

**Verfahren zur Bestimmung der
Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration
von aerosolgetragenen natürlichen
Radionukliden**

K- α -GESAMT-AEROS-01

Bearbeiter:

T. Beck

Leitstelle für Fragen der Radioaktivitätsüberwachung
bei erhöhter natürlicher Radioaktivität (ENORM)

Verfahren zur Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration von aerosolgetragenen natürlichen Radionukliden

1 Anwendbarkeit

Dieses Verfahren ist im Rahmen der Immissionsüberwachung für die Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration von aerosolpartikelgetragenen natürlichen Radionukliden (Schwebstoffe) geeignet. Dabei werden Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentrationen über $0,1 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ erfasst.

2 Probeentnahme

2.1 Allgemeine Grundsätze

Die allgemeinen Anforderungen an die repräsentative Probeentnahme und das Probeentnahmesystem gemäß Norm DIN 25423 (1, 2) sind einzuhalten. In diesem Zusammenhang wird gleichfalls auf das Verfahren A- γ -SPEKT-AEROS-01 verwiesen.

2.2 Standort der Probeentnahmeeinrichtung

Aerosolpartikelgetragene natürliche Radionuklide werden durch Windfelder verfrachtet, so dass sich der Standort für ihre repräsentative Erfassung am Windfeld orientieren muss.

Bei Immissionsmessungen soll der Abstand zum nächsten Hindernis (z. B. Gebäude, Busch, Baum) so groß wie möglich gehalten werden, um in einem ungestörten Windfeld messen zu können. Der Mindestabstand sollte das Zehnfache der Hindernishöhe betragen. Ausnahmsweise sind Probeentnahmestellen auch in offenen Höfen, Gärten und Lichtungen möglich, falls z. B. in Siedlungen oder am Waldrand nicht nach dieser Regelung verfahren werden kann. Dabei darf das Probeentnahmegesetz nicht unmittelbar neben Gebäuden, Bäumen, in der Nähe von Baustellen oder auf Straßen und öffentlichen Plätzen mit starkem zusätzlichem Schwebstoffeintrag aufgestellt werden. In Hauptwindrichtung von der Emissionsstelle ist das Probeentnahmegesetz vor einem Hindernis aufzustellen. Ist die Anordnung des Probeentnahmekopfes nur an einer Seitenwand eines Gebäudes möglich, so ist bei objektbezogener Probeentnahme (z. B. einer Verdachtsfläche) die parallel zur Verbindungslinie Objekt-Probeentnahmestelle liegende Wand auszuwählen.

Im Normalfall ist die Probeentnahme in einer Höhe von ca. 1,5 m bis 2,0 m über dem Erdboden durchzuführen. Ausnahmen bis 5 m Höhe sind bei Anordnung des Probeentnahmekopfes über dem Dach erlaubt. Auf einem großen Flachdach ist wegen der Gefahr der Verwirbelung an der Dachkante der Probeentnahmekopf möglichst in der Dachmitte anzuordnen.

2.3 Anforderung an die Probeentnahmeeinrichtung

Die Probeentnahmeeinrichtung besteht im Allgemeinen aus einem Probeentnahmekopf, einem Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad von mindestens 99 % (z. B. Glasfaserfilter), einer vorzugsweise aus Metall gefertigten Filterhalterung mit elastischer Dichtung (z. B. Stützsieb, Filter, Flachring, Dichtring), einer Luftfördevorrichtung (z. B. Turbinengebläse, Flügelradpumpe, Drehschiebervakuumpumpe) mit möglichst geringer Abhängigkeit des Volumenstromes von der Veränderung des Strömungswiderstandes des Schwebstofffilters und einem nach der Filterhalterung angeordneten Volumenstrom-Messgerät. Damit Luftfeuchtigkeitsschwankungen keinen signifikanten Einfluss auf das Filtergewicht haben, sollte hydrophobes Filtermaterial eingesetzt werden. Während der Probeentnahme soll der Volumenstrom innerhalb eines Toleranzbereiches von 5 % konstant bleiben. Durch räumliche Trennung von Probeentnahmekopf und Auslass der Luft ist ein Strömungskurzschluss zu verhindern.

Für die Probeentnahme sind sowohl Probeentnahmeköpfe mit integrierter Filterhalterung als auch Probeentnahmeköpfe mit räumlich getrennten Filterhalterungen geeignet. Um Teilchenverluste zu vermeiden, sollte die bei räumlich getrennter Filterhalterung erforderliche Verbindungsleitung vom Probeentnahmekopf zur Filterhalterung aus Edelstahl sein, nach Möglichkeit ohne Krümmung und ohne Querschnittsänderungen zur Filterhalterung führen und eine Länge von 3 Meter nicht überschreiten.

Die Form des Probeentnahmekopfes sowie die Eintrittsgeschwindigkeit der Luft in den Probeentnahmekopf und die herrschende Windgeschwindigkeit bestimmen das Größenspektrum der angesaugten Partikel. Bei anisokinetischer Probeentnahme mit kleiner Eintrittsgeschwindigkeit in den Probeentnahmekopf und demgegenüber hoher Windgeschwindigkeit verschiebt sich das Größenspektrum der gesammelten Teilchen zu größeren Durchmessern. Zum Schutz vor Insekten ist die Ansaugöffnung mit einem korrosionsbeständigen Edelstahlgitter abzudecken.

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Bei der Probeentnahme werden die in der zu untersuchenden Luft enthaltenen Schwebstoffe auf einem Schwebstofffilter abgeschieden. Nach dem Abklingen der Aktivität der kurzlebigen Alphastrahler wird die Gesamt-Alpha-Aktivität der abgeschiedenen Partikel bestimmt.

3.2 Probenvorbereitung

Die Zeitpunkte Beginn und Ende der Probeentnahme sind zu registrieren. Der Luftdurchsatz ist in geeigneter Weise (siehe 4.2) zu bestimmen. Exponierte Schwebstofffilter sind in staubdichter Verpackung zu transportieren, wobei nach Möglichkeit keine Kunststoffverpackungen zu verwenden sind. Bei der Handhabung und beim Transport der Filter ist sowohl das Filtermaterial vor Beschädigung zu schützen als auch dem Verlust von auf dem Filter abgelagerten Schwebstoffen vorzubeugen.

Im Labor ist der Filter bis zur weiteren Bearbeitung vor Beschädigung, Feuchtigkeit, und Zugluft zu sichern. Die Handhabung der Filter sollte mit einer Pinzette erfolgen. Zur Identifizierung sind die Filter vor ihrem Einsatz eindeutig zu kennzeichnen. Die Behandlung (Trocknen und Rückwägen) hat für nicht exponierte und exponierte Filter unter Verwendung derselben Geräte und Verfahren zu erfolgen.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Bestimmung der Masse

Die Masse m der auf dem Filter abgeschiedenen Partikel wird durch Wägung des Schwebstofffilters vor und nach der Probeentnahme gemäß Gleichung (1) bestimmt:

$$m = m_b - m_0 \quad (1)$$

In Gleichung (1) bedeuten:

m_b Masse des Schwebstofffilters nach der Beaufschlagung in mg;

m_0 Masse des Schwebstofffilters vor der Beaufschlagung in mg.

Jedes Schwebstofffilter muss vor der Massenbestimmung mindestens 24 Stunden im Exsikkator getrocknet werden. Unmittelbar nach Entnahme sind die Filter zu wiegen. Für die Wägung ist eine Analysenwaage mit einer Anzeigegenauigkeit von mindestens 0,1 mg zu verwenden. Die relative Feuchte im Wägeraum darf 50 % nicht überschreiten. Ein- und Rückwägung sind nach Möglichkeit mit der gleichen Waage durchzuführen. Nach der Wägung ist der Filter staubdicht und vor Beschädigung geschützt aufzubewahren.

4.2 Bestimmung des Luftvolumens

Die Bestimmung des durch den Schwebstofffilter geleiteten Luftvolumens erfolgt durch Messung des Luftdurchflusses mittels Rotameter, Hitzedrahtanemometer, kleinen Turbinen- und Flügelrad-Messgeräten bzw. durch integrale Messung während der Messdauer unter Verwendung von Gasuhren. Der Luftdurchsatz sollte so gewählt werden, dass unter Berücksichtigung der Massenkonzentration des Schwebstoffes die abgeschiedene Masse mit einer Unsicherheit von weniger als 5 % bestimmt werden kann.

4.3 Messung der Gesamt-Alpha-Aktivität

Zur Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivität genügen einfache Alpha-Aktivitäts-Messgeräte ohne Energie-Diskriminierung. Die Größe und die geometrische Form des Detektors sollte der Abmessung der eingesetzten Schwebstofffilter entsprechen. Ist die Schwankungsbreite des Nulleffektes durch die Bedingungen am Auf-

stellort des Alpha-Aktivitäts-Messgerätes groß, so muss der Nulleffekt vor jeder Schwebstofffiltermessung neu bestimmt werden.

Vor der Messung der Gesamt-Alpha-Aktivität der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen Partikel ist eine Wartezeit vom Ende der Probeentnahme bis zum Beginn der Messung des beaufschlagten Schwebstofffilters von mindestens 120 Stunden einzuhalten. In dieser Zeit klingen die kurzlebigen Alphastrahler ab. Jedoch wird nach Abschluss der Exposition auf Grund des radioaktiven Zerfalls der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen Radionuklide der langlebige Alphastrahler Po-210 gebildet. Der Anteil von Po-210 erhöht sich mit zunehmender Probeentnahmedauer und Wartezeit zwischen dem Ende der Probeentnahme und dem Beginn der Messung des beaufschlagten Schwebstofffilters. Daher sollte einerseits der Zeitraum der Probeentnahme möglichst klein sein und andererseits die Messung der Gesamt-Alpha-Aktivität der langlebigen Alphastrahler innerhalb eines Zeitraumes von etwa 120 Stunden bis 150 Stunden nach dem Ende der Probeentnahme erfolgen, um die Beeinflussung des Messergebnisses durch das nachwachsende Po-210 so gering wie möglich zu halten.

4.4 Kalibrierung

Die Kalibrierung umfasst die Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit unter Verwendung eines zertifizierten Kalibrierpräparates (Verwendung von " U_{nat} "). Die Form und die Größe der Fläche des Kalibrierpräparates sollten annähernd mit der zu messenden Filterprobe übereinstimmen. Außerdem muss der Abstand zwischen den Oberflächen von Kalibrierpräparat und Detektor gleich dem Abstand zwischen den Oberflächen von Schwebstofffilter und Detektor sein. Die Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit ist in Abständen von vier Wochen zu wiederholen. Die Messdauer zur Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit sollte in der Regel gleich der Nulleffektmessdauer sein und der Probenmessdauer entsprechen. Sie sollte mindestens 3600 Sekunden betragen. Unter der Voraussetzung, dass die Selbstabsorption im Kalibrierpräparat gering ist, wird die Nachweiswahrscheinlichkeit nach Gleichung (2) berechnet:

$$\varepsilon = \frac{R_{\text{bK}} - R_0}{A_{\text{K}}} \quad (2)$$

Aus Gleichung (3) folgt die relative Standardmessunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit:

$$\frac{s(\varepsilon)}{\varepsilon} = \sqrt{\frac{\frac{R_{\text{bK}}}{t_{\text{mK}}} + \frac{R_0}{t_0}}{(R_{\text{bK}} - R_0)^2} + \left(\frac{s(A_{\text{K}})}{A_{\text{K}}}\right)^2} \quad (3)$$

In den Gleichungen (2) und (3) bedeuten:

- ε Nachweiswahrscheinlichkeit in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;
- R_{bK} Bruttozählrate (Kalibrierpräparat) in s^{-1} ;
- R_0 Nulleffektzählrate in s^{-1} ;
- A_{K} Aktivität des Kalibrierpräparates in Bq;
- t_{mK} Messdauer des Kalibrierpräparates in s;

- t_0 Messdauer der Nulleffektmessung in s;
 $s(A_K)$ Standardabweichung der Aktivität des Kalibrierpräparates in Bq.

4.5 Einfluss der Selbstabsorption

Die Absorption der Alphastrahlung in der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen Partikelschicht wird durch den Selbstabsorptionskoeffizient f_2 berücksichtigt. Dieser ist abhängig von den Eigenschaften des Filtermaterials sowie der Masse und der Teilchengrößenverteilung der Partikel. Die Filterflächenbelegung ρ_F ist ein Maß für die auf dem Filter (effektive Fläche F_e) abgeschiedene Masse m des Staubes. Die Filterflächenbelegung ρ_F wird nach Gleichung (4) berechnet:

$$\rho_F = \frac{m}{F_e} \quad (4)$$

Eine genaue Bestimmung des Selbstabsorptionskoeffizienten f_2 für die jeweils vorliegende Situation ist durch entsprechende experimentelle Untersuchungen möglich. Auch Näherungsverfahren können brauchbare Werte für f_2 liefern. Für eine Filterflächenbelegung von $0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ bis $4,0 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ kann der Selbstabsorptionskoeffizient nach Gleichung (5) berechnet werden. Bei einer Flächenbelegung ρ_F kleiner als $0,5 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ wird die Selbstabsorption nicht berücksichtigt ($f_2 = 1$) und für ρ_F größer als $4,0 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ erfolgt keine Messung der Gesamt-Alpha-Aktivität des Filters.

$$f_2 = \frac{2}{2 - \frac{\rho_F}{\rho_{F\max}}} \quad (5)$$

In den Gleichungen (4) und (5) bedeuten:

- ρ_F Filterflächenbelegung in $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$;
 $\rho_{F\max}$ maximal zugrunde gelegte Filterflächenbelegung in $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$;
 F_e effektive Fläche in cm^2 ;
 f_2 Selbstabsorptionskoeffizient;
 m Masse in mg.

Dabei ist für $\rho_{F\max}$ die maximale Filterflächenbelegung zugrunde zu legen, bis zu der eine Messung der Aktivität auf dem Filter erfolgt (im Normalfall beträgt $\rho_{F\max} = 4,0 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$).

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration c wird nach Gleichung (6) berechnet:

$$c = \frac{f_2 \cdot R_n}{\varepsilon \cdot \eta_y \cdot V} \quad (6)$$

mit $R_n = R_b - R_0$ und $R_b = \frac{N_b}{t_m}$.

Die relative Standardmessunsicherheit der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration $s(c) \cdot c^{-1}$ wird nach Gleichung (7) berechnet:

$$\frac{s(c)}{c} = \sqrt{\frac{\frac{R_0}{t_0} + \frac{R_b}{t_m}}{(R_b - R_0)^2} + \left(\frac{s(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{s(V)}{V}\right)^2} \quad (7)$$

In Gleichung (6) und (7) bedeuten:

- c Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$;
- R_n Nettozählrate in s^{-1} ;
- R_b Bruttozählrate in s^{-1} ;
- R_0 Nulleffektzählrate in s^{-1} ;
- N_b Bruttoimpulsanzahl;
- t_m Messdauer der Probenmessung in s;
- t_0 Messdauer der Nulleffektmessung in s;
- f_2 Selbstabsorptionskoeffizient;
- ε Nachweiswahrscheinlichkeit in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;
- $s(\varepsilon)$ Standardmessunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;
- η_y Filterwirkungsgrad;
- V Luftvolumen in m^3 ;
- $s(V)$ Standardmessunsicherheit des Luftvolumens in m^3 .

5.2 Rechenbeispiel

Nachfolgend wird ein Rechenbeispiel für die Kalibrierung und für die Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration aufgeführt.

5.2.1 Kalibrierung

Nach einer gemäß Abschnitt 4.3 erfolgten Kalibrierung liegen folgende Daten vor:

$$\begin{aligned} R_{bk} &= 11,5 \text{ s}^{-1}; & A_K &= 50 \text{ Bq;} \\ R_0 &= 3,0 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}; & s(A_K) &= 1 \text{ Bq.} \end{aligned}$$

.

Mit diesen Größen ergeben sich für die Nachweiswahrscheinlichkeit und ihre relative Standardabweichung entsprechend den Gleichungen (2) und (3) die folgenden Werte:

$$\varepsilon = \frac{11,5 - 3,0 \cdot 10^{-4}}{50} \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} = 0,23 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

$$\frac{s(\varepsilon)}{\varepsilon} = \sqrt{\frac{\frac{11,5}{3600} + \frac{3,0 \cdot 10^{-4}}{3600}}{(11,5 - 3,0 \cdot 10^{-4})^2} + \left(\frac{1}{50}\right)^2} = 0,021$$

5.2.2 Ermittlung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration

Bei der Durchführung der Messung ergeben sich folgende Daten:

$$\begin{aligned} R_b &= 0,45 \text{ s}^{-1}; \\ R_0 &= 3,0 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}; \\ t_m &= 3600 \text{ s}; \\ t_0 &= 3600 \text{ s}; \\ f_2 &= 1,0; \\ \varepsilon &= 0,23 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}; \\ s(\varepsilon) &= 4,8 \cdot 10^{-3} \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}; \\ \eta_y &= 0,99; \\ V &= 30 \text{ m}^3; \\ s(V) &= 0,3 \text{ m}^3. \end{aligned}$$

Die Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration c beträgt nach Gleichung (6):

$$c = \frac{1,0 \cdot (0,45 - 3,0 \cdot 10^{-4})}{0,23 \cdot 0,99 \cdot 30} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 66 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Mit den obigen Werten beträgt nach Gleichung (7) die relative Standardmessunsicherheit der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration:

$$\frac{s(c)}{c} = \sqrt{\frac{\frac{0,45}{3600} + \frac{3,0 \cdot 10^{-4}}{3600}}{(0,45 - 3,0 \cdot 10^{-4})^2} + \left(\frac{4,8 \cdot 10^{-3}}{0,23}\right)^2 + \left(\frac{0,3}{30}\right)^2} = 3,4 \cdot 10^{-2}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Unsicherheit bei der Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration wird sowohl von der Messunsicherheit, die durch die Zählstatistik bedingt ist, als auch von den Unsicherheiten bei der Kalibrierung, bei der Ermittlung des Luftdurchsatzes durch den Filter bestimmt. In der Praxis muss darüber hinaus mit einer Unsicherheit bei der Probeentnahme von ca. 10 % bis 20 % gerechnet werden.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze g wird gemäß Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen für hinreichend große Impulszahlen des Nulleffektes nach Gleichung (8) berechnet:

$$g = \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{\varepsilon \cdot \eta_Y \cdot V} \cdot f_2 \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right)} \quad (8)$$

Neben den bereits definierten Symbolen bedeuten:

- g Nachweisgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
 $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile der Standardnormalverteilung zur Berücksichtigung der Fehler 1. und 2. Art.

6.2 Rechenbeispiel

Der Wert der Nachweisgrenze der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration beträgt für das obige Beispiel mit den folgenden Quantilwerten für $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$g = \frac{(3 + 1,645)}{0,23 \cdot 0,99 \cdot 30} \cdot 1,0 \cdot \sqrt{3,0 \cdot 10^{-4} \left(\frac{1}{3600} + \frac{1}{3600} \right)} \text{ Bq} \cdot \text{m}^3 = 2,8 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{m}^3$$

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Es sind keine Chemikalien erforderlich.

7.2 Geräte

- Schwebstofffilter nach (2);
- Vorrichtung zur Probeentnahme aerosolpartikelgetragener Radionuklide mit Bestimmung des untersuchten Luftvolumens;

- Messgerät für die Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivität von Schwebstofffiltern.

Literatur

- (1) Norm DIN 25423 Teil 1 Probenahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft; Allgemeine Anforderungen. 1999-10
- (2) Norm DIN 25423 Teil 3 Probenahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft; Probenahmeverfahren. 1987-03