

**Verfahren zur gammaspektrometrischen  
Bestimmung von aerosolgetragenen  
Radionukliden in der bodennahen Luft  
– Standardverfahren –**

A- $\gamma$ -SPEKT-AEROS-01

Bearbeiter:

W. Kiese Wetter

H. Diedrich

W. Dyck

T. Steinkopff

H. Ulbricht

Leitstelle für Luft und Niederschlag

## **2 Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden in der bodennahen Luft – Standardverfahren –**

### **1 Anwendbarkeit**

Das beschriebene Verfahren ermöglicht die nuklidspezifische Bestimmung von Gammastrahlern in Schwebstoffproben durch direkte Messung der Probe ohne chemische Aufarbeitung. Es genügt den Anforderungen der Meßprogramme der AVV-IMIS (1) und der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) (2).

### **2 Probeentnahme**

Richtlinien für die Probeentnahme aerosolpartikelgetragener Radionuklide im Rahmen der Radioaktivitätsüberwachung der Luft sind unter anderem in der DIN-Norm 25423 (3) und in der VDI-Richtlinie 2463 (4) zusammengefaßt. Ergänzende Maßnahmen zur Gewinnung repräsentativer Proben werden in den folgenden Abschnitten näher ausgeführt (5, 6).

#### **2.1 Allgemeine Kriterien zur Auswahl des Probeentnahmeortes**

Im allgemeinen wird durch die Probeentnahme die Größenverteilung der Aerosolpartikeln in der Luftprobe gegenüber der ursprünglichen Verteilung in der Außenluft verändert. Die Windverhältnisse, der Turbulenzgrad der Luft, der räumliche Aufbau der gesamten Meßstation und dessen Einfluß auf die Strömungsverhältnisse der Luft, die Partikelgrößenverteilung, das Verhältnis von Partikeloberfläche und Partikelmasse, die Geometrie der Probeentnahmegерäte und der Probenluftvolumenstrom können einen bedeutenden Einfluß auf die Abscheidung der Aerosolpartikeln ausüben.

Ziel des Verfahrens ist es, die Aktivitätskonzentration von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden der Außenluft repräsentativ zu erfassen. Dazu ist eine vollständige Abscheidung der Aerosolpartikeln auf dem Filter erforderlich. Die Probe ist vorzugsweise in einer Höhe von 1,5 bis 5 m über dem Boden zu entnehmen. Die Entfernung zwischen der Meßstelle und dem nächsten Hindernis sollte mindestens der zehnfachen Höhe des Hindernisses entsprechen (7).

Die Charakteristika des Probeentnahmeortes (Koordinaten, Art des Bewuchses, Anordnung der Hindernisse) sind vor Beginn der Messungen zu dokumentieren.

Bei Messungen in der Umgebung von Emittenten, wie zum Beispiel bei der Überwachung kerntechnischer Anlagen, wird ein Probeentnahmeort im Sektor der bevorzugten Windrichtung gewählt (2).

## 2.2 Anordnung des Probeentnahmekopfes

Die Probeentnahmevorrichtung besteht aus einer Pumpe zum Ansaugen der Luft, einer Filterhalterungseinheit für die Sammlung des Schwebstoffs, einer kurzen Zuluftführung und dem Probeentnahmekopf. Dieser sollte generell in einer Höhe von mindestens 1,50 m über dem Boden installiert und von allen Seiten frei und unbeeinflusst anströmbar sein. Störende Einflüsse durch Wände, Dächer, Rohre u. ä. sind zu vermeiden.

Bei Installation der Probeentnahmeeinrichtung in einem Gebäude ist die Anordnung des Probeentnahmekopfes außerhalb auf einem Flachdach in einer vertikalen und rotationsymmetrischen Ausführung zur windrichtungsunabhängigen Probeentnahme die optimale Lösung. Zur Minimierung der Beeinflussung der Probeentnahme durch Luftverwirbelungen an den Dachkanten soll der Probeentnahmekopf möglichst in der Dachmitte angeordnet sein.

Häufig wird die Anordnung des Probeentnahmekopfes aus baulichen Gründen auf dem Dach nicht möglich sein. In diesem Fall ist im Rahmen der Aufgaben zur Überwachung der Umweltradioaktivität auch die Anordnung an einer Seitenwand vertretbar. Bei der Probeentnahme in einer Entfernung von 1 bis 2 km zum Emittenten soll die Seitenwand ausgewählt werden, die parallel zu der gedachten Verbindungslinie vom Emissionsort zum Probeentnahmegebäude liegt. Die Probeentnahme auf der dem Emissionsort abgewandten Seite (Lee) ist wegen der Gefahr von Verwirbelungen nicht zu empfehlen.

Der Probeentnahmekopf muß einen geneigten Regenschutz haben, der das Eindringen von Regenwasser oder Schnee verhindert. Zum Schutz vor Insekten ist die Ansaugöffnung mit einem korrosionsbeständigen Gitter von ca. 5 mm Maschenweite abzudecken. Im Winter sollte das Gitter beheizt werden, um ein Zufrieren zu verhindern. Anderenfalls ist in dieser Jahreszeit das Entfernen des Gitters anzuraten.

Zur Vermeidung von Kondensatbildung bei hoher Luftfeuchte sollen mindestens die Probeentnahmeleitung und erforderlichenfalls auch die Sammel- und Meßeinrichtung beheizt werden, um deren Temperatur über den Taupunkt anzuheben.

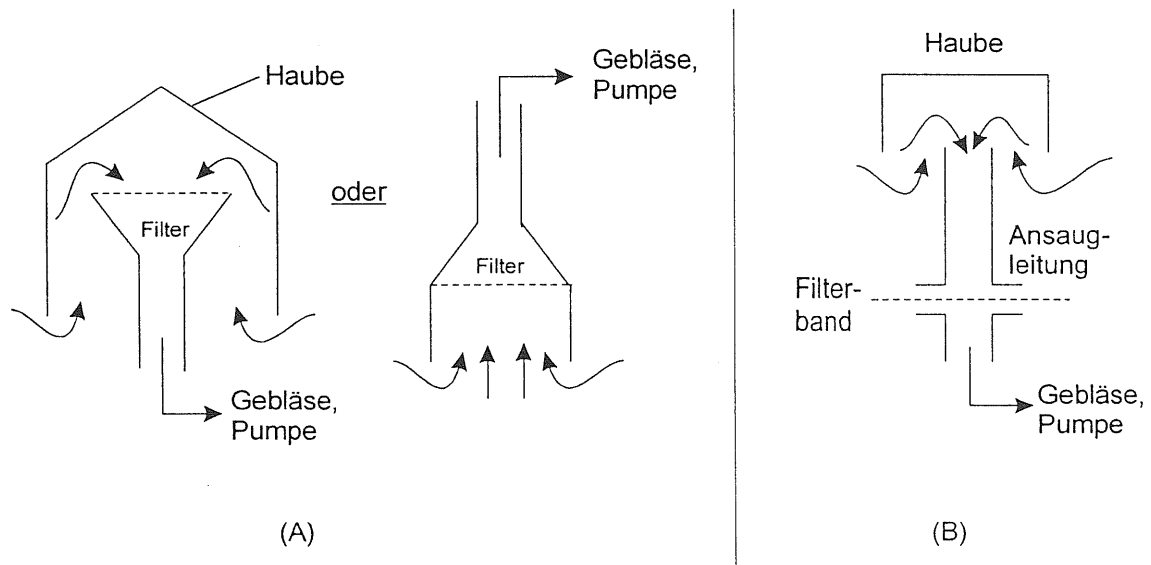
Durch einen genügend großen Abstand zwischen Probeentnahmekopf und Luftaustritt soll verhindert werden, daß die abgeleitete Luft von der Probeentnahmeeinrichtung wieder angesaugt wird.

## 2.3 Geometrie des Probeentnahmekopfes und Filterhalterung

Für die Geometrie des Probeentnahmekopfes ergeben sich grundsätzlich zwei geeignete Möglichkeiten (Abb. 1):

- (A) Probeentnahme und Filterhalterung integriert
- (B) Probeentnahme und Filterhalterung räumlich getrennt

Eine repräsentative, reproduzierbare Erfassung des Gesamtstaubs, das heißt des Aerosolpartikelkollektivs mit aerodynamischen Äquivalentdurchmessern (AED) von 0,001 bis 150  $\mu\text{m}$  ist in der Praxis schwer zu realisieren. Das Größenspektrum der aus der Luft entnommenen Aerosolpartikeln wird weitgehend durch die Form des Probeentnahmekopfes sowie durch die Eintrittsgeschwindigkeit der Luft in den Kopf und durch die herrschende Windgeschwindigkeit bestimmt. Der Durchmesser der noch erfassten Aerosolpartikeln nimmt mit steigender Eintrittsgeschwindigkeit und abnehmender Windgeschwindigkeit zu. Um Aerosolpartikeln größer als 1  $\mu\text{m}$  AED auch bei höheren Windgeschwindigkeiten noch sammeln zu können, muß eine Mindestansauggeschwindigkeit, die je nach Probeentnahmekopf zwischen 0,12 und 3  $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$  liegt, eingehalten werden (5).



**Abb. 1:** Schematische Darstellung von Probeentnahmeeinrichtungen

Um den sogenannten lungengängigen Staub (Aerosolpartikeln bis zu  $10\ \mu\text{m AED}$ ) unabhängig von der Windgeschwindigkeit zu erfassen, werden geeignete Vorabscheider eingesetzt, die die Grobstaubanteile separieren.

Zur Vermeidung von Abscheideverlusten soll die Ansaugleitung eine Länge von 3 m nicht überschreiten und nach Möglichkeit ohne Krümmungen und Querschnittsänderungen geführt sein. Unvermeidbare Krümmungen sollen keine Krümmungsradien aufweisen, die kleiner als drei Rohrdurchmesser sind.

Eine Ansaugleitung aus korrosionsbeständigem Stahl mit glatter Oberfläche ist anderen Materialien vorzuziehen. Kunststoffrohre haben den Nachteil, daß sie sich elektrostatisch aufladen können. Gewellte Schläuche sowie mit Draht stabilisierte Schläuche wirken als Aerosolpartikelfallen. Bei geschweißten Rohren muß auf gut geglättete Schweißnähte geachtet werden. Das betrifft insbesondere auch Flanschverbindungen. Kommerziell sind Flanschverbindungen erhältlich, die nahezu gratfrei sind und ohne Spalten die Rohre miteinander verbinden.

Die Ansaugleitung muß beheizbar sein, damit Taupunktunterschreitungen und Kondensation am Rohr und auf dem Filter vermieden werden (siehe Abschnitt 2.2). Die korrosionsbeständige Filterhalterung selbst muß so ausgebildet sein, daß das verwendete Filter ausreichend unterstützt und durch eine Randabdichtung das Ansaugen von Nebenluft vermieden wird.

Als Beispiel für die mechanische Ausführung eines Probeentnahmekopfes wird auf eine VDI-Richtlinie verwiesen (8).

## 2.4 Filter

Die Wahl des Filtermaterials richtet sich nach verschiedenen Kriterien. Es muß insbesondere eine mechanische Festigkeit aufweisen, die den Betrieb bei hohem Luftdurchsatz und langen Standzeiten gestattet. Die Abscheidung von Aerosolpartikeln mit einem AED im Bereich von bis zu  $10\ \mu\text{m}$  ist durch Verwendung entsprechend spezifizierter Filter der Klasse S nach DIN 24184 (9) bzw. nach DIN EN 1822-1 (10) sicherzustellen, zum Beispiel die Auswahl eines Glasfaserfilters mit hohem Abscheidegrad. Bei der Auswahl des Filter-

materials ist auch eine mögliche nachfolgende radiochemische Aufarbeitung des Filters im Anschluß an die Gammaspktrometrie, beispielsweise zur Bestimmung von Alpha- und Betastrahlern, zu bedenken. Für diese Fälle bietet sich ein Cellulosefaser-Filter an, der zur Verbesserung der mechanischen Stabilität einen geringen Glasfasergehalt aufweist.

### 2.5 Bestimmung des Luftdurchsatzes

Zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration ist die genaue Kenntnis des Luftdurchsatzes oder die Kenntnis des Luftvolumenstromes und des Sammelzeitraums erforderlich. Der Luftvolumenstrom soll grundsätzlich hinter dem Filter ermittelt werden. Die hierzu eingesetzten Meßgeräte sind häufig einfache Schwebekörper-Durchflußmesser sowie kleine Turbinen- und Flügelrad-Meßgeräte.

Besonders leistungsfähig sind Meßverfahren nach dem Wirkdruckprinzip. Hier befindet sich hinter dem Filter eine Blende; durch Messung des Differenzdruckes über der Blende, des absoluten Luftdruckes und der Lufttemperatur des strömenden Mediums sowie des Sammelzeitraums läßt sich über die „Allgemeine Gasgleichung“ exakt der Luftdurchsatz bestimmen. Darüber hinaus werden kalorimetrische, Ultraschall- und Vibrationsmeßverfahren eingesetzt.

Volumenstrommeßgeräte sind grundsätzlich nur für einen kleinen Meßbereich ausgelegt, der in der Regel weniger als zwei Dekaden umfaßt. Die Auswahl dieser Volumenstrommeßgeräte muß daher sehr sorgfältig erfolgen, da in der Praxis Volumenströme zwischen  $1 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  und mehr als  $500 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  vorkommen.

Da die Verfahren zur Bestimmung des Luftdurchsatzes von Temperatur und Luftdruck abhängen, muß dokumentiert werden, ob es sich um Betriebskubikmeter oder um Kubikmeter Luft im Normzustand, das heißt bei  $0^\circ\text{C}$  und  $1013 \text{ hPa}$  (Normkubikmeter), handelt. Die Berechnung der Normkubikmeter erfordert für jede Durchflußmessung die Bestimmung der Temperatur des Luftstromes und die Bestimmung des Absolutdrucks.

### 2.6 Einfluß von „Heißen Teilchen“

Bei Sammelintervallen von Tagen bis Wochen und der sich anschließenden Probenpräparation, wie zum Beispiel das Pressen des Filters, kann keine Aussage mehr darüber getroffen werden, ob eine beobachtete erhöhte Aktivität der Probe aus „Heißen Teilchen“ oder der angenommenen kontinuierlich zugeführten Anzahl kleinster Aerosolpartikeln resultiert. Bei Verdacht auf „Heiße Teilchen“ (11) muß vor der Probenpräparation (Pressen, Veraschen) eine Untersuchung des Filters mit ortsauflösenden Verfahren stattfinden. Dazu eignen sich im einfachsten Fall und bei großen Filterflächen Messungen mit Oberflächenkontaminationsmonitoren. Genauere Information erhält man aus der Autoradiographie oder aus Messungen mit einem Dünnschichtscanner bzw. mit einem ortsempfindlichen Vieldraht-Gasproportionalzähler (digitale Autoradiographie). Diese Verfahren sind jedoch wesentlich aufwendiger.

### 2.7 Probeentnahmeeinrichtung an den Radioaktivitätsmeßstellen des Deutschen Wetterdienstes (DWD)

Die Wetterstationen des synoptisch-klimatologischen Meßnetzes des DWD sind gemäß den Vorgaben der World Meteorological Organisation (WMO) so angelegt, daß die gemessenen (meteorologischen) Parameter für einen größeren geographischen Bereich

repräsentativ sind. Daher wurden auch die Meßstellen zur Überwachung der Umwelt-radioaktivität an ausgewählten Wetterstationen eingerichtet.

Die Probeentnahmeeinrichtungen zur Schwebstoffsammlung sind im Inneren des jeweiligen Stationsgebäudes installiert. Der Probeentnahmekopf befindet sich in den meisten Fällen an der Seitenwand des Gebäudes. Die Luft wird über eine kurze Zuluftleitung auf ein Filter geführt. Die Probeentnahmeintervalle richten sich nach den Vorgaben des Routine- bzw. Intensivmeßprogramms gemäß den Anlagen der AVV-IMIS (1).

Die nachfolgende Tabelle gibt einen Überblick über die Probeentnahmeeinrichtungen an den Radioaktivitätsmeßstellen des DWD:

**Tabelle 1:** Probeentnahmeeinrichtungen an den Radioaktivitätsmeßstellen des DWD

Gerätetyp	Filter	Volumenbestimmung	Volumenstrom $\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$
Ringkanalgebläse	Glasfaser, Klasse S $d = 257 \text{ mm}$	Thermoelektrisch	65–95
Drehkolbengebläse	Cellulosefaser (80%), Glasfaser (20%), $420 \text{ mm} \times 380 \text{ mm}$	Laufzeit, Druck, Temperatur	145–160, 200–300
Radialgebläse	PVC mit Baumwoll- stützgitter, $400 \text{ mm} \times 400 \text{ mm}$	Thermoelektrisch	260–750

Bei frisch aufgelegtem Filter beträgt der Volumenstrom des Ringkanalgebläses  $95 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  und geht am Ende eines Bestäubungsintervalls von einer Woche auf  $65 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  zurück.

### 3 Analytik

#### 3.1 Prinzip der Methode

Auf einem Filter werden Aerosolpartikeln gesammelt. Der Filter wird nach Aufarbeitung gammaspektromerisch gemessen.

#### 3.2 Probenvorbereitung

Die Filter werden gefaltet und mit einer hydraulischen Presse in eine feste quaderförmige Form mit geringer Höhe gebracht. Der so erhaltene Pressling wird in Polyethylenfolie eingeschweißt, in einer Petrischale fixiert und auf einem Germanium-Detektor positioniert (DWD: die Verwendung des Cellulosefaserfilters ergibt eine Fläche von  $2 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$  mit einer Dicke von ca.  $0,7 \text{ cm}$ ).

#### 3.3 Radiochemische Trennung

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

## 4 Messung der Aktivität

### 4.1 Allgemeines

Die nach Abschnitt 3.1 hergestellten Presslinge werden gammaspektrometrisch untersucht. Um Nachweisgrenzen in der Größenordnung von ca.  $10 \mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  zu erhalten, ist ein Reinstgermaniumdetektor mit einer relativen Ansprechwahrscheinlichkeit von mindestens 40%, bezogen auf einen  $3'' \times 3''$  NaI(Tl)-Kristall und einer Halbwertsbreite kleiner als 2,0 keV, bezogen auf die 1332 keV-Gammalinie des Radionuklids Co-60, zu verwenden. Die Abschirmung des Detektors soll aus strahlungsarmem Blei mit mindestens 100 mm Wandstärke aufgebaut sein. Zwischen Bleiabschirmung und Detektor ist Kupferblech zur Unterdrückung der Bleiröntgenstrahlung bei 75 keV und 85 keV sowie zusätzlich Plexiglas zur Absorption der am Kupferblech gestreuten Betateilchen zu installieren. Für Meßaufgaben mit geringerer Empfindlichkeit ist eine weniger aufwendige apparative Ausstattung ausreichend.

In diesem Zusammenhang wird auf die im Kapitel IV.1.1 dieser Meßanleitungen dargelegten Grundlagen der Gammaskpektrometrie verwiesen.

### 4.2 Kalibrierung

Zur Kalibrierung wird ein Flächenpräparat, das mehrere Radionuklide bekannter Aktivität enthält, verwandt. Dieses Flächenpräparat wird in einer Petrischale und gegebenenfalls zusätzlich auf einem Abstandshalter in einem Abstand  $d$  vom Detektor gemessen. Der Abstand  $d$  entspricht der halben Dicke eines Probenpresslings plus der Dicke des Bodens der Petrischale. Dabei wird vorausgesetzt, dass die Aktivität des Probenpresslings homogen verteilt ist.

## 5 Berechnung der Analyseergebnisse

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration  $c_r$  bezogen auf den mittleren Sammelzeitraum erfolgt nach Gleichung (1):

$$c_r = \frac{N_n}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot t_m \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \quad (1)$$

mit

$$f_2 = e^{\lambda_r \cdot t_A} \quad (2)$$

und

$$f_3 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}} \quad (3)$$

Dabei bedeuten:

$c_r$  = Aktivitätskonzentration des Radionuklids  $r$  in  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$

$N_n$  = Nettoimpulsanzahl

- $\epsilon_r$  = Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid r in  $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$   
 $p_\gamma$  = Emissionswahrscheinlichkeit für Gammastrahlung  
 $t_m$  = Meßzeit der Probe in s  
 $V$  = durchgesetztes Luftvolumen in  $\text{m}^3$   
 $\lambda_r$  = Zerfallskonstante des Radionuklids r in  $\text{s}^{-1}$   
 $t_A$  = Zeitspanne zwischen der Mitte des Probeentnahmeintervalls und dessen Meßbeginn in s  
 $f_1$  = Summationskorrektionsfaktor  
 $f_2$  = Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide in der Zeitspanne von der Mitte des Probeentnahmeintervalls bis zum Meßbeginn  
 $f_3$  = Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide während der Messung

Für die Bestimmung des Summationskorrektionsfaktors  $f_1$  gelten die Ausführungen des Kapitels IV.1, Abschnitt 5 dieser Meßanleitungen.

Ist die Zeitspanne  $t_A$  bzw.  $t_m$  sehr viel kleiner als die Halbwertszeit des zu messenden Radionuklids, gilt  $f_2 = 1$  bzw.  $f_3 = 1$ .

Für die Standardabweichung  $s(R_n)$  der Nettozählrate  $R_n$  gilt nach Kapitel IV.5, Abschnitt 2.2.3 dieser Meßanleitungen:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{R_n}{t_m} + \frac{b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2L}\right)} \quad (4)$$

Dabei bedeuten:

- $s(R_n)$  = Standardabweichung der Nettozählrate in  $\text{s}^{-1}$   
 $R_n$  = Nettozählrate in  $\text{s}^{-1}$   
 $b$  = Fußbreite der Gammalinie in Anzahl der Kanäle  
 $\bar{R}_0(E_\gamma)$  = mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal in  $\text{s}^{-1}$   
 $E_\gamma$  = Energie der Gammalinie  
 $L$  = Anzahl der Kanäle für die Untergrundermittlung

Für die Standardabweichung der Aktivitätskonzentration  $s(c_r)$  gilt:

$$s(c_r) = s(R_n) \cdot \frac{c_r}{R_n} = \frac{1}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot s(R_n) \quad (5)$$

## 5.1 Rechenbeispiele

Nachfolgend werden beispielhaft für zwei unterschiedliche Proben die Aktivitätskonzentrationen von Cs-137 bzw. I-131 gerechnet.

### Berechnung der Aktivitätskonzentration des aerosolpartikelgetragenen Radionuklids Cs-137:

Für die Berechnung der Cs-137-Aktivitätskonzentration der Luft werden in Gleichung (1) folgende Zahlenwerte eingesetzt:

- $N_b$  = 3415  
 $N_0$  = 2083  
 $N_n$  = 1332



$$\begin{aligned}R_n &= 1,85 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} \\ \varepsilon_{\text{Cs-137}} &= 0,03361 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \\ p_\gamma &= 0,851 \\ b &= 10 \\ L &= 5 \\ \bar{R}_0(E_\gamma) &= 2,89 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \\ E_\gamma &= 662 \text{ keV} \\ t_m &= 72000 \text{ s} \\ V &= 25752 \text{ m}^3 \\ t_A &= 3,02 \cdot 10^5 \text{ s} \\ \lambda_{\text{Cs-137}} &= 7,26 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1} \\ f_1 &= 1,00\end{aligned}$$

mit

$$f_2 = e^{7,26 \cdot 10^{-10} \cdot 3,02 \cdot 10^5} = 1,00$$

und

$$f_3 = \frac{7,26 \cdot 10^{-10} \cdot 72000}{1 - e^{-7,26 \cdot 10^{-10} \cdot 72000}} = 1,00$$

Für die Aktivitätskonzentration von Cs-137 erhält man:

$$c_{\text{Cs-137}} = \frac{1332}{0,03361 \cdot 0,851 \cdot 72000 \cdot 25752} \cdot 1,00 \cdot 1,00 \cdot 1,00 = 2,51 \cdot 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Die Standardabweichung der Nettozählrate beträgt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{1,85 \cdot 10^{-2}}{72000} + \frac{10 \cdot 2,89 \cdot 10^{-3}}{72000}} \cdot 2 = 1,03 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

Damit erhält man für die Standardabweichung der Aktivitätskonzentration von Cs-137:

$$s(c_{\text{Cs-137}}) = 1,03 \cdot 10^{-3} \cdot \frac{2,51 \cdot 10^{-5}}{1,85 \cdot 10^{-2}} = 1,40 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Das Ergebnis dieser Beispielrechnung für die Messung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 lautet:

$$c_{\text{Cs-137}} = (2,51 \pm 0,14) \cdot 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

## **Berechnung der Aktivitätskonzentration des aerosolpartikelgetragenen Radionuklids I-131:**

Für die Berechnung der I-131-Aktivitätskonzentration der Luft werden in Gleichung (1) folgende Zahlenwerte eingesetzt:

$$\begin{aligned}
 N_b &= 5830 \\
 N_0 &= 3198 \\
 N_n &= 2632 \\
 R_n &= 1,07 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} \\
 \varepsilon_{\text{I-131}} &= 0,0803 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \\
 p_\gamma &= 0,816 \\
 b &= 10 \\
 L &= 5 \\
 \bar{R}_0(E_\gamma) &= 1,29 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \\
 E_\gamma &= 364 \text{ keV} \\
 t_m &= 247083 \text{ s} \\
 V &= 24033 \text{ m}^3 \\
 t_A &= 655416 \text{ s} \\
 \lambda_{\text{I-131}} &= 1,00 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1} \\
 f_1 &= 1,00
 \end{aligned}$$

mit

$$f_2 = e^{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 6,55 \cdot 10^5} = 1,93$$

und

$$f_3 = \frac{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 247083}{1 - e^{-1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 247083}} = 1,13$$

Für die Aktivitätskonzentration von I-131 erhält man:

$$c_{\text{I-131}} = \frac{2632}{0,08 \cdot 0,816 \cdot 247083 \cdot 24033} \cdot 1,00 \cdot 1,925 \cdot 1,13 = 1,48 \cdot 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Die Standardabweichung der Nettozählrate beträgt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{1,07 \cdot 10^{-2}}{247083} + \frac{10 \cdot 1,29 \cdot 10^{-3}}{247083}} \cdot 2 = 3,84 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$$

Damit erhält man für die Standardabweichung der Aktivitätskonzentration von I-131:

$$s(c_{\text{I-131}}) = 3,84 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{1,47 \cdot 10^{-5}}{1,07 \cdot 10^{-2}} = 5,31 \cdot 10^{-7} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Das Ergebnis dieser Beispielrechnung für die Messung der Aktivitätskonzentration von I-131 lautet:

$$c_{\text{I-131}} = (1,48 \pm 0,05) \cdot 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

## 5.2 Fehlerbetrachtung

Zur Gesamtunsicherheit einzelner Meßergebnisse tragen die statistischen Unsicherheiten der Impulzzählung des Meßverfahrens und die Unsicherheiten der Kalibrierung sowie der Volumenstrommessung bei. Den größten Beitrag liefert im allgemeinen die Unsicherheit bei der Probeentnahme.

Die aus einer nicht repräsentativen Probeentnahme resultierenden Fehler können nur abgeschätzt werden (s. Abschnitt 2).

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Für die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration  $g$  gilt bei gammaspektrometrischen Aktivitätsmessungen unter der Voraussetzung nicht zu kleiner Nulleffektimpulzzählraten und  $t_0 = t_m$ ):

$$g = \frac{1}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{2b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m}} \quad (6)$$

Mit den Quantilen der Normalverteilung  $k_{1-\alpha} = 3,0$  und  $k_{1-\beta} = 1,645$  und den im Abschnitt 5.1 angegebenen Zahlenwerten erhält man folgende Rechnungen:

### a) Für Cs-137

$$g = \frac{1}{0,03361 \cdot 0,851 \cdot 25752} \cdot 1,00 \cdot 1,00 \cdot 1,00 \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 10 \cdot 2,89 \cdot 10^{-3}}{72000}} = 5,65 \cdot 10^{-6}$$

Damit erhält man für die Nachweisgrenze von Cs-137 einen Wert von  $5,65 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ .

### b) Für I-131

$$g = \frac{1}{0,0803 \cdot 0,816 \cdot 24033} \cdot 1,00 \cdot 1,925 \cdot 1,13 \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 10 \cdot 1,29 \cdot 10^{-3}}{247083}} = 2,07 \cdot 10^{-6}$$

Damit erhält man für die Nachweisgrenze von I-131 einen Wert von  $2,07 \cdot 10^{-6} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ . Der Filter enthält unmittelbar nach Probeentnahmeende einen hohen Anteil an Radonfolgeprodukten. Das führt zu einem höheren Untergrund. Durch eine Filterstandzeit kann dieser Anteil deutlich reduziert werden. Für diesen Fall sind weitere Beispiele für erreichbare Nachweisgrenzen aufgeführt.

Radionuklid	Nachweisgrenze $g$ in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
Zr-95	$4,3 \cdot 10^{-6}$
Nb-95	$3,1 \cdot 10^{-6}$
Ru-103	$3,1 \cdot 10^{-6}$
Cs-134	$2,7 \cdot 10^{-6}$
Ce-141	$4,9 \cdot 10^{-6}$
Ce-144	$2,1 \cdot 10^{-5}$

## 7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

### 7.1 Chemikalien und Verbrauchsmaterial

Glasfaserfilter nach DIN 24184

Cellulosefaserfilter (80% Cellulose/20% Glasfaser) der Firma Luwa nach DIN 24184

PVC-Filter mit Baumwollstützgitter

Flächenpräparat zur Kalibrierung

### 7.2 Geräte

Staubprobensammler mit Filterhalter und Gasdurchflußzähler

Hydraulische Presse bis 300 kN

Folienschweißgerät

Petrischalen, Durchmesser 110 mm

Gammaspektrometriemeßplatz

### Literatur

- (1) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Meß- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS). Bundesanzeiger 47, Nummer 200a vom 24. Oktober 1995
- (2) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, GMBI. 44, Nr. 29 vom 19. August 1993
- (3) Probeentnahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft – Teil 1: Allgemeine Anforderungen, DIN 25423-1, Beuth-Verlag Berlin, 1999
- (4) Messen von Partikeln, Gravimetrische Bestimmung der Massenkonzentration von Partikeln in der Außenluft, Grundlagen VDI-Richtlinien, VDI 2463, 1998
- (5) Klockow, D.: Zum gegenwärtigen Stand der Probenahme von Spurenstoffen in der freien Atmosphäre. Fresenius Z.Anal.Chem. 326, S. 5–24, 1987
- (6) Allers, S., Frenzel, E., Narrog, J., Steinkopff, Th., Winkler, R., u. Winter, M.: Loseblattsammlung FS-78-15-AKU, Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, 1992
- (7) Guide to Meteorological Instrumentation and Methods of Observation, WMO Nr. 8, 1983
- (8) Messen der Massenkonzentration (Immission) Filterverfahren. Automatisiertes Filtergerät FH 62 I. VDI 2463 Blatt 5, VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4, VDI-Verlag GmbH, 1987
- (9) DIN-24184, Typprüfung von Schwebstofffiltern, DIN, Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss Kerntechnik, Berlin, Dezember 1990
- (10) DIN EN 1822-1, Schwebstofffilter (HEPA und ULPA), DIN, Deutsches Institut für Normung e. V., Normenausschuss Kerntechnik, Berlin, Juli 1998
- (11) Lux, D., Iwatschenko, M., Steinkopff, Th., Wershofen, H. und Winkler, R.: Einfluß von „Heißen Teilchen“ auf Meßverfahren zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Loseblattsammlung FS-78-15-AKU, Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, 1998