

# **Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden im Niederschlag**

A- $\gamma$ -SPEKT-NIEDE-01

Bearbeiter:

W. Kiesewetter

H. Diedrich

W. Dyck

T. Steinkopff

H. Ulbricht

Leitstelle für Luft und Niederschlag

## 2 Verfahren zur gammaspektrometrischen Bestimmung von Radionukliden im Niederschlag

### 1 Anwendbarkeit

Das nachfolgend beschriebene Verfahren dient der nuklidspezifischen Bestimmung gammastrahlender Radionuklide im Niederschlag (Gesamtdeposition). Es genügt den Anforderungen der Meßprogramme der AVV-IMIS (1) und der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) (2).

### 2 Probeentnahme

Zur Bestimmung der Gesamtdeposition (Trocken- und Naßdeposition) werden offene Sammler eingesetzt, die sowohl Regen als auch trocken deponiertes Material auffangen. Voraussetzung ist eine ausreichend bemessene Sammelfläche und ein Ablauf in ein Auffanggefäß, das entsprechend des Sammelintervalls und der maximal zu erwartenden Regenmenge dimensioniert sein muß.

Auf die spezielle Problematik der Probeentnahme von Regeninhaltsstoffen wird in (3,4) eingegangen. Nachfolgend werden zwei verschiedene in der Praxis eingesetzte Probeentnahmeeinrichtungen beschrieben.

#### **Probeentnahmeeinrichtung an den Radioaktivitätsmeßstellen des DWD**

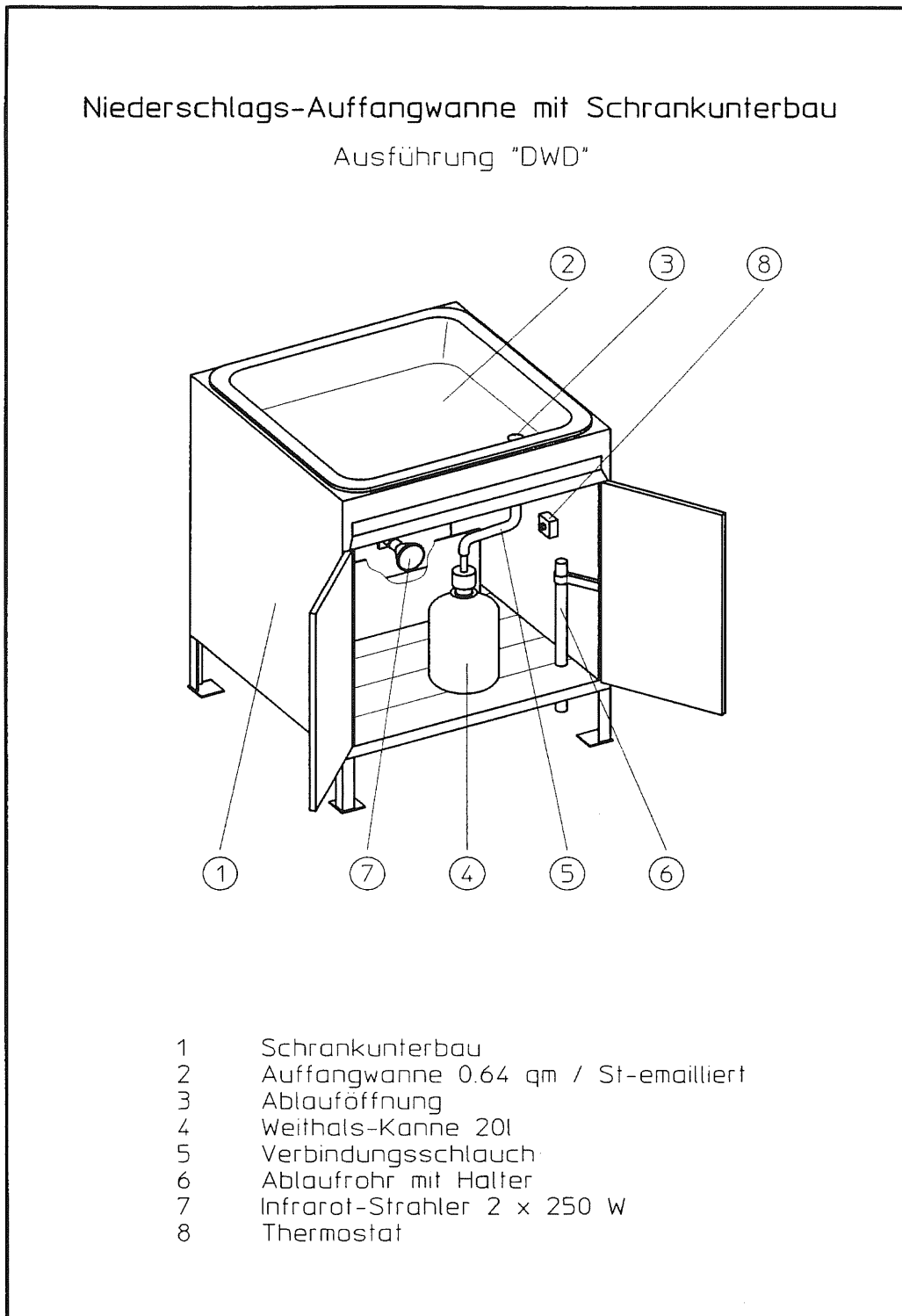
An den Radioaktivitätsmeßstellen des Deutschen Wetterdienstes sind Wannen aus emailiertem Edelstahl installiert (Abbildung 1). Die Auffangfläche beträgt ca. 0,64 m<sup>2</sup> und befindet sich ca. 1 m über dem Erdboden. Die Wannen sind von oben in einen Schrank aus wetterfest lackiertem Zinkblech eingelassen. Der Schrank ist abschließbar, wärmeisoliert und enthält einen Sammelbehälter aus Kunststoff (20 Liter) für den ablaufenden Niederschlag. Das Innere des Schanks läßt sich durch zwei thermostatgesteuerte 250 Watt Infrarotstrahler beheizen. Diese Beheizung soll Eis und Schnee auf der Auffangfläche zum Schmelzen bringen und das Einfrieren des Niederschlages im Sammelbehälter verhindern. Taut der Schnee nicht vollständig ab, wird dieser der Wanne entnommen, im Labor geschmolzen und dem flüssig vorliegenden Niederschlag zugefügt.

Bei der Probeentnahme von Schnee ist abhängig von den Windgeschwindigkeiten mit einer unterschiedlichen Sammeleffizienz zu rechnen.

#### **Weitere Probeentnahmeeinrichtung für Niederschlag**

Eine Alternative zur Sammlerkonfiguration des DWD stellt die in Abbildung 2 gezeigte trichterförmige Konfiguration dar. Diese ist in den Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität des Arbeitskreises Umweltüberwachung (AKU) beschrieben (5) und wird beispielsweise an Radioaktivitätsmeßstellen in der Schweiz eingesetzt.

Der Trichter weist eine Auffangfläche von 1 m<sup>2</sup> auf, so daß 1 mm gefallener Niederschlag im Idealfall einem Liter Niederschlagswasser entspricht. Er besteht aus geschweißtem



**Abb. 1:** Probeentnahmeeinrichtung an den Radioaktivitätsmeßstellen des DWD

Aluminiumblech (Blechstärke 2 mm, innen fein gebürstet) und ist mit einer wetterfesten Kunststoffbeschichtung versehen (z. B. RILSAN PA 11, grau), um die Haftung der Partikeln am Trichter gering zu halten. Die Außenwand des Niederschlagsammlergehäuses (2 mm Eisenblech) ist feuerverzinkt und hell gestrichen, um eine zu starke Erwärmung des Trichters im Sommer zu verhindern. Die Innenseite des Gehäuses ist mit einer

## Niederschlagssammler (Trichter)

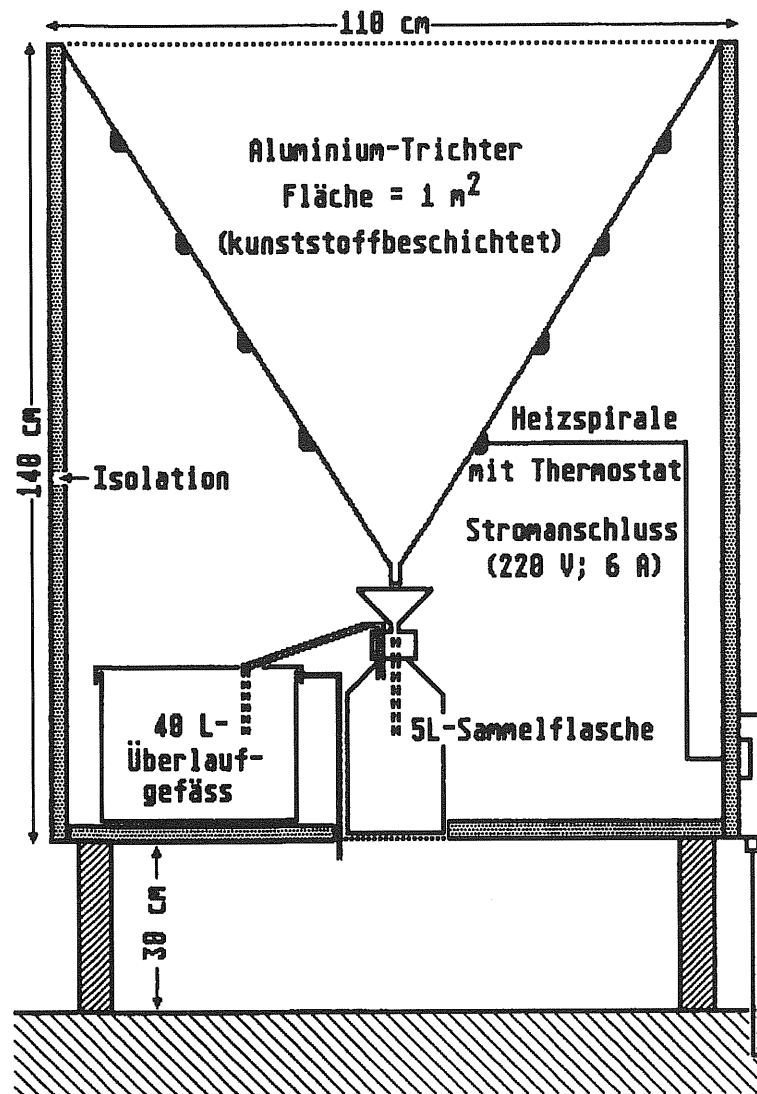


Abb. 2: Probeentnahmeeinrichtung für Niederschlag nach (5)

Schaumstoffisolation versehen. Die Auffangfläche des Trichters wird im Winter durch eine auf die Außenfläche des Trichters aufgeklebte Heizschlange (ca. 1 kW) mit Thermostat auf eine Temperatur von wenigen Grad über dem Gefrierpunkt gehalten, um auch Niederschlag in Form von Schnee quantitativ zu sammeln und um ein Gefrieren des Wassers in der Sammelfläche zu vermeiden. Bewährt hat sich als Alternative auch ein Elektroofen mit Gebläse und Thermostat (1 bis 2 kW Heizleistung) im Innern des Niederschlagssammlergehäuses.

Das gesammelte Niederschlagswasser fließt in eine 5-Liter-Kunststoffflasche, die auch für den Transport der Proben in ein Labor verwendet wird. Um die Verdunstung des Wassers gering zu halten, soll die Mündung des Trichters nur einen kleinen Durchmesser (28 mm) aufweisen. Neben der Kunststoffflasche soll ein mindestens 40 Liter fassendes, graduiertes Überlaufgefäß mit Deckel stehen, in dem, bei voller 5-Liter-Kunststoffflasche, überfließendes Niederschlagswasser gesammelt wird. Für die weitere Verarbeitung wird nur das Wasser aus der 5-Liter-Plastikflasche herangezogen. Die gesamte Niederschlagsmenge wird allerdings anhand der Niederschlagsmenge in beiden Gefäßen bestimmt.

Der Boden des Niederschlagssammlergehäuses ist in der Mitte mit einem Gitter oder Lochblech versehen, damit sich im Gehäuse kein Wasser sammeln kann. Der Niederschlagssammler steht auf 30 cm hohen Füßen, die in Betonfundamenten verankert sind. Für den Betrieb ist ein Stromanschluß mit 220 V und 6 A erforderlich.

### 3 Analytik

#### 3.1 Prinzip der Methode

Bei Radionuklidkonzentrationen im Niederschlag im Bereich von  $1 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$  und darüber wird ein definiertes Volumen in einer Kunststoffflasche direkt gemessen. Eine vorangehende Anreicherung der Radionuklide ist nicht erforderlich, die Meßzeiten liegen in der Größenordnung von einigen Stunden. Schwebstoffe oder suspendierte Teilchen müssen während der Messung homogen verteilt sein. Dies kann zum Beispiel durch Rühren der Probe erreicht werden.

Bei niedrigen Aktivitätskonzentrationen im Bereich von wenigen  $\text{mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  ist eine Direktmessung ohne vorangehende Anreicherung nicht empfindlich genug. In diesem Fall wird eine ausreichend große Niederschlagsmenge schonend eingedampft. Das verbleibende Konzentrat bzw. der Rückstand werden anschließend gemessen. Dabei ist zu beachten, daß leichtflüchtige Radionuklide, wie zum Beispiel I-131, entweichen können.

#### 3.2 Vorbereitung der Probe

Die Niederschlagsmenge wird dem Sammelbehälter entnommen und das Gesamtvolumen gemessen. Die Niederschlagshöhe (mm bzw.  $\text{l} \cdot \text{m}^{-2}$ ) am Standort wird mittels standardisierter meteorologischer Instrumente (z. B. Hellmann-Sammler) ermittelt.

Der Anteil der Trockendeposition an der Gesamtdeposition hängt bei offenen Sammlern von der Sammelperiode, dem Standort und den meteorologischen Gegebenheiten ab. Als Ergebnis der Niederschlagssammlung liegen, bezogen auf festgelegte Sammelintervalle, entweder Proben aus Trocken- und Naßdeposition oder nur aus Trockendeposition vor:

##### a) Naß- und Trockendeposition

Es ist davon auszugehen, daß sich am Boden des Auffanggefäßes die sedimentierten unlöslichen Teilchen befinden, während sich die löslichen wie auch die feindispersen Anteile auf die Gesamtmenge der wässrigen Niederschlagsprobe verteilen. Zur Erfassung der Trockendeposition während langer Sammelintervalle wird die Sammelfläche in kürzeren Zeitintervallen, z. B. täglich bei geplanten Monatsproben, mit 0,5 bis 1 Liter deionisiertem Wasser gespült. Das Spülwasser wird der Probe zugeführt und darf bei der späteren Bestimmung des Gesamtvolumens nicht berücksichtigt werden.

Es stehen folgende Vorgehensweisen zur Auswahl:

- Aufarbeitung der gesamten Niederschlagsprobe

Das Sammelintervall, die Sammelfläche und das Probenauffanggefäß sind so aufeinander abzustimmen, daß die geforderte Nachweisgrenze erreicht wird. Die dem Boden zugeführte flächenbezogene Aktivität wird aus der der Sammelprobe zugeordneten Aktivitätskonzentration und der Niederschlagshöhe berechnet.

- Die Entnahme einer Teilprobe

Vor Entnahme einer Teilprobe wird die Gesamtprobe gut gerührt, um eine homogene Verteilung zu erreichen. Ohne erneutes Absetzen der feinen und groben Teilchen zuzulassen, wird ein Aliquot dieser Suspension zügig in ein ausreichend dimensioniertes Gefäß gefüllt und für die weitere Aufarbeitung bzw. den Versand als Mischprobe in einem Meßzylinder abgemessen. Die dem Boden zugeführte flächenbezogene Aktivität wird aus der dem Aliquot der Sammelprobe zugeordneten Aktivitätskonzentration und der Niederschlagshöhe berechnet.

#### b) Trockendeposition

Zur Erfassung der Trockendeposition (kleiner als 0,05 mm Niederschlag im Sammelzeitraum) wird die Auffangwanne nach dem Ende des vorgegebenen Probeentnahmeintervalls mit dreimal je 150 bis 200 ml deionisiertem Wasser gespült. Mittels eines Gummischwamms werden mit dem ersten Spülvolumen die groben Teilchen und mit dem zweiten Spülvolumen die noch anhaftenden kleineren Teilchen in den Abfluß gespült. Die Reste werden mit dem letzten Spülgang aus den vier Ecken der Wanne entfernt. Die Aktivität der im Spülwasser gesammelten Trockendeposition wird direkt oder nach Eindampfen gemessen. Die dem Boden zugeführte flächenbezogene Aktivität wird aus der gemessenen Aktivität und der Sammelfläche berechnet.

Zur Anreicherung der radioaktiven Stoffe wird die gesamte Niederschlagsmenge des Sammelintervalls herangezogen. Die aufzuarbeitende Niederschlagsmenge eines Monats, gesammelt mit der Probeentnahmeeinrichtung des DWD, beträgt im Durchschnitt etwa 70 Liter. Auch bei Vorgabe von langen Sammelintervallen (z.B. monatlich) sollten die Proben möglichst täglich entnommen werden. Das Volumen der Niederschlagsprobe ist zu messen und diese in ein Eindampfgefäß (Edelstahltopf oder Porzellanschale mit 5 l Fassungsvermögen) zu überführen. Durch schonendes Eindampfen (kein sichtbares Sieden) bei fortlaufender Zugabe der Niederschlagsproben entsteht ein dickflüssiger Eindampfrückstand. Dieser wird in einer Petrischale unter einer Heizlampe so zur Trockne gebracht, daß er den Boden der Schale gleichmäßig bedeckt.

### 3.3 Radiochemische Trennung

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

## 4 Messung der Aktivität

### 4.1 Allgemeines

Für die Messung wird ein Reinstgermanium-Detektor mit einer relativen Ansprechwahrscheinlichkeit zwischen 20 % bis 60 % bezogen auf einen 3"  $\times$  3" NaI(Tl)-Kristall, und einer Halbwertsbreite kleiner als 2,0 keV, bezogen auf die 1332 keV-Gammalinie des Co-60, verwendet. Die Abschirmung des Detektors besteht aus strahlungsarmem Blei mit 10 cm Wandstärke. Zwischen Bleiabschirmung und Detektor befindet sich Kupferblech zur Unterdrückung der Bleiröntgenstrahlung bei 75 keV und 85 keV und zusätzlich Plexiglas.

Weitere Ausführungen zur Gammaskopimetrie sind dem Kapitel IV.1.1 dieser Meßanleitungen zu entnehmen.

Für die Direktmessung wird aus dem Niederschlagssammelgefäß ein definiertes Volumen, maximal 1 Liter der wässrigen Probe oder des Spülwassers, in eine 1-Liter-Weithals-Kunststoffflasche (Kautex) überführt. Sind Schwebstoffe oder suspendierte Teilchen vorhanden, muß die Probe während der Messung gerührt werden.

## 4.2 Kalibrierung

Die Kalibrierung wird mit einem entsprechenden Volumen bzw. Flächenaktivitätsnormal, das mehrere Radionuklide bekannter Aktivität enthält, durchgeführt. Das Flächenaktivitätsnormal für die Kalibrierung wird auf dem Detektor in einer Kunststoffpetrischale auf einem Abstandshalter von 1 mm Höhe gelegt und gemessen.

## 5 Berechnung der Analyseergebnisse

Für die Berechnung der Aktivitätskonzentration  $c_r$ , bezogen auf den Zeitpunkt der Probeentnahme, gilt entsprechend Kapitel IV.1.1. Abschnitte 7.2 und 7.4:

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

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 gilt:

- $c_r$  = Aktivitätskonzentration des Radionuklids  $r$  in  $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$
- $N_n$  = Nettoimpulszahl
- $\varepsilon_r$  = Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid  $r$  in  $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$
- $p_\gamma$  = Emissionswahrscheinlichkeit pro Kernumwandlung
- $t_m$  = Meßzeit der Probe in s
- $V$  = Aliquot des Probenvolumens in l
- $t_A$  = Zeitspanne zwischen der Mitte des Probeentnahmeintervalls und dem Meßbeginn in s
- $\lambda_r$  = Zerfallskonstante des Radionuklids in  $\text{s}^{-1}$
- $f_1$  = Summationskorrektionsfaktor
- $f_2$  = Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide während der Zeitspanne zwischen der Mitte des Probeentnahmeintervalls und dem 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 flächenbezogene Aktivität  $\alpha_{Fr}$  des Radionuklids r gilt:

$$\alpha_{Fr} = c_r \cdot V_F$$

mit  $V_F$ : Niederschlagsmenge pro Fläche in  $l \cdot m^{-2}$

Liegt nur Trockendeposition vor, so ist in den Gleichungen (4) und (8) für  $V_F$  der Quotient aus dem Spülwasservolumen ( $l$ ) und der Auffangfläche ( $m^2$ ) der Probeentnahmeverrichtung einzusetzen.

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

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{R_n}{t_m} + \frac{b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2L}\right)} \quad (5)$$

Dabei bedeuten:

$s(R_n)$  = Standardabweichung der Nettozählrate in  $s^{-1}$

$R_n$  = Nettozählrate in  $s^{-1}$

$b$  = Fußbreite der Gammalinie in Anzahl der Kanäle

$\bar{R}_0(E_\gamma)$  = mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal in  $s^{-1}$

$E_\gamma$  = Energie der Gammalinie

$L$  = Anzahl der Kanäle für die Untergrundermittlung

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

$$s(c_r) = s(R_n) \cdot \frac{c_r}{R_n} = \frac{1}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot s(R_n) \quad (6)$$

Daraus ergibt sich für die Standardabweichung der flächenbezogenen Aktivität:

$$s(\alpha_{Fr}) = s(R_n) \cdot \frac{\alpha_{Fr}}{R_n} = \frac{V_F}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot s(R_n) \quad (7)$$

## 5.1 Rechenbeispiele

Zur Veranschaulichung werden anhand von Beispielen die Aktivitätskonzentrationen von Cs-137 und I-131 berechnet und daraus abgeleitet die jeweilige flächenbezogene Aktivität (Deposition) berechnet.

### Cs-137 im Niederschlag

Für die Berechnung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 in einer Monatsprobe werden folgende Zahlenwerte eingesetzt:

$$N_b = 3005$$

$$N_0 = 408$$

$$N_n = 2597$$

$$R_n = 3,61 \cdot 10^{-2} s^{-1}$$



$$\begin{aligned}\varepsilon_{\text{Cs-137}} &= 0,03734 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \\ p_{\gamma} &= 0,851 \\ b &= 10 \\ L &= 5 \\ \bar{R}_0(E_{\gamma}) &= 5,67 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1} \\ E_{\gamma} &= 662 \text{ keV} \\ t_m &= 72\,000 \text{ s} \\ V &= 66,97 \text{ l} \\ t_A &= 1,88 \cdot 10^6 \text{ s} \\ \lambda_{\text{Cs-137}} &= 7,26 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1} \\ f_1 &= 1,00 \\ V_F &= 72 \text{ l} \cdot \text{m}^{-2}\end{aligned}$$

mit

$$f_2 = e^{7,26 \cdot 10^{-10} \cdot 1,88 \cdot 10^6} = 1,00$$

und

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

Mit diesen Zahlenwerten resultiert für die Aktivitätskonzentration von Cs-137:

$$c_{\text{Cs-137}} = \frac{2597}{0,03734 \cdot 0,851 \cdot 72000 \cdot 66,97} \cdot 1,00 \cdot 1,00 \cdot 1,00 = 1,69 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Für die flächenbezogene Aktivität von Cs-137 ergibt sich:

$$\alpha_F(\text{Cs-137}) = 1,69 \cdot 10^{-2} \cdot 72 = 1,22 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Standardabweichung der Nettozählrate errechnet sich zu:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{3,61 \cdot 10^{-2}}{72000} + \frac{10 \cdot 5,67 \cdot 10^{-4}}{72000}} \cdot 2 = 8,12 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$$

Damit ergibt sich für die Standardabweichung der Aktivitätskonzentration von Cs-137:

$$s(c_{\text{Cs-137}}) = 8,12 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{1,69 \cdot 10^{-2}}{3,61 \cdot 10^{-2}} = 3,80 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

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

$$c_{\text{Cs-137}} = (1,69 \pm 0,04) \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Für die Standardabweichung der flächenbezogenen Aktivität resultiert:

$$s(\alpha_F(\text{Cs-137})) = 8,12 \cdot 10^{-4} \cdot \frac{1,217}{3,61 \cdot 10^{-2}} = 2,74 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Damit lautet das Ergebnis für die Messung der flächenbezogenen Aktivität von Cs-137:

$$\alpha_F(\text{Cs-137}) = 1,22 \pm 0,03 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

### I-131 im Niederschlag (Trockendeposition)

Es werden folgende Zahlenwerte eingesetzt:

$$\begin{aligned} N_b &= 1830 \\ N_0 &= 1198 \\ N_n &= 632 \\ R_n &= 4,39 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} \\ \varepsilon_{\text{I-131}} &= 0,044 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \\ p_\gamma &= 0,816 \\ b &= 10 \\ L &= 5 \\ \bar{R}_0(E_\gamma) &= 8,32 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1} \\ E_\gamma &= 364 \text{ keV} \\ t_m &= 14400 \text{ s} \\ V &= 1 \text{ l} \\ t_A &= 43200 \text{ s} \\ \lambda_{\text{I-131}} &= 1,00 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1} \\ f_1 &= 1,0 \end{aligned}$$

mit

$$f_2 = e^{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 43200} = 1,04$$

und

$$f_3 = \frac{1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 14400}{1 - e^{-1,00 \cdot 10^{-6} \cdot 14400}} = 1,007$$

Für die Aktivitätskonzentration von I-131 ergibt sich:

$$c_{\text{I-131}} = \frac{632}{0,044 \cdot 0,816 \cdot 14400 \cdot 1} \cdot 1,0 \cdot 1,04 \cdot 1,007 = 1,28 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Bei einer Sammelfläche von  $0,64 \text{ m}^2$  und der Spülwassermenge von 1 Liter ergibt sich für die flächenbezogene Aktivität:

$$\alpha_F(\text{I-131}) = \frac{1,28 \cdot 1}{0,64} = 2,0 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Standardabweichung der Nettozählrate beträgt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{4,39 \cdot 10^{-2}}{14400} + \frac{10 \cdot 8,32 \cdot 10^{-3}}{14400}} \cdot 2 = 3,82 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$$

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

$$s(\alpha_F(\text{I-131})) = 3,82 \cdot 10^{-3} \cdot \frac{2,0}{4,39 \cdot 10^{-2}} = 0,174 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Das Ergebnis dieser Beispielrechnung für die Messung der flächenbezogenen Aktivität von I-131 in der Trockendeposition lautet:

$$\alpha_F(\text{I-131}) = 2,0 \pm 0,17 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

## 5.2 Fehlerbetrachtung

Der Schwankungsbereich einzelner Meßergebnisse läßt sich durch die statistische Unsicherheit der Impulzzählung des Meßverfahrens angeben. Der größere Anteil der Gesamtunsicherheit der Bestimmungsgröße resultiert aus den Unsicherheiten der Probeentnahme.

Der aus einer nicht-repräsentativen Probeentnahme resultierende Fehler muß für jede einzelne Konfiguration orientiert an den Ausführungen der Abschnitte 2 und 3.2 dieses Meßverfahrens abgeschätzt werden.

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration  $g$  und die der flächenbezogenen Aktivität  $g_F$  werden nach den Gleichungen (8) und (9) berechnet.

$$g = \frac{1}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{2b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m}} \quad (8)$$

$$g_F = g \cdot V_F = \frac{V_F}{\epsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{2b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m}} \quad (9)$$

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

### a) Für Cs-137:

$$g = \frac{1}{0,03734 \cdot 0,851 \cdot 66,97} \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 5,67 \cdot 10^{-3}}{72000}} = 8,66 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Es ergibt sich als Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Cs-137 ein Wert von  $8,66 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$

$$g_F = 8,66 \cdot 10^{-4} \cdot 72 = 6,23 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Für die flächenbezogene Aktivität lautet die Nachweisgrenze, abhängig von der Niederschlagsmenge,  $6,23 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ .

**b) Für I-131:**

$$g_F = \frac{1}{0,044 \cdot 0,816 \cdot 1 \cdot 0,64} \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot 8,32 \cdot 10^{-2}}{14400}} = 6,87 \cdot 10^{-1} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Für die flächenbezogene Aktivität von I-131 lautet die Nachweisgrenze  $0,69 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$ .

Weitere Beispiele für erreichbare Nachweisgrenzen mit dem im DWD benutzten Verfahren unter der Annahme einer eingedampften Menge an Niederschlagswasser von 51 Liter, der tatsächlichen Niederschlagsmenge von  $65 \text{ l} \cdot \text{m}^{-2}$ , einer relativen Ansprechwahrscheinlichkeit des Reinstgermaniumdetektors von 40%, bezogen auf die 1332 keV Gammalinie des Co-60, und einer Meßzeit von 24 h sind in nachfolgender Tabelle aufgeführt:

Radionuklid	g in $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$	$g_F$ in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$
Zr-95	$6,34 \cdot 10^{-4}$	$4,12 \cdot 10^{-2}$
Nb-95	$3,91 \cdot 10^{-4}$	$2,54 \cdot 10^{-2}$
Cs-134	$3,58 \cdot 10^{-4}$	$2,33 \cdot 10^{-2}$
Ce-141	$7,09 \cdot 10^{-4}$	$4,61 \cdot 10^{-2}$
Ce-144	$2,07 \cdot 10^{-3}$	$1,35 \cdot 10^{-1}$

## 7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

### 7.1 Chemikalien

Deionisiertes Wasser

### 7.2 Geräte

- Niederschlagsauffangwanne mit wärmeisoliertem Unterbau und Heizstrahler
- Niederschlagsauffangbehälter aus Kunststoff
- Edeltahltopf oder Porzellanschale mit 5 Liter Inhalt
- Porzellanschälchen (z. B.: 100 ml, 50 ml)
- Heizplatte
- Sandbad
- Infrarotstrahler
- Gummiwischer
- Glaspetrischalen für eingedampfte Proben (d = 50 mm) mit dünnem Boden
- Kunststoffflaschen (Weithals): 100 ml, 250 ml, 500 ml, 1000 ml
- Mischnormal zur Kalibrierung
- Gammaspectrometriemeßplatz
- Niederschlagsmeßgerät
- Meßzylinder

## 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) Klockow, D.: Zum gegenwärtigen Stand der Probenahme von Spurenstoffen in der freien Atmosphäre, Fresenius Z. Anal Chem 326: 5–24, 1987
- (4) VDI-Handbuch Reinhaltung der Luft, Band 4, Messen von Regeninhaltsstoffen, Kriterien für Aufbau, Aufstellung und Betrieb von Regensammlern, VDI 3870, 1985
- (5) Steinkopff, Th., Völz, E., Völkle, H. und Wershofen, H.: Überwachung der Radioaktivität der Niederschläge mittels Gammaskpektrometrie, Loseblattsammlung des Fachverbands für Strahlenschutz, Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Blatt 3.1.6, 1994