



Überwachung der Radioaktivität von Luftschwebstoffpartikeln durch Gammaskpektrometrie

Bearbeiter: K. Heinemann, Jülich, ehem. Forschungszentrum Jülich GmbH
W. Kukla, Schönbrunn, ehem. Kernkraftwerk Obrigheim
T. Steinkopff, Deutscher Wetterdienst, Offenbach
H. Wershofen, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

Inhaltsverzeichnis

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
3	Messverfahren	1
	3.1 Probenentnahme.....	2
	3.2 Probenvorbereitung.....	2
	3.3 γ -spektrometrische Messung und Auswertung	2
	3.4 Betrachtung der Messunsicherheit und der erreichbaren Nachweisgrenze.....	4
	3.4.1 Kombinierte Standard-Messunsicherheit.....	4
	3.4.2 Erkennungs- und Nachweisgrenze.....	5
	3.4.3 Rechenbeispiel	6
4	Beurteilung des Verfahrens	6
5	Dokumentation	7
6	Literatur	8

1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Die regelmäßige Überwachung der Radioaktivität von Luftschwebstoffpartikeln (in der Literatur, wenn auch nicht korrekt, oft als Aerosole bezeichnet) ist sowohl in den Messprogrammen der AVV-IMIS [1] als auch in der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [2] vorgeschrieben. Die Maßnahmen dienen der qualitativen und quantitativen Erfassung von künstlichen Radionukliden in der Umwelt und der Kontrolle der Emissionen aus kerntechnischen Anlagen. Die hier vorliegende Messanleitung erfüllt die speziellen Forderungen nach Programmpunkt 1.2 der REI für den bestimmungsgemäßen Betrieb. Danach ist die kontinuierliche Probenentnahme von radioaktiven Luftschwebstoffpartikeln in der Umgebung einer kerntechnischen Anlage und die vierzehntägliche γ -spektrometrische Auswertung der bestaubten Filter im Labor als Überwachungsmaßnahme des Genehmigungsinhabers gefordert. Die vierteljährliche Auswertung von Mischproben ist gemäß Programmpunkt 1.2 Aufgabe der unabhängigen Messstellen.

2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze

Messgröße ist die über die Probenentnahmezeit gemittelte Aktivitätskonzentration von langlebigen, an Luftschwebstoffpartikeln gebundenen Radionukliden.

Maßeinheit ist die Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Als Nachweisgrenze fordert die REI [2] $0,4 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ bezogen auf Co-60.

3 Messverfahren

Im hier beschriebenen Verfahren ist der apparative Aufwand gering gehalten. Er reicht aber aus, um die geforderte Nachweisgrenze ohne Mühen zu erreichen.



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.4

Seite: 2 von 8

Stand: Januar 2012

3.1 Probenentnahme

Die Anforderungen an den Standort und die Sammelkonfiguration sind im LB 3.4.6 beschrieben. Verwendet wird ein Luftschwebstofffilter der *mindestens der Filterklasse E12 nach DIN EN 1822-1* gemäß DIN 25184 [3] mit einem Durchmesser von 6 cm, durch das kontinuierlich die Umgebungsluft mit einem mittleren Volumenstrom von 1,2 m³/h während der Probenentnahmezeit (zwei Wochen) gepumpt wird (Gesamtluftdurchsatz etwa 400 m³). Als Pumpe dient zum Beispiel eine Drehschieberpumpe.

3.2 Probenvorbereitung

Um im Spektrum den Untergrund durch die kurzlebigen natürlichen Radionuklide zu reduzieren, lässt man diese abklingen. Nach einer Abklingzeit von mindestens 3 Tagen wird das bestaubte Filter ohne weitere zusätzliche Bearbeitung in einer geeigneten Verpackung direkt γ -spektrometrisch gemessen.

Abbildung 1 zeigt die Spektren einer Schwebstofffilterprobe, die nach 1 h, nach 1 d und nach 5 d Abklingzeit jeweils 54.000 s gemessen wurde. Am Beispiel der 46-keV-Linie des ²¹⁰Pb wird die Erhöhung der Messempfindlichkeit durch das Abklingen der natürlichen Radioaktivität deutlich.

3.3 γ -spektrometrische Messung und Auswertung

Die Messung erfolgt mit einem Reinstgermanium-Detektor von etwa 30 % relativer Nachweiswahrscheinlichkeit (verglichen mit dem Wirkungsgrad eines 3" x 3" NaI(Tl)-Detektors und einer Co-60-Punktquelle in 25 cm Abstand). Filter (Probe) und Detektor sind mit etwa 10 cm Blei gegen die Umgebungsstrahlung abgeschirmt. Zur Analyse des Spektrums, zur Nuklidzuordnung und zur Bestimmung der Radioaktivitätskonzentration kann ein handelsübliches Auswerteprogramm verwendet werden, wie es etwa die Hersteller der Germaniumdetektoren und der Vielkanalanalysatoren anbieten. Das Spektrometer ist mit einem Viellinien-Kalibrierstrahler in derselben Messgeometrie kalibriert, wobei gegebenenfalls Summationskorrektionsfaktoren zu berücksichtigen sind. Die Messzeit wird mit 54.000 s angesetzt. Für den Filterwirkungsgrad wird der Wert des Herstellers des Filters verwendet. Die Radioaktivitätskonzentration wird auf die Mitte der Probenentnahmeperiode (zwei Wochen) bezogen. Bei genaueren Informationen über den Zeitpunkt und die Dauer des Auftretens einer Radioaktivitätskonzentration am Ort der Probenentnahme werden die Messergebnisse entsprechend korrigiert.

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

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

oder

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

mit

$$R_n = \frac{N_n}{t_m} \quad (1b)$$

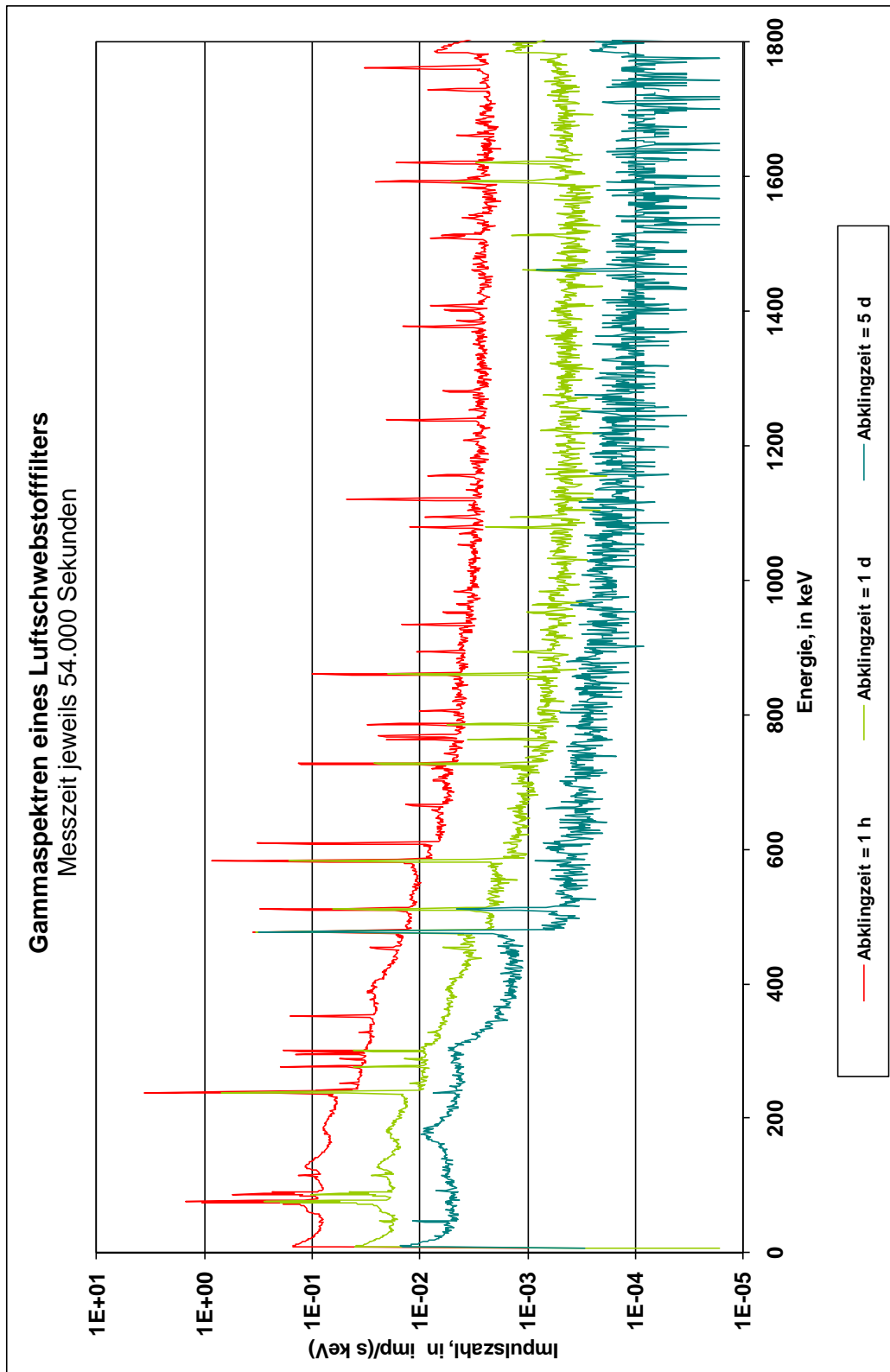


Abbildung 1: Spektren eines Luftschwebstofffilters, das nach 1 h, nach 1 d und nach 5 d Abklingzeit jeweils 54.000 s gemessen wurde



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.1.4

Seite: 4 von 8

Stand: Januar 2012

Dabei bedeuten:

- c_r : Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
- N_n : Nettoimpulsanzahl
- R_n : Nettozählrate
- ε_r : Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid r in $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
- p_γ : Emissionswahrscheinlichkeit pro Kernumwandlung
- t_m : Messzeit der Probe in s
- V : durchgesetztes Luftvolumen in m^3
- λ_r : Zerfallskonstante des Radionuklids r
- t_A : Zeitspanne zwischen Probenentnahme (bezogen auf einen mittleren Sammelzeitpunkt) und Messbeginn in s
- t_r : Halbwertszeit des Radionuklids r in s
- f_1 : Summationskorrektionsfaktor
- f_2 : Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide in der Zeitspanne von der Probenentnahme bis zum Beginn der Messung
- f_3 : Korrektionsfaktor für den Zerfall der Radionuklide während der Messung

Der Summationskorrektionsfaktor f_1 bei Impulsverlusten liegt bei aufliegenden Punkt- und Flächenpräparaten in der Regel bei Werten zwischen 1,1 und 1,5.

Die Aktivität zu einem Bezugszeitpunkt, der um eine Zeitspanne t_A vor dem Beginn der Messung liegt, erhält man durch Multiplikation mit f_2 nach Gleichung (2):

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

Für den Korrektionsfaktor f_3 gilt nach Gleichung (3)

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

Ist die Zeitspanne zwischen Sammel- und Messzeit bzw. die Messzeit sehr viel kleiner als die Halbwertszeit des zu messenden Radionuklids, gilt $f_2 = 1$ bzw. $f_3 = 1$.

3.4 Betrachtung der Messunsicherheit und der erreichbaren Nachweisgrenze

3.4.1 Kombinierte Standard-Messunsicherheit

Die kombinierte Standard-Messunsicherheit der Aktivitätskonzentration s_G setzt sich im Wesentlichen aus den Beiträgen der Probenentnahme (Bestimmung des Luftdurchsatzes, einwandfreier Sitz des Filters) s_P , der Kalibrierung s_K und dem der statistischen Messunsicherheit s_S nach folgender Gleichung zusammen:

$$(s_G)^2 = (s_P)^2 + (s_K)^2 + (s_S)^2 \quad (4)$$

Die Messunsicherheit der Probenentnahme wird zu etwa 15 % abgeschätzt.

Der Beitrag der Kalibrierunsicherheit ergibt sich aus dem Vergleich der Ergebnisse der Ringversuche. Sie wird als Mittel über den gesamten Energiebereich mit etwa 5 % angenommen und sollte diesen Wert auch nicht überschreiten.

Der relative Beitrag der statistischen Messunsicherheit (s_S) der Aktivitätskonzentration resultiert aus der Gleichung (5) und hängt von der Standard-Messunsicherheit $s(R_n)$ der Nettozählrate R_n ab.

$$s_s = \frac{s(c_r)}{c_r} = \frac{s(R_n)}{R_n} \quad (5)$$



Für die Standardabweichung $s(R_n)$ der Nettozählrate R_n gilt:

$$s(R_n) = \sqrt{\frac{R_n + \frac{b \cdot \overline{R_0(E_\gamma)}}{t_m}}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2L}\right)} \quad (6)$$

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
- $\overline{R_0(E_\gamma)}$: mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal in s^{-1}
- E_γ : Energie der Gammalinie
- L : Anzahl der Kanäle für die Untergrundermittlung

3.4.2 Erkennungs- und Nachweisgrenze

Die mit dem Messverfahren erreichbare Nachweisgrenze berechnet sich nach DIN 25482, Teil 5, [4]. In den Messanleitungen des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit [5] und in den KTA-Regeln werden vereinfachte Gleichungen angegeben, die hier noch verwendet werden sollen bis die inzwischen verabschiedete DIN ISO 11929 [6] umgesetzt ist.

- Liefert die mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal $\overline{R_0(E_\gamma)}$ hinreichend große Impulsraten und
- gilt für die Beziehung zwischen der Fußbreite b der Linie und der Breite L der Bereiche, aus denen links und rechts der Linie der Untergrund ermittelt wird,

$$2L = b, \quad (7)$$

so bestimmt sich die Nachweisgrenze $G_{N,r}$ für die Radioaktivitätskonzentration des Radionuklids r entsprechend der folgenden Gleichung:

$$G_{N,r} = \frac{1}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{\frac{2b \cdot \overline{R_0(E_\gamma)}}{t_m}} \quad (8)$$

Dabei bedeuten:

- $G_{N,r}$: Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in der Luft in Bq/m^3
- $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$: Quantile der standardisierten Normalverteilung
- ε_r : Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid r in $Bq^{-1} \cdot s^{-1}$
- p_γ : Emissionswahrscheinlichkeit für die Gammalinie mit der Energie E_γ des betrachteten Radionuklids r
- V : Luftdurchsatz durch das Filter in m^3
- $\overline{R_0(E_\gamma)}$: mittlere Zählrate des Nulleffekts pro Kanal
- b : Fußbreite der Linie
- L : Breite der Bereiche, aus denen links und rechts der Linie der Untergrund bestimmt wird
- t_m : Messzeit in s
- $G_{E,r}$: Erkennungsgrenze für die Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in der Luft in Bq/m^3

Die Erkennungsgrenze $G_{E,r}$ der Aktivitätskonzentration des Radionuklids r wird nach Gl. (9) berechnet zu:



$$G_{E,r} = [k_{1-\alpha} / (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})] \cdot G_{N,r} \quad (9)$$

3.4.3 Rechenbeispiel

Für das oben beschriebene γ -Spektrometer lassen sich für das Bezugsnuklid Co-60 Erkennungs- und Nachweisgrenze mit folgenden Parametern berechnen:

$k_{1-\alpha}$	= 3,0	(99,9 % statistische Sicherheit der Normalverteilung)
$k_{1-\beta}$	= 1,65	(95 % statistische Sicherheit der Normalverteilung)
ε_r	= $1,96 \cdot 10^{-2}$	(Nachweiswahrscheinlichkeit für Co-60)
p_γ	= 0,999826	(Emissionswahrscheinlichkeit für die Linie mit der Energie von 1332,50 keV des Nuklids Co-60)
V	= 400 m^3	(Luftdurchsatz durch das Filter)
t_m	= 54.000 s	(Messzeit)
$R_0(E_\gamma)$	= $1,5 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$	(Impulse pro Sekunde und Kanal, geschätzt)
b	= 4 Kanäle	(Fußbreite der Linie, bei 2 k-Spektren)
L	= 2 Kanäle	(Breite der Bereiche, aus denen der Untergrund bestimmt wird)
f_1	= 1	
f_2	= 1	
f_3	= 1	

Für die Nachweisgrenze ergibt sich nach Gleichung (8):

$$G_{N,Co-60} = 0,28 \text{ mBq/m}^3$$

Für die Erkennungsgrenze gilt entsprechend Gleichung (9):

$$G_{E,Co-60} = 0,18 \text{ mBq/m}^3$$

4 Beurteilung des Verfahrens

Das vorgeschlagene Verfahren erlaubt eine relativ einfache messtechnische Erfassung der Aktivitätskonzentration von künstlichen Radionukliden. Bei höheren Luftdurchsätzen lässt sich die Nachweisgrenze senken, allerdings kann die Benutzung eines größeren Filters auch zu einer schlechteren Messgeometrie führen, was jeweils im Einzelfall zu überprüfen ist.

Zwingende Voraussetzung für diese Überwachungsmaßnahme ist der Aufbau eines Probenentnahmesystems für Luftschwebstoffpartikel. Die Auslegung des benötigten γ -Spektrometrie-Messplatzes sollte so erfolgen, dass er auch für alle anderen Messaufgaben benutzt werden kann.

Bei Probenentnahmesystemen, die nicht kontinuierlich den Luftdurchsatz messen, kann die Messunsicherheit durch den nicht immer konstanten Luftdurchsatz durch das Filter den größten Beitrag zur kombinierten Standard-Messunsicherheit liefern. Diese Messunsicherheit der Probenentnahme wird im Wesentlichen durch die schwankende Feuchte und durch unterschiedliche Staubgehalte der Luft verursacht.

Der Arbeitszeitbedarf ergibt sich im Wesentlichen aus den Messzeiten für die Messung von Probe und Nulleffekt. Der Zeitaufwand für Filterwechsel und Auswertung der Messung ist demgegenüber vernachlässigbar.



Zur Erzielung der nach REI geforderten Nachweisgrenze muss die immer vorhandene Aktivität natürlicher Radionuklide zunächst abklingen, da diese in der Regel sehr viel größer als die künstliche Aktivität ist. Je nach betrieblichen Erfordernissen kann die Abklingzeit kürzer oder länger als die in Abschnitt 3.2 geforderten 3 Tage sein.

Tabelle 1 zeigt beispielhaft die Nachweisgrenzen für einige Radionuklide in Bq/Probe, die nach Messzeiten von jeweils 54.000 s erreicht wurden. Die Messungen wurden nach Abklingzeiten von 1 h, 1 d und 5 d gestartet.

Die im Beispiel angesetzte Messzeit von 54.000 s ist ein Erfahrungswert. Nach der obigen Rechnung würde auch eine etwas kürzere Messzeit ausreichen, um die nach REI geforderte Nachweisgrenze zu erreichen.

Das Filter kann auch zur Bestimmung der α - und der β -Radioaktivitätskonzentration verwendet werden.

Tabelle 1: Bei der Messung der in Abb. 1 gezeigten Spektren erreichte Nachweisgrenzen in Bq/Probe

Radionuklid	Messung nach 1 h	Messung nach 1 d	Messung nach 5 d
⁵¹ Cr	3,28	1,65	1,21
⁵¹ Mn	0,30	0,12	0,08
⁶⁰ Co	0,37	0,14	0,08
¹³¹ I	0,49	0,27	0,22
¹³⁷ Cs	0,39	0,17	0,06
⁴⁰ K	4,3	1,8	1,4
²¹⁰ Pb	49	23	12

5 Dokumentation

Der Probenentnahmeort, das Datum und die Uhrzeit des Filterwechsels, das Luftvolumen, die Abklingzeit, das Messdatum und die Messzeit müssen in einem Probenentnahmeprotokoll (als Begleitzettel zur Probe) oder in einem Probenentnahmebuch notiert werden.

Zur Berichterstattung in Quartalsberichten nach REI müssen Ort, Beginn und Ende der Probenentnahmezeit, die Abklingzeit und das Messergebnis mit statistischer Standard-Messunsicherheit angegeben werden.

Die Filter sollten für eine möglicherweise notwendige Kontrollmessung bis zum Ende des folgenden Jahres zur Verfügung stehen. Die Beschriftung der Rückstellprobe muss eine eindeutige Identifizierung der eingelagerten Probe mit dem Datum der Einlagerung und den Aktivitätskonzentrationen der nachgewiesenen Radionuklide ermöglichen, z. B. Probennummer, Probenentnahmezeitraum, Aktivitätskonzentration am Bezugszeitpunkt. Im Hinblick auf die fällige Aussortierung oder Beseitigung der rückgestellten Luftschwebstofffilter empfiehlt es sich, diese getrennt von dauerhaft zu lagernden Proben aufzubewahren.

Gängige Praxis zur Aufbewahrung von Luftschwebstofffiltern ist eine Rückstellfrist gemäß folgendem Konzept:

Die Luftschwebstofffilter, z. B. aus dem Kalenderjahr 2000, werden einmalig im Januar 2002 ausgesondert. Dadurch wird erreicht, dass die Luftschwebstofffilter vom Dezember 2000 garantiert noch ein ganzes Jahr zur Verfügung stehen, wohingegen die Luftschwebstofffilter vom Januar 2000 fast 2 Jahre aufbewahrt würden.

Die Aufzeichnungen der Messergebnisse sind nach der REI 30 Jahre lang aufzubewahren.



6 Literatur

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV- IMIS), Bundesanzeiger 2006, Nummer 244a, 13. Dezember 2006
- [2] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI), GMBI 2006, Nr. 14-17 S. 254 ff.
- [3] DIN EN 1822-1 Schwebstofffilter (EPA, HEPA und ULPA) - Teil 1: Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung; Deutsche Fassung EN 1822-1:2009
- [4] DIN 25 482, Teil 5: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessung - Zählende hochauflösende gammaspektrometrische Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbeeinflussungseffektes, Juni 1993
- [5] Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung, ISSN 1865-8725, online verfügbar unter http://www.bmu.de/strahlenschutz/ueberwachung_der_umweltradioaktivitaet/messanleitungen/doc/42042.php
- [6] DIN ISO 11929:2011 Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen, 2011

Bitte beachten Sie den Hinweis im Losen Blatt 1.3 „Erläuterungen zur Loseblattsammlung“.