuierlich, d. h. zyklisch mit einer Messdauer von einer Stunde, mit thalliumdotierten Natriumiodid-Detektoren (NaI(Tl)-Detektoren) direkt ermittelt.

Der Strahlungsanteil der künstlichen radioaktiven Stoffe wird aus dem Verhältnis der Zählraten in zwei festgelegten Energiebereichen im Impulshöhenspektrum ermittelt, unterhalb und oberhalb von 900 keV (siehe Abbildung 3). In beiden Energiebereichen wird die jeweils aktuelle Untergrundstrahlung separat erfasst. Im Routinebetrieb haben die Strahlungsanteile in den beiden Energiebereichen ein festes Verhältnis zueinander.

Bei Eintrag künstlicher radioaktiver Stoffe ändert sich das Zählratenverhältnis zugunsten des unteren Energiebereichs. Das ermittelte Zählratenverhältnis dient der Berechnung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration.

Der Schwellenwert für die Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, $R_{n,K,A}$, liegt bei 3 s^{-1} , was einer Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration von $1000 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ entspricht. Bei einer Schwellenwertüberschreitung wird die Leitstelle automatisch auf elektronischem Weg informiert.

Das Verfahren gestattet zudem die Aufnahme und Auswertung von Impulshöhenspektren in Form von Stundenspektren, die bei Bedarf zu Tages- oder Wochenspektren summiert werden. Obwohl das geringe Energieauflösungsvermögen der NaI(Tl)-Detektoren eine nuklidspezifische Auswertung nur begrenzt zulässt, können einzelne Radionuklide wie Caesium-137 und störfalltypische Radionuklidgemische erkannt und aufgrund der unterschiedlichen Gammastrahlungsenergien von natürlichen radioaktiven Stoffen unterschieden werden. Darüber hinaus werden die Stunden- und Tagesspektren zur Funktionstüchtigkeit der Messeinrichtung und zur Qualitätssicherung der Messdaten verwendet.

Die nuklidspezifische Auswertung der Spektren und eine Abschätzung der Aktivitätskonzentrationen vorhandener künstlicher Radionuklide werden im Verfahren D- γ -GESAMT-MWASS-02 beschrieben.

3.2 Probenvorbereitung

Eine Probenaufbereitung ist nicht erforderlich.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Allgemeines

Die Aktivitätskonzentrationen künstlicher, gammastrahlender radioaktiver Stoffe im Meerwasser werden über die verfahrensbezogene Messgröße künstliche Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration $c_{G\gamma}$ abgeschätzt. Aufgrund der Komplexität der Auswertung weicht diese künstliche Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration $c_{G\gamma}$ etwas von der Definition im Glossar der Messanleitungen ab. Sie bezieht sich bei einer freihängenden Messeinrichtung nicht auf ein bei der Kalibrierung verwendetes Referenzradionuklid, sondern näherungsweise auf ein fiktives Radionuklid, das bei jedem radioaktivem Zerfall

ein Gammaquant aussendet. Der radioaktive Zerfall kann bei diesem Screeningverfahren deshalb nicht berücksichtigt werden.

Zur Erfassung der Gammastrahlung wird ein NaI(Tl)-Detektor verwendet. Die Messeinrichtung (Abbildung 1) wurde den speziellen Anforderungen des Messnetzbetriebes für den Meeresbereich angepasst. Die technischen Daten für eine derartige Messeinrichtung sind in Abschnitt 8.2 aufgeführt.

Für eine ausreichende Abschirmung der Messeinrichtung gegen Höhen- und Sedimentstrahlung durch die Wassersäule muss die Messeinrichtung an einer Position installiert werden, die eine Mindestwassertiefe von 3 m bei einer Wasserüberdeckung der Sonde von mindestens 1,5 m aufweist.

Bei küstennahen Stationen wird die Wasserüberdeckung durch einen Drucksensor erfasst. Der Betrieb dieser Stationen wird bei Unterschreitung der Wasserüberdeckung der Sonde von 1 m eingestellt. Bei einer Wasserüberdeckung zwischen 1 m und 1,5 m werden entsprechende Korrekturfaktoren verwendet.

Anmerkung:

Bei dieser speziellen Messanordnung einer im Meerwasser hängenden Sonde mit NaI(Tl)-Detektor gilt: Durch Wechselwirkung mit Wasser (statt Luft) wird die Energie der primären Gammastrahlung aus dem Wasser, auf Weglängen von zum Teil hundert Zentimeter, deutlich verringert, bevor die Abgabe der Energie im Detektor erfolgen kann. Das hat zur Folge, dass der Photopeak im Verhältnis zum Comptonkontinuum viel kleiner wird, als beispielsweise bei einer Messung mit einer Punktquelle in Luft zu erwarten wäre. Dies erweist sich bei der Gesamt-Gammamessung in Wasser als Vorteil, da dadurch selbst für Gammastrahler wie Zink-65 oder Cobalt-60, mit Gammaenergien von 1116 keV bis 1333 keV, der Hauptanteil der gemessenen Zählrate in den Energiebereich unterhalb 900 keV fällt. Dies bedeutet, dass der Energiebereich unter 900 keV im Impulshöhenspektrum ausreichend empfindlich für den Nachweis künstlicher Gammastrahlung ist.

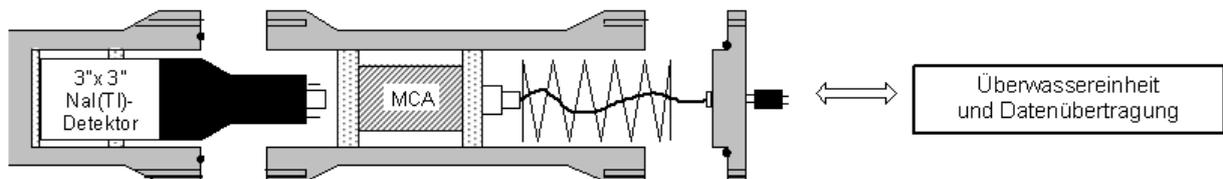


Abb. 1: Messeinrichtung zur Ermittlung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration im Meerwasser.

4.2 Kalibrierung

Im Falle einer Kontamination des Meerwassers ist zu erwarten, dass Herkunft und Art der beteiligten Radionuklide oder Radionuklidgemische unbekannt sind. Daher wird eine Kalibrierung mit mehreren Radionukliden durchgeführt. Um mit der Kalibrierung gammastrahlende Radionuklide universell erfassen zu können, wird anstelle einer nuklidspezifischen Kalibrierung die energieabhängige Gammastrahlenempfindlichkeit des Detektors der Messeinrichtung kalibriert, abhängig davon, ob die Sonde frei im Wasser hängt oder sich im Schiffskoker befindet.

Die Gültigkeit der Kalibrierung ist durch regelmäßige Überprüfung der Kenndaten der Sonden sicherzustellen.

4.2.1 Kalibrierung der Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“

In der Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“ entstehen die Gammaquanten durch radioaktiven Zerfall im umgebenden, großen Wasservolumen. Diese werden durch Wechselwirkungen in Wasser, hauptsächlich durch Photo- oder Comptoneffekt, absorbiert oder gestreut. Daher erreichen sie die Sonde selten direkt.

Die von der Gammastrahlungsenergie abhängige, verfahrensbezogene totale Nachweiswahrscheinlichkeit ist als das Verhältnis aller im betrachteten Energiebereich pro Zeit registrierten Impulse zur Anzahl der pro Zeit und Wasservolumen emittierten Photonen definiert.

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = \frac{R_{t,n}}{c \cdot p_\gamma(E_\gamma)} \quad (1)$$

Dabei bedeuten:

$\varepsilon_t(E_\gamma)$ verfahrensbezogene totale Nachweiswahrscheinlichkeit, abhängig von der Gammastrahlungsenergie E_γ des Referenznuklids, in $\text{m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;

$R_{t,n}$ totale Nettozählrate im betrachteten Energiebereich, in s^{-1} ;

c Aktivitätskonzentration, in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

$p_\gamma(E_\gamma)$ Emissionsintensität der Gammalinie.

Mittels einer einmaligen energieabhängigen Kalibrierung mit den Radionukliden K-40, Mn-54, Ru-106/Rh-106 und Ce-144 konnte gezeigt werden, dass die verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ im betrachteten Energiebereich zwischen 0,3 MeV und 1,5 MeV, in dem die Gammastrahlungsenergien relevanter Radionuklide liegen, mit einem mittleren Wert von $3 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ nahezu konstant ist (siehe Tabelle 1 und Abbildung 2).

Anmerkung:

Die Durchführung dieser einmaligen Kalibrierung ist im Anhang A detailliert erläutert. Diese Kalibrierung kann auch über Monte Carlo-Simulationen erfolgen.

Abbildung 2 zeigt die bei den einzelnen Gammastrahlungsenergien berechneten Nachweiswahrscheinlichkeiten und die daraus interpolierte Kalibrierkurve.

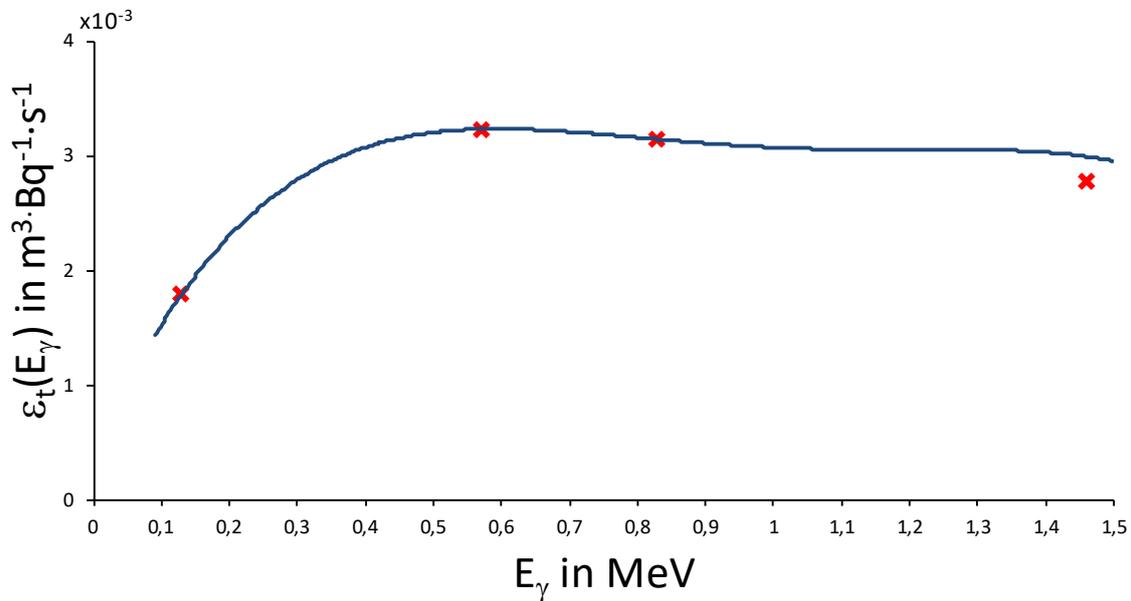


Abb. 2: Darstellung der verfahrensbezogenen, totalen Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ für die Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“.

Dies bedeutet zum einen, dass eine Kalibrierung alleine mit Kalium-40 (K-40) für die Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“ im Allgemeinen hinreichend repräsentativ ist, zum anderen, dass die energieabhängige, verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ im Grunde genommen nahezu energieunabhängig ist.

Anmerkung:

Vereinfacht gesehen besteht $\varepsilon_t(E_\gamma)$ aus zwei Faktoren:

- der energieabhängigen Schwächung eines Gammaquants auf dem Weg durch das Meerwasser bis zur Detektoroberfläche;
- der energieabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeit, dass ein am Detektor angekommenes Gammaquant in diesem auch nachgewiesen wird.

Faktor a) nimmt bei steigender Gammastrahlungsenergie ab, so dass ein größeres Messvolumen erfasst wird. Faktor b) nimmt dagegen bei abnehmender Gammastrahlungsenergie zu, so dass die ankommende Gammastrahlung aus dem kleiner werdenden Messvolumen zunehmend effektiver gemessen wird. Diese beiden Faktoren sind gegenläufig; ihr Produkt bleibt deswegen in der beschriebenen Messanordnung im Energiebereich 0,3 MeV bis 1,5 MeV nahezu konstant.

In Tabelle 1 sind die in Abbildung 2 dargestellten, verfahrensbezogenen totalen Nachweiswahrscheinlichkeiten $\varepsilon_t(E_\gamma)$ nach Gleichung (1) für die Gammastrahlungsenergien relevanter Radionuklide gelistet.

Tab. 1: Auswahl relevanter Radionuklide mit zugehörigen Kalibrierdaten für die Kalibrierung der Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“

Radionuklid	Radionukliddaten [6]		verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit
	E_γ in MeV	p_γ	$\varepsilon_t(E_\gamma)$ in $\text{m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
K-40	1,46	0,11	$2,8 \cdot 10^{-3}$
Mn-54	0,83	1,0	$3,2 \cdot 10^{-3}$
Zn-65	1,12	0,50	$3,1 \cdot 10^{-3}$
Ru-106	0,51	0,21	$3,2 \cdot 10^{-3}$
	0,62	0,10	$3,2 \cdot 10^{-3}$
	1,06	0,015	$3,1 \cdot 10^{-3}$
I-131	0,36	0,81	$3,0 \cdot 10^{-3}$
	0,64	0,07	$3,2 \cdot 10^{-3}$
Cs-134	0,60	0,98	$3,2 \cdot 10^{-3}$
	0,80	0,85	$3,2 \cdot 10^{-3}$
	0,57	0,15	$3,2 \cdot 10^{-3}$
Cs-137	0,66	0,85	$3,2 \cdot 10^{-3}$
Ce-144	0,13	0,11	$1,9 \cdot 10^{-3}$

Aus Spalte 4 in Tabelle 1 ist ersichtlich, dass jedes Radionuklid als Strahlenquelle eingesetzt werden kann, das mindestens eine Gammastrahlungsenergie zwischen 0,3 MeV und 1,5 MeV aufweist. Für die Kalibrierung wird üblicherweise K-40 als Referenznuclid eingesetzt, weil es neben seiner Eigenschaft als Einliniennuclid noch folgende Kriterien erfüllt:

- gute Löslichkeit in Wasser;
- unproblematische Beschaffung in größerer Menge;
- Handhabbarkeit außerhalb geltender Strahlenschutzauflagen.

Für die Berechnung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration wird für den verfahrensbezogenen Kalibrierfaktor φ der reziproke Wert der verfahrensbezogenen, totalen Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ verwendet:

$$\varphi = \frac{1}{3,0 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}} = 333,33 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$$

4.2.2 Kalibrierung der Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“

Eine Kalibrierung von im Schiffskoker montierten Sonden lässt sich wegen der Messgeometrie im Labor nicht realisieren. Deshalb wird die Kalibrierung für einen spezifischen Schiffskoker direkt auf See durchgeführt und für alle baugleichen Schiffskoker übernommen.

Anmerkung:

Die Durchführung dieser Kalibrierung ist in Anhang A beschrieben. Diese Kalibrierung kann auch über Monte Carlo-Simulationen erfolgen.

Die verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ der Gammastrahlungsenergie von K-40 wird ebenfalls nach Gleichung (1) berechnet; es liegt hier jedoch eine andere Messgeometrie zugrunde. Für die in der Leitstelle verwendeten Schiffskoker gilt der Wert:

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = 1,185 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

Bei der Berechnung der verfahrensbezogenen, totalen Nachweiswahrscheinlichkeit für die Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“ nach Gleichung (1) dienen die Zählraten, die im Meerwasser gemessen werden, als Bruttozählrate und die Zählraten, die im Süßwasser erhalten werden, als Nulleffektzählrate. Die K-40-Aktivitätskonzentration im Meer ist durch den Salzgehalt im Meerwasser vorgegeben, siehe Anhang A.3 und Literatur [4].

Für die Berechnung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration wird für den verfahrensbezogenen Kalibrierfaktor φ der reziproke Wert von $\varepsilon_t(E_\gamma)$ verwendet:

$$\varphi = \frac{1}{1,185 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}} = 843,88 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$$

4.3 Messung

Die Messung erfolgt kontinuierlich im Meerwasser. Zur Auswertung wird der in Abschnitt 3.1 beschriebene Unterschied der Gammastrahlungsenergien natürlicher und künstlicher Radionuklidgemische genutzt. Dazu wird das Zählratenverhältnis zweier Zählraten $R_{b,A}$ und $R_{b,B}$ der Energiebereiche A und B ermittelt, wobei im Energiebereich A nur Gammastrahlung mit Energien kleiner als 900 keV registriert wird (Abbildung 3); die Gammastrahlungsenergien künstlicher radioaktiver Stoffe liegen überwiegend in diesem Energiebereich. Bei einem Eintrag natürlicher radioaktiver Stoffe aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe nehmen die Zählraten der beiden Energiebereiche in dem für das Spektrum der Rn-222-Folgeprodukte charakteristischen Verhältnis zu.

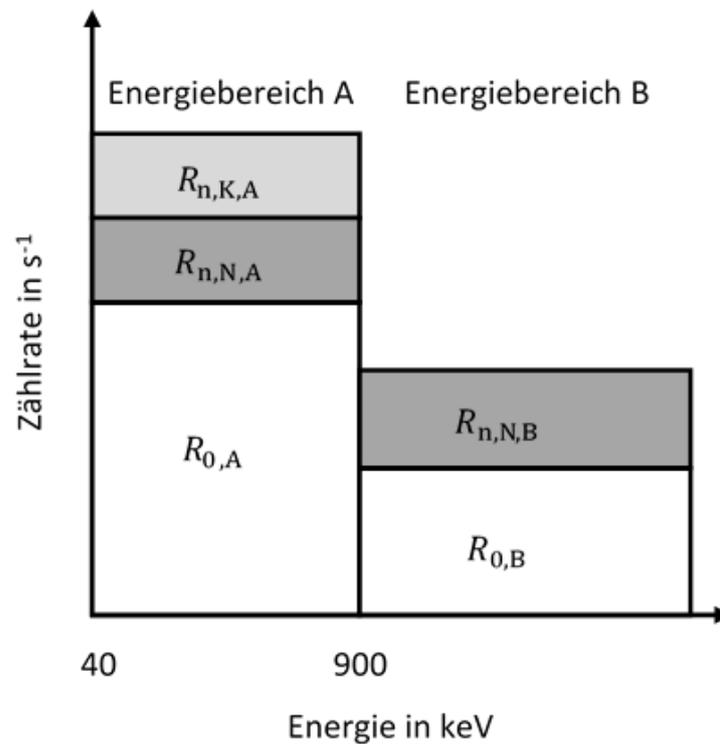


Abb. 3: Schematische Darstellung der Aufteilung der Gesamtbruttozählrate R_b im Gammastrahlungsspektrum auf zwei Gammastrahlungsenergiebereiche A und B

Von der Sonde werden die verrechneten Werte der Gesamtbruttozählrate, $R_b = R_{b,A} + R_{b,B}$, und des Zählratenverhältnisses, $q_b = R_{b,A}/R_{b,B}$, das Impulshöhenspektrum und bei Küstenstationen auch die Wasserüberdeckung der Sonde im Regelfall stündlich, z. B. über Mobilfunk, von der Messstation automatisch zum Zentralrechner der Leitstelle übertragen und dort vorausgewertet.

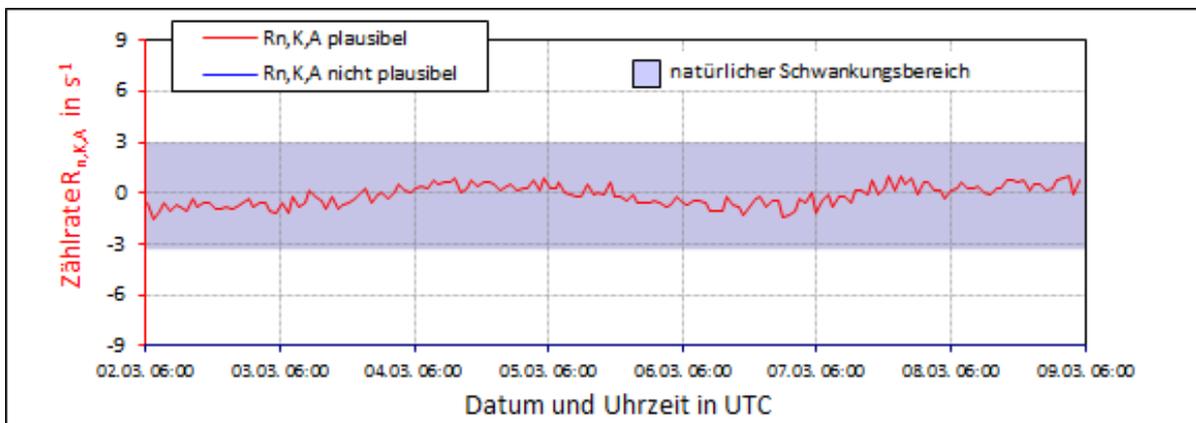
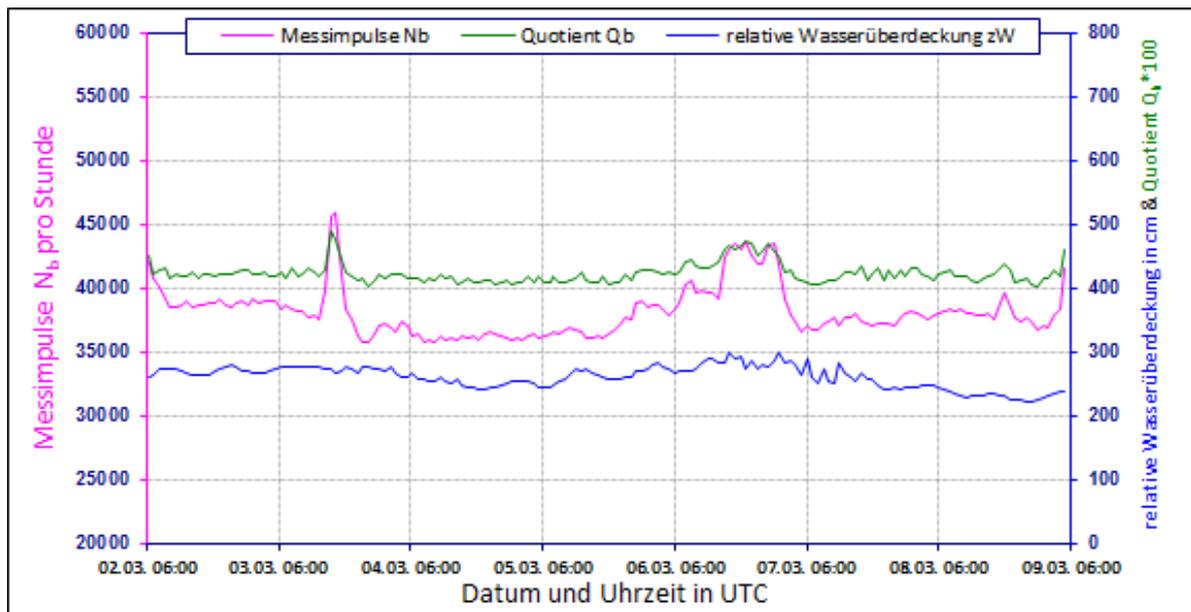
Wird im Rahmen der automatischen Vorauswertung die Überschreitung des Schwellenwerts für die Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, $R_{n,K,A}$, von $3 s^{-1}$ festgestellt, wird die Leitstelle auf elektronischem Weg alarmiert, um die Datensätze schnellstmöglich zu prüfen und eventuelle Systemfehler, z. B. bei der Datenübertragung bzw. Hardware, auszuschließen.

Im Rahmen des IMIS-Routinemessprogramms werden die Messdatensätze grundsätzlich arbeitstäglich graphisch dargestellt, im Rahmen des IMIS-Intensivmessprogramms stündlich. Die Daten werden manuell ausgewertet, plausibilisiert und die Ergebnisse anschließend an das IMIS weitergeleitet. Eine Auswertung des Tagesspektrums des Vortages ist zu Vergleichszwecken möglich.

Abbildung 4 zeigt beispielhaft die graphische Darstellung eines Wochendatensatzes.

Anmerkung:

Ergeben sich aus der graphischen Darstellung Hinweise auf einen Eintrag künstlicher Radionuklide, kann in den entsprechenden Impulshöhenspektren eine nuklidspezifische Auswertung künstlicher Radionuklide nach D-γ-GESAMT-MWASS-02 zur Abschätzung deren Aktivitätskonzentration erfolgen.



	Tages-Mittelwerte nach AVV-IMIS							Woche
	02.03.	03.03.	04.03.	05.03.	06.03.	07.03.	08.03.	10
$R_{n,K,A}$ in s^{-1}	- 0,79	- 0,29	0,49	- 0,13	- 0,67	0,13	0,45	- 0,12
$c_{G\gamma}$ in $Bq \cdot m^{-3}$	- 236,88	- 88,29	148,14	- 38,69	- 202,45	38,09	135,80	- 34,92
$u_{rel}(c_{G\gamma})$ in %	9	24	14	55	11	57	16	23

Abb. 4: Messreihe der Station Kühlungsborn:

- oben: violett – Gesamtbruttoimpulsanzahl N_b pro Stunde,
grün – Quotient q_b ,
blau – relative Wasserüberdeckung z_w ;
- Mitte: blaugrau – natürlicher Schwankungsbereich,
rot – Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, $R_{n,K,A}$;
- unten: tabellarische Darstellung der Tagesmittelwerte der Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, $R_{n,K,A}$, der berechneten künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration $c_{G\gamma}$ und der dazu ermittelten relativen Standardunsicherheit $u_{rel}(c_{G\gamma})$.

4.4 Untergrund

4.4.1 Untergrundstrahlung

Die In-situ-Überwachung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration wird allgemein dadurch erschwert, dass die Intensität der natürlichen Untergrundstrahlung nicht konstant ist. Sie wird hauptsächlich durch zwei Aspekte beeinflusst:

- Aufgrund starker Niederschläge kommt es häufig zu kurzzeitigen, hohen Konzentrationen natürlicher Radionuklide im Meerwasser, insbesondere von Rn-222-Folgeprodukten aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe.

Anmerkung:

Weitere Informationen zur gammaspektrometrischen Bestimmung natürlicher Radionuklide sind dem Allgemeinen Kapitel γ -SPEKT/NATRAD dieser Messanleitungen zu entnehmen.

- Ein Bewuchs der Sonden beispielsweise durch Seepocken, Algen und Muscheln erhöht die Nulleffektzählrate, da sich die radioaktiven Stoffe im Bewuchs anreichern. Dies kann durch Antifoulinganstrich oder Beschichtung zum Schutz vor Bewuchs sowie durch halbjährliches Entfernen des Bewuchses eingegrenzt werden.

In Einzelfällen können die Höhenstrahlung und die Wassertrübung geringfügige Auswirkungen auf die Zählraten der Untergrundstrahlung haben.

4.4.2 Nulleffekt

4.4.2.1 Nulleffekt bei Kalibrierung

Für die Bestimmung der verfahrensbezogenen, totalen Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ nach Gleichung (1) werden für die Messanordnungen „Sonde frei im Wasser hängend“ und „Sonde im Schiffskoker“ unterschiedliche Nulleffektzählraten verwendet:

- Für die Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“ wird die Nulleffektzählrate bei Verwendung von Leitungswasser zugrunde gelegt,
- für die Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“ die Nulleffektzählrate, die bei der Befahrung einer Binnenwasserstraße in Süßwasser gemessen wird.

Dies wird im Anhang A näher erläutert.

4.4.2.2 Nulleffekt des Screeningverfahrens

Im Unterschied zur Definition des Nulleffektes nach dem Glossar der Messanleitungen ist im vorliegenden Verfahren der Nulleffekt die von der Messeinrichtung registrierte Gesamtbruttozählrate infolge der Strahlung aus der Umgebung des Detektors, so lange kein zusätzlicher Beitrag künstlicher Radionuklide aufgrund eines aktuellen Ereignisses vorliegt.

5 Berechnung der Analysenergebnisse

Aus dem stündlich übertragenen Impulshöhenspektrum werden die Gesamtbruttoimpulsanzahl N_b sowie der aus den Zählraten der beiden Energiebereiche A und B berechnete Quotient q_b zur Auswertung herangezogen.

5.1 Gleichungen zur Berechnung

5.1.1 Ergebnisgröße

Die Gesamtbruttozählrate R_b ist nach Gleichung (2) die Summe aus den Bruttozählraten in den Energiebereichen A und B:

$$R_b = R_{b,A} + R_{b,B} \quad (2)$$

Dabei bedeuten:

- R_b Gesamtbruttozählrate, in s^{-1} ;
- $R_{b,A}$ Bruttozählrate im Energiebereich A, in s^{-1} ;
- $R_{b,B}$ Bruttozählrate im Energiebereich B, in s^{-1} .

Sie kann auch über die Bruttoimpulsanzahlen gemäß Gleichung (3) errechnet werden:

$$R_b = \frac{N_b}{t_m} = \frac{N_{b,A} + N_{b,B}}{t_m} \quad (3)$$

Dabei bedeuten:

- N_b Gesamtbruttoimpulsanzahl;
- $N_{b,A}$ Bruttoimpulsanzahl im Energiebereich A;
- $N_{b,B}$ Bruttoimpulsanzahl im Energiebereich B;
- t_m Messdauer, in s.

Im Routinebetrieb entspricht die Gesamtbruttozählrate R_b üblicherweise der Summe der einzelnen Nulleffektzählraten und damit der Gesamtnulleffektzählrate R_0 :

$$R_b = R_{0,A} + R_{0,B} = R_0 \quad (4)$$

Dabei bedeuten:

- R_0 Gesamtnulleffektzählrate, in s^{-1} ;
- $R_{0,A}$ Nulleffektzählrate im Energiebereich A, in s^{-1} ;
- $R_{0,B}$ Nulleffektzählrate im Energiebereich B, in s^{-1} .

Gelangen natürliche radioaktive Stoffe z. B. aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe und künstliche radioaktive Stoffe in das Meerwasser, so ändert sich die Zusammensetzung der Bruttozählraten in den einzelnen Energiebereichen. Im Energiebereich A, der Gammastrahlungsenergien bis zu einer Energie von 900 keV erfasst, setzt sich die in diesem Energiebereich laufend gemessene Bruttozählrate $R_{b,A}$ aus folgenden Komponenten zusammen:

$$R_{b,A} = R_{0,A} + R_{n,N,A} + R_{n,K,A} \quad (5)$$

Dabei bedeuten:

$R_{n,N,A}$ Nettozählrate infolge natürlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, in s^{-1} ;

$R_{n,K,A}$ Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, in s^{-1} .

Im Energiebereich B tragen die künstlichen radioaktiven Stoffe vernachlässigbar zur Bruttozählrate $R_{b,B}$ bei, die sich nach Gleichung (6) beschreiben lässt.

$$R_{b,B} = R_{0,B} + R_{n,N,B} \quad (6)$$

mit

$R_{n,N,B}$ Nettozählrate infolge natürlicher Gammastrahlung im Energiebereich B, in s^{-1} .

Für die Berechnung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration müssen beide Energiebereiche miteinander in Relation gesetzt werden. Dazu werden drei Quotienten gebildet:

— der Quotient q_0 aus den Nulleffektbeiträgen der beiden Energiebereiche nach Gleichung (7):

$$q_0 = \frac{R_{0,A}}{R_{0,B}} \quad (7)$$

Anmerkung:

Der Quotient q_0 wird bei Bedarf stationsspezifisch als Mittelwert über den Zeitraum eines Tages ohne besondere Auffälligkeiten in den Messdaten bestimmt.

— der Quotient $q_{n,N}$ aus den Nettozählraten infolge natürlicher Gammastrahlung nach Gleichung (8):

$$q_{n,N} = \frac{R_{n,N,A}}{R_{n,N,B}} \quad (8)$$

Anmerkung:

Der Quotient $q_{n,N}$ für die natürlichen Radionuklide wird einmalig mit Hilfe von Gleichung (9) aus der Messung bei einem starken Eintrag natürlicher radioaktiver Stoffe, z. B. bei einem Gewitterregen, ermittelt.

— der Quotient q_b der Bruttozählraten der Energiebereich A und B nach Gleichung (9):

$$q_b = \frac{R_{b,A}}{R_{b,B}} = \frac{R_b}{R_{b,B}} - 1 \quad (9)$$

Aus den Gleichungen (2) bis (9) lässt sich die Nettozählrate $R_{n,K,A}$ infolge künstlicher Gammastrahlung durch Umformung nach Gleichung (10) darstellen:

$$R_{n,K,A} = R_b \cdot \left(1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_b}\right) - R_0 \cdot \left(1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_0}\right) = R_b \cdot f_1 - R_0 \cdot f_3 \quad (10)$$

Mit den Gleichungen (9) und (2) können die miteinander zusammenhängenden Größenwerte q_b und R_b eliminiert werden, indem sie auf $R_{b,A}$ und $R_{b,B}$ zurückgeführt werden, wobei $R_{b,A}$ die Rolle der Bruttozählrate übernimmt.

$$R_{n,K,A} = R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N} - R_0 \cdot \left(1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_0}\right) = R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N} - R_0 \cdot f_3 \quad (11)$$

Eine wechselnde Wasserüberdeckung schirmt die Höhenstrahlung gegenüber der Sonde unterschiedlich stark ab und beeinflusst die registrierte Nulleffektzählrate R_0 . Um solche Nulleffektänderungen rechnerisch zu eliminieren, wird an den davon betroffenen Küstenstationen mit Hilfe eines Drucksensors stündlich die aktuelle Wasserüberdeckung z_w registriert und mit der mittleren Wasserüberdeckung \bar{z}_w verglichen. An diesen Stationen wird dann anstelle der Nulleffektzählrate R_0 eine korrigierte Nulleffektzählrate R'_0 mit einem empirisch ermittelten linearen Schwächungskoeffizienten μ nach Gleichung (12) verwendet.

$$R'_0 = R_0 \cdot e^{\mu \cdot (\bar{z}_w - z_w)} = R_0 \cdot f_4 \quad (12)$$

Anmerkung:

- Der lineare Schwächungskoeffizient μ wird stationsspezifisch empirisch ermittelt und liegt zwischen $0,012 \text{ dm}^{-1}$ und $0,004 \text{ dm}^{-1}$.
- Der Korrekturfaktor f_4 wird nur bei einer Wasserüberdeckung zwischen 10 dm und 15 dm berücksichtigt; er nimmt dann einen Wert ungleich 1 an. Ist die Wasserüberdeckung größer als 15 dm nimmt der Korrekturfaktor f_4 den Wert 1 an.
- Bei einer Wasserüberdeckung von weniger als 10 dm werden die Messwerte verworfen.

Deshalb wird bei wechselnden Wasserständen zur Berechnung von $R_{n,K,A}$ der Wert R_0 aus Gleichung (11) durch den korrigierten Wert für R'_0 aus Gleichung (12) ersetzt.

$$R_{n,K,A} = R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N} - R'_0 \cdot \left(1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_0}\right) = R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N} - R_0 \cdot f_3 \cdot f_4 \quad (13)$$

Die künstliche Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration im Meerwasser $c_{G\gamma}$ wird über die mittels Gleichung (13) bestimmte Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung $R_{n,K,A}$ nach Gleichung (14) berechnet:

$$c_{G\gamma} = \varphi \cdot R_{n,K,A} = \varphi \cdot (R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N} - R_0 \cdot f_3 \cdot f_4) \quad (14)$$

In den Gleichungen (10) bis (14) bedeuten:

$c_{G\gamma}$ künstliche Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration, in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

φ verfahrensbezogener Kalibrierfaktor, in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$,

mit

$\varphi = 333,33 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ für Sonde frei im Wasser hängend;

$\varphi = 843,88 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$ für Sonde im Schiffskoker;

$R_{n,K,A}$ Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A, in s^{-1} ;

μ linearer Schwächungskoeffizient, in dm^{-1} ;

z_w aktuelle Wasserüberdeckung, in dm;

\bar{z}_w mittlere Wasserüberdeckung, in dm;

f_1 verfahrensbedingter Wichtungsfaktor der Gesamtbruttozählrate:

$$f_1 = 1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_b} = \frac{R_{b,A} - R_{b,B} \cdot q_{n,N}}{R_b}$$

f_3 verfahrensbedingter Wichtungsfaktor der Gesamtnulleffektzählrate:

$$f_3 = 1 - \frac{1 + q_{n,N}}{1 + q_0}$$

f_4 Korrektionsfaktor für die Gesamtnulleffektzählrate bei wechselnder Wasserüberdeckung:

$$f_4 = e^{\mu \cdot (\bar{z}_w - z_w)}$$

mit $f_4 = 1$ bei einer Wasserüberdeckung oberhalb von 15 dm.

Der radioaktive Zerfall kann bei diesem Screeningverfahren nicht berücksichtigt werden, weil die Radionuklidzusammensetzung unbekannt ist.

5.1.2 Standardunsicherheit der Ergebnisgröße

Für die Berechnung der Standardunsicherheit der Ergebnisgröße sind zunächst die Standardunsicherheiten $u(N_{b,A})$ und $u(N_{b,B})$ zu berechnen:

$$u(N_{b,A}) = \sqrt{N_{b,A}} \quad (15)$$

$$u(N_{b,B}) = \sqrt{N_{b,B}} \quad (16)$$

Die Berechnung der Standardunsicherheit $u(c_{G\gamma})$ der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration ist nicht trivial und in Gleichung (17) über Einzelterme T_i dargestellt.

$$u(c_{G\gamma}) = \sqrt{T_1 + T_2 + T_3 \cdot (T_4 + T_5 + T_6 + T_7 + T_8 + T_9)} \quad (17)$$

Die Einzelterme T_i sind in den Gleichungen (18) bis (26) beschrieben:

$$T_1 = c_{G\gamma}^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(\varphi) \quad (18)$$

$$T_2 = c_{G\gamma} \cdot \frac{\varphi}{t_m} \quad (19)$$

$$T_3 = \varphi^2 \quad (20)$$

$$T_4 = \frac{1}{t_m} \cdot (R_{b,B} \cdot q_{n,N} + R_0 \cdot f_3 \cdot f_4) \quad (21)$$

$$T_5 = q_{n,N}^2 \cdot \frac{R_{b,B}}{t_m} \quad (22)$$

$$T_6 = f_3^2 \cdot f_4^2 \cdot \frac{R_0}{t_0} \quad (23)$$

$$T_7 = \left(\frac{R_0 \cdot f_4}{1 + q_0} - R_{b,B} \right)^2 \cdot u^2(q_{n,N}) \quad (24)$$

$$T_8 = \frac{R_0^2 \cdot f_4^2 \cdot (1 + q_{n,N})^2}{(1 + q_0)^4} \cdot u^2(q_0) \quad (25)$$

$$T_9 = R_0^2 \cdot f_3^2 \cdot u^2(f_4) \quad (26)$$

In den Gleichungen (18) bis (26) bedeuten:

$u(c_{G\gamma})$ Standardunsicherheit der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration, in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

$u_{\text{rel}}(\varphi)$ relative Standardunsicherheit des verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors;

$u_{\text{rel}}(q_{n,N})$ relative Standardunsicherheit des Quotienten infolge natürlicher Gammastrahlung;

$u(f_4)$ Standardunsicherheit des Korrektionsfaktors für die Schwächung der Höhenstrahlung,

$$\text{mit: } u(f_4) = f_4 \cdot \sqrt{(\bar{z}_w - z_w)^2 \cdot u^2(\mu) + \mu^2 \cdot (u^2(\bar{z}_w) + u^2(z_w))}$$

t_m	Messdauer, in s;
t_0	Messdauer des Nulleffekts, in s.

Auf die Gleichung zur Berechnung der Standardunsicherheit bei variablen Wasserüberdeckungen wird hier aufgrund der Komplexität der Berechnung verzichtet.

5.2 Rechenbeispiel

Im nachstehenden Rechenbeispiel werden die Zwischenergebnisse und das Endergebnis mit vier signifikanten Stellen angegeben. Abweichungen von den im Rechenbeispiel berechneten Werten sind bei der Verwendung einer anderen Anzahl von signifikanten Stellen möglich.

Für das Rechenbeispiel mit der Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“ werden die nachstehenden Zahlenwerte verwendet:

N_0	=	32 004;	$N_{b,A}$	=	52 346;
t_0	=	3 600 s;	$N_{b,B}$	=	7 992;
R_0	=	8,89 s ⁻¹ ;	t_m	=	3 600 s;
φ	=	333,33 Bq·s·m ⁻³ ;	$u_{rel}(\varphi)$	=	0,05;
q_0	=	3,39;	$u_{rel}(q_0)$	=	0,01;
$q_{n,N}$	=	14;	$u_{rel}(q_{n,N})$	=	0,01;
f_3	=	-2,417;			
f_4	=	1,0665;	$u(f_4)$	=	0,001925.

Damit folgt für die Nettozählrate infolge künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich A nach Gleichung (13):

$$R_{n,K,A} = \frac{52\,346}{3\,600\text{ s}} - \frac{7\,992}{3\,600\text{ s}} \cdot 14 - 8,89\text{ s}^{-1} \cdot (-2,417) \cdot 1,0665 = 6,377\text{ s}^{-1}$$

Die Gesamt-Gamma Aktivitätskonzentration $c_{G\gamma}$ wird nach Gleichung (14) erhalten:

$$c_{G\gamma} = 6,377\text{ s}^{-1} \cdot 333,33\text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3} = 2\,126\text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Mit den Werten für die Einzelterme aus den Hilfsgleichungen (18) bis (26)

$$T_1 = (2\,126\text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3})^2 \cdot 0,05^2 = 11\,300\text{ Bq}^2 \cdot \text{m}^{-6}$$

$$T_2 = 2\,126\text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \frac{333,33\text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}}{3\,600\text{ s}} = 196,8\text{ Bq}^2 \cdot \text{m}^{-6}$$

$$T_3 = (333,33 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3})^2 = 111\,109 \text{ Bq}^2 \cdot \text{s}^2 \cdot \text{m}^{-6}$$

$$T_4 = \frac{1}{3\,600 \text{ s}} \cdot \left(\frac{7\,992}{3\,600 \text{ s}} \cdot 14 + 8,89 \text{ s}^{-1} \cdot (-2,417) \cdot 1,0665 \right) = 2,268 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-2}$$

$$T_5 = 14^2 \cdot \frac{7\,992}{(3\,600 \text{ s})^2} = 0,1209 \text{ s}^{-2}$$

$$T_6 = (-2,417)^2 \cdot 1,0665^2 \cdot \frac{8,89 \text{ s}^{-1}}{3\,600 \text{ s}} = 0,01641 \text{ s}^{-2}$$

$$T_7 = \left(\frac{8,89 \text{ s}^{-1} \cdot 1,0665}{1 + 3,39} - \frac{7\,992}{3\,600 \text{ s}} \right)^2 \cdot (0,01 \cdot 14)^2 = 71,21 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-2}$$

$$T_8 = \frac{(8,89 \text{ s}^{-1})^2 \cdot 1,0665^2 \cdot (1 + 14)^2}{(1 + 3,39)^4} \cdot (0,01 \cdot 3,39)^2 = 0,06258 \text{ s}^{-2}$$

$$T_9 = (8,89 \text{ s}^{-1})^2 \cdot (-2,417)^2 \cdot 0,001925^2 = 1,711 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-2}$$

wird die Standardunsicherheit $u(c_{\text{G}\gamma})$ der Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration nach Gleichung (17) berechnet:

$$u(c_{\text{G}\gamma}) = \sqrt{11\,300 + 196,8 + 111\,109 \cdot 0,2039} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 184,8 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Die Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration beträgt damit:

$$c_{\text{G}\gamma} = (2\,126 \pm 185) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Das Rechenbeispiel gilt in analoger Weise für die Berechnung der künstlichen Gesamt-Gamma-Aktivitätskonzentration mit einer Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“. Es muss hierfür lediglich der entsprechende verfahrensbezogene, schiffsspezifische Kalibrierfaktor verwendet werden.

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Standardunsicherheit des Analyseergebnisses beinhaltet die Standardunsicherheiten der Zählstatistik und der Kalibrierung. Ein möglicher Beitrag künstlicher Gammastrahlung im Energiebereich B wird bei der Unsicherheitsbetrachtung im Rahmen des Screenings nicht berücksichtigt. Die Standardunsicherheit der Messdauer wird vernachlässigt.

6 Charakteristische Grenzen des Verfahrens

Bei diesem Screeningverfahren wird auf die Berechnung der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze nach der Normenreihe DIN EN ISO 11929 verzichtet [7].

Falls diese jedoch von Interesse wären, können sie mittels einer Projektdatei zum Programm UncertRadio (siehe Abschnitt 7.2) berechnet werden.

7 Softwaregestützte Auswertung

7.1 Ansicht des Excel-Tabellenblatts

Aufgrund der Komplexität der Berechnung steht kein Excel-Tabellenblatt zur Verfügung.

7.2 Ansicht der UncertRadio-Resultatseite

The screenshot shows the 'Resultate' (Results) tab of the UncertRadio software. The window title is 'UR UncertRadio: Calculation of uncertainty budget and detection limits - D-gamma-GESAMT-MWASS-01_V2021_11.txp'. The interface includes a menu bar (Datei, Bearbeiten, Optionen, Hilfe) and a toolbar with icons for file operations and a 'Save to csv' button. The main content area is divided into several sections:

- Gesamtes Messergebnis für cGg :**
 - Wert der Ergebnisgröße: 2125,2 Bq/m³
 - erweiterte (Std.-)Unsicherheit: 184,78 Bq/m³
 - relative erw.(Std.-)Unsicherheit: 8,6948 %
 - Beste Schätzwerte nach Bayes: min. Coverage-Intervall
 - Wert der Ergebnisgröße: 2125,2 Bq/m³
 - erweiterte (Std.-)Unsicherheit: 184,78 Bq/m³
 - untere Bereichsgrenze: 1763,0 Bq/m³
 - obere Bereichsgrenze: 2487,4 Bq/m³
- Erweiterungsfaktor k: 1,0**
- Wahrscheinlichkeit (1-gamma): 0,950**
- Erkennungs- und Nachweisgrenze für cGg :**
 - Erkennungsgrenze (EKG): 451,6 Bq/m³ Iterationen: 1
 - Nachweisgrenze (NWG): 706,2 Bq/m³ Iterationen: 5
- k_alpha=3.000, k_beta=1.645 Methode: ISO 11929:2019, iterativ**

Below this, the **Monte Carlo Simulation** section is visible:

- Anzahl der simul. Messungen: 100000
- Anzahl der Runs: 1
- Werte <0 einbezogen
- min. Coverage-Intervall
- relSD%:
- primärer Messwert: 2125,7 Bq/m³ 0,027
- Unsichh. primärer Messwert: 184,09 Bq/m³ 0,224
- Wert der Ergebnisgröße: 2125,7 Bq/m³ 0,027
- erweiterte Unsicherheit: 184,09 Bq/m³ 0,224
- relative erw.(Std.-)Unsicherheit: 8,660 %
- untere Bereichsgrenze: 1776,9 Bq/m³ 0,088
- obere Bereichsgrenze: 2495,1 Bq/m³ 0,062
- Erkennungsgrenze (EKG): 454,60 Bq/m³ 0,873
- Nachweisgrenze (NWG): 707,39 Bq/m³ 0,580
- aktiver Run: 1
- IT: 11
- Start MC button

The status bar at the bottom shows 'Projekt: -gamma-GESAMT-MWASS-01\D-gamma-GESAMT-MWASS-01_V2021_11.txp' and 'Fertig!' (Finished!).

Die zugehörige UncertRadio-Projektdatei ist auf der Internetseite dieser Messanleitung verfügbar.

8 Verzeichnis der Chemikalien und Geräte

8.1 Chemikalien

Das für dieses Verfahren verwendete Kaliumchlorid, KCl, sollte analysenrein sein.

8.2 Geräte

Für das Verfahren wird folgende Ausstattung benötigt:

- Drucksensoren für Wasserstandsmessung;
- Messeinrichtung mit beispielsweise:
 - einem 3" x 3" NaI(Tl)-Detektor mit einer Auflösung von 7 % für Cs-137;
 - einem Vielkanalanalysator mit 2 048 Kanälen;
- Kalibrierbehälter der Größe 3 m x 3 m x 2,7 m mit einem Volumen von etwa 25 m³;
- Kalibrierbehälter mit einem Volumen von 1 m³.

Literatur

- [1] Wedekind, C., Schilling, G., Grützmüller, M., Becker, K.: *Neues Messverfahren zur Überwachung der Radioaktivität des Meeres im Bundes-Messnetz des BSH*. In: Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): 10. Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Hamburg, 28. - 30. April 1998, S. 41-45.
- [2] Wedekind, C., Schilling, G., Grützmüller, M., Becker, K.: *Gamma-radiation monitoring network at sea*. Applied Radiation and Isotopes, 1999, Vol. 50 (4), S. 733-741.
- [3] Wedekind, C., Becker, K., Schilling, G., Grützmüller, M.: *Marine environmental radioactivity monitoring by "in-situ" γ-radiation detection*. Kerntechnik, 2000, Vol. 65 (4), S. 190-194.
- [4] *Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt (IMIS) nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS)*. Bundesanzeiger, 2006, Nr. 244a, S. 4-80.
- [5] Wedekind, C.: *Gamma-ray spectrometer probe for the measurement of radioactive pollution in the sea*. Health Physics, 1973, Vol. 25 (1), S. 51-58.
- [6] Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB): *Nucléide - Lara: Library for gamma and alpha emissions*. In: Atomic and Nuclear data. Letztes Update am 21.09.2021. Verfügbar unter: <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/module-lara/>. [Letzter Zugriff am 12.11.2021].
- [7] Normenreihe DIN EN ISO 11929:2021, *Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Überdeckungsintervalls) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen (Teile 1 bis 3)*.

Anhang A

Durchführung einer Kalibrierung von Sonden in unterschiedlichen Geometrien für die Screeningmethode

A.1 Allgemein

Die Erstkalibrierung der Sonde ist für zwei in der praktischen Anwendung vorkommende Messanordnungen erforderlich. Die häufigste Messanordnung ist die, bei der die Sonde frei im Meerwasser hängt. Es besteht jedoch auch die Möglichkeit, die Sonde in einer rohr- oder schachtartigen Vorrichtung im Schiffsrumpf, einem sogenannten „Koker“, zu betreiben.

Die für die Messanordnungen „Sonde frei im Wasser hängend“ und „Sonde im Schiffskoker“ in der Leitstelle durchgeführten Erstkalibrierungen sind nachfolgend beschrieben.

A.2 Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“

A.2.1 Kalibrierung mit dem Einliniennuklid Kalium-40

Die Kalibrierung erfolgt in einem ausreichend großen Behälter, der die Kalibrierlösung enthält. Die Wahl des zur Kalibrierung verwendeten Radionuklids fällt auf Kalium-40 (K-40), weil es neben seiner Eigenschaft als Einliniennuklid noch folgende Kriterien erfüllt:

- gute Löslichkeit in Wasser;
- unproblematische Beschaffung in größerer Menge;
- Handhabbarkeit außerhalb geltender Strahlenschutzauflagen,

Als Kalibrierlösung wird eine Kaliumchloridlösung verwendet, da Kaliumchlorid natürlicherweise K-40 mit einer spezifischen Aktivität von $16\,566\text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ enthält. Die Gammastrahlungsenergie von K-40 beträgt $1\,461\text{ keV}$ mit einer Gamma-Emissionsintensität von $0,1055$. Die Nulleffektmessung erfolgt in Leitungswasser.

Im Falle dieser Kalibrierung mit K-40 muss aufgrund der hohen Gammastrahlungsenergie ein Abstand der Sonde zur Behälterwand von mindestens 1 m eingehalten werden. In diesem Behälter mit einem Fassungsvermögen von z. B. 25 m^3 ist die Sonde mit einem $3'' \times 3''$ NaI(Tl)-Detektor im Wasser zentral und frei hängend angebracht.

Die verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit der Gammastrahlungsenergie von K-40 wird analog Gleichung (1) nach Gleichung (A1) ermittelt:

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = \frac{R_{n,t}}{c_{K-40} \cdot p_{\gamma,K-40}(E_\gamma)} \quad (\text{A1})$$

Dabei bedeuten:

$\varepsilon_t(E_\gamma)$	verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit der Gammastrahlungsenergie von K-40 bei einer frei hängenden Sonde, in $\text{m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;
R_b	Bruttozählrate im Energiebereich 0,3 MeV bis 1,5 MeV, in s^{-1} ;
R_0	Nulleffektzählrate im Energiebereich 0,3 MeV bis 1,5 MeV, in s^{-1} ;
$c_{\text{K-40}}$	Aktivitätskonzentration von K-40, in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
$p_{\gamma, \text{K-40}}(E_\gamma)$	Emissionsintensität der Gammalinie von K-40.

Mit einem Messwert von 59 s^{-1} für die Bruttozählrate von K-40 einer Kaliumchloridlösung, die eine K-40-Aktivitätskonzentration von $115\,963 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ aufweist (entspricht 7 g KCl), und einer in Leitungswasser gemessenen Nulleffektzählrate von 25 s^{-1} wird für die verfahrenbezogene totale Nachweiswahrscheinlichkeit bei der Messanordnung „Sonde frei im Wasser hängend“ nach Gleichung (A1) folgender Wert erhalten:

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = \frac{59 \text{ s}^{-1} - 25 \text{ s}^{-1}}{115\,963 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot 0,1055} = 2,779 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

A.2.2 Kalibrierung mit anderen Radionukliden

Durch Untersuchungen mit Festpräparaten künstlicher, gammastrahlender Radionuklide mit Gammaenergien unterhalb 1 MeV wurde gezeigt, dass ein Kalibrierbehälter mit einem Volumen von 1 m^3 ausreicht, da durch die abschirmende Wirkung des Wassers die Gammastrahlung oberhalb eines Präparateabstands von 0,5 m zum Detektor nicht mehr nachgewiesen werden kann.

Für die Kalibrierung werden die gammastrahlenden Radionuklide Mn-54, Ru-106/Rh-106 und Ce-144 mit den in Tabelle 1 gelisteten Werten eingesetzt. Für das Mehrliniennuklid Ru-106/Rh-106 wird eine fiktive mittlere Gammaenergie \bar{E}_γ angenommen, die nach Gleichung (A2) berechnet wird:

$$\bar{E}_\gamma = \frac{\sum_1^n E_{\gamma,i} \cdot p_{\gamma,i}}{\sum_1^n p_{\gamma,i}} \quad (\text{A2})$$

Dabei bedeuten:

\bar{E}_γ	fiktive mittlere Gammaenergie, in eV;
$E_{\gamma,i}$	Gammaenergie der Gammalinie i , in eV;
$p_{\gamma,i}$	Emissionsintensität der Gammalinie i .

Für Ru-106/Rh-106 ergibt sich somit nach Gleichung (A2):

$$\bar{E}_{\gamma, \text{Ru-106}} = \frac{0,51 \text{ MeV} \cdot 0,2052 + 0,62 \text{ MeV} \cdot 0,0987 + 1,05 \text{ MeV} \cdot 0,0149}{0,2052 + 0,0987 + 0,0149} = 0,57 \text{ MeV}$$

A.3 Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“

Die Kalibrierung von Sonden im Schiffskoker lässt sich im Labor nicht realisieren. Deshalb wurde die Kalibrierung bei unterschiedlichen Salzgehalten im Wasser mit der vorhandenen Messeinrichtung auf einem der BSH-Schiffe durchgeführt.

Die Aktivitätskonzentration im Meer wird durch das Kalium im Meersalz vorgegeben [4]. Der Kaliumgehalt im Meerwasser der offenen Nordsee entspricht einer K-40-Aktivitätskonzentration c_{K-40} von $12 \text{ Bq}\cdot\text{l}^{-1}$. Die in der Nordsee bei einem Salzgehalt von 35 PSU (Practical Salinity Unit, entspricht $0,74 \text{ g}\cdot\text{l}^{-1}$) ermittelte Bruttozählrate R_b beträgt 10 s^{-1} .

Die Nulleffektmessung wurde im Süßwasser der Elbe durchgeführt, weil dort der Kaliumgehalt vernachlässigbar ist; die gemessene Nulleffektzählrate R_0 betrug $8,5 \text{ s}^{-1}$.

Die verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon_t(E_\gamma)$ bei der Messanordnung „Sonde im Schiffskoker“, in $\text{m}^3\cdot\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$, wird nach Gleichung (A3) berechnet:

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = \frac{R_b - R_0}{c_{K-40} \cdot p_{\gamma,K-40}(E_\gamma)} \quad (\text{A3})$$

Für diese Messanordnung wird somit folgender Wert für die verfahrensbezogene, totale Nachweiswahrscheinlichkeit erhalten:

$$\varepsilon_t(E_\gamma) = \frac{10 \text{ s}^{-1} - 8,5 \text{ s}^{-1}}{12\,000 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot 0,1055} = 1,185 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$