



**Schnellmethode zur Bestimmung schwebstoffgebundener Gesamt-Beta-Aktivität in der bodennahen Luft bei Messfahrten**

Bearbeiter: A. Wicke, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Eggenstein-Leopoldshafen  
R. Winkler, Dachau, ehem. GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg

**Inhaltsverzeichnis**

1	Zweck der Überwachungsmaßnahme.....	1
2	Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze.....	1
3	Messverfahren .....	1
	3.1 Probenentnahme.....	1
	3.2 Probenvorbereitung.....	2
	3.3 Messung und Auswertung.....	2
	3.4 Fehlerbetrachtung und erreichbare Nachweisgrenze .....	2
4	Bewertung des Verfahrens.....	3
5	Dokumentation .....	3
6	Besonderheiten, Bemerkungen.....	3
7	Literatur .....	4
8	Anhang: Berechnung von Messunsicherheit und Nachweisgrenzen.....	5

**1 Zweck der Überwachungsmaßnahme**

Die Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen (REI) [1] schreibt zwar in der Fassung vom März 2006 die Messung der schwebstoffgebundenen Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft im Störfall nicht mehr für Kernkraftwerke vor, jedoch wird sie in manchen Überwachungsprogrammen praktiziert. Außerdem kann sie gemäß Anhang C.2 für Endlager angeordnet werden.

Es soll ein Verfahren eingeübt und für den Störfall bereitgehalten werden, welches die rasche Feststellung einer Kontamination der Aerosolpartikel in der Umgebungsluft der Anlage gestattet. Das Verfahren erlaubt im Störfall eine rasche Auswahl derjenigen Filterproben, die vorrangig für eine eventuell notwendige nuklid-spezifische Analyse herangezogen werden sollen.

**2 Messgröße, Maßeinheit und zu fordernde Nachweisgrenze**

Messgröße ist der zeitliche Mittelwert der schwebstoffgebundenen Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration, bezogen auf Sr-90/Y-90 während einer Sammelzeit von zehn Minuten, bestimmt nach einer Abklingzeit für kurzlebige Radionuklide von wenigstens 15 - 20 Minuten nach dem Bestaubungsende mit einer Messzeit von einer Minute. Die Maßeinheit ist  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Als Nachweisgrenze werden  $20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , bezogen auf Sr-90/Y-90, in Anhang C.2 der REI [1] gefordert.

**3 Messverfahren**

**3.1 Probenentnahme**

Die Probenentnahme erfolgt auf einem Schwebstofffilter der Filterklasse H12, z. B. GF 8 der Firma Whatman, Schleicher & Schuell, mit einem Durchmesser von 50 bis 200 mm bei einem Luftdurchsatz von mindestens  $6 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$ . Durch den Einsatz von tragbaren sog. High-Volume-Samplern (z. B. der Firma Staplex) kann der Luftdurchsatz bis auf  $120 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$  gesteigert werden. Die Sammelzeit beträgt zehn Minuten.



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

**Blatt: 3.2.3**

Seite: 2 von 6

Stand: Oktober 2009

Bezüglich der Durchführung der Messfahrten und der Ausstattung des Messwagens wird auf das Lose Blatt 3.2.6 [2] verwiesen. Die einheitliche Erfassung und Kennzeichnung der Probenentnahme- und Messbedingungen ist im Losen Blatt 3.2.7 [3] beschrieben.

Es ist zweckmäßig, für das Sammelgerät einen Regenschutz vorzusehen.

### 3.2 Probenvorbereitung

Das Filter wird der Sammelapparatur entnommen, in eine Messschale eingelegt und zur Messung gebracht. Um eine Kontamination der Messapparatur zu vermeiden, sollte für jedes Filter eine eigene Messschale verwendet werden.

### 3.3 Messung und Auswertung

Eine Schnellmessung der Filter erfolgt mit einem Kontaminations-Handmessgerät (z. B. dem LB 214 Szint von der Firma Berthold-Technologies). Neben gasgefüllten Proportional-Zählrohren haben sich Geräte mit Szintillationsschirm bewährt. Bei geeigneter Ausstattung des Messfahrzeugs kommen Gasdurchflusszähler in Antikoinzidenzanordnung zum Einsatz. Die Kalibrierung der Detektoren erfolgt mit einem Sr-90/Y-90-Flächenstandardpräparat. Die Messzeit beträgt eine Minute. Der Nulleffekt der Messanordnung sollte möglichst unmittelbar vor und nach der Messung mit einem Leerfilter auf einer eigenen Messschale kontrolliert werden: Die Messzeit sollte jeweils eine Minute betragen. Es wird der Mittelwert aus beiden Nulleffektmessungen verwendet. Bei hoher Untergrundzählrate muss die Messanordnung unbedingt abgeschirmt werden.

Anhand des abgelesenen oder aus Sammelzeit und Luftdurchsatz errechneten Luftvolumens (mindestens:  $1/6 \text{ h} \times 6 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1} = 1 \text{ m}^3$ ) wird die  $\beta$ -Aktivitätskonzentration ermittelt. Es wird zunächst keine Abklingkorrektur vorgenommen. Um den Beitrag der Radon-Zerfallsprodukte auszuschließen, ist eine Nachmessung nach einer Abklingzeit von ca. 60 Minuten zweckmäßig. Die Filter werden für eventuell notwendige Nachmessungen oder nuklidspezifische Analysen vorgehalten.

### 3.4 Messunsicherheit und erreichbare Nachweisgrenze

Bei der Ermittlung der  $\beta$ -Aktivitätskonzentration müssen für die systematische Messunsicherheit folgende Fehlerquellen in Betracht gezogen werden:

- a) Luftmengenmessung ( $< 10 \%$ ),
- b) Kalibrierung des Detektors ( $< 10 \%$ ),
- c) Abklingen der Aktivität (je nach Nuklidgemisch),
- d) Energieabhängigkeit der Zählzählbeute (je nach Nuklidgemisch),
- e) Beitrag von natürlicher Aktivität (je nach Aktivitätskonzentration der natürlichen Radionuklide).

Die zählstatistische Messunsicherheit und die erreichbare Nachweisgrenze sind u. a. vom äußeren Strahlenfeld, welches den Nulleffekt der Messanordnung bedingt, abhängig. Wenn man davon ausgeht, dass die Messung außerhalb der kontaminierten Zone durchgeführt wird, so lässt sich bei zehn Minuten Sammelzeit und einem Luftdurchsatz von  $6 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  für einen Großflächenzähler ( $170 \text{ cm}^2$  Zählfläche,  $60 \text{ Imp/min}$  Nulleffekt) für die geforderte Nachweisgrenze von  $20 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  eine zählstatistische Messunsicherheit von etwa  $7,5 \%$  errechnen. Die erreichbare Nachweisgrenze läge unter dieser Voraussetzung bei etwa  $4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ . Die ausführliche Berechnung ist im Anhang zusammengestellt.



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

**Blatt: 3.2.3**

Seite: 3 von 6

Stand: Oktober 2009

#### **4 Bewertung des Verfahrens**

Das Verfahren gestattet eine messtechnisch einfache und für den Störfall ausreichend empfindliche Kontrolle der schwebstoffgebundenen Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in der Umgebung von kerntechnischen Anlagen. Aussagen über die nuklidspezifische Zusammensetzung sind ohne weitere Messungen – Abklinganalyse, Alpha- oder Gammaspktrometrie – nicht möglich.

Aufgrund der Erfahrungen nach Tschernobyl ist für die Bewertung des Verfahrens folgendes festzustellen:

- Zur Beurteilung eines Störfalls hat die Ermittlung der Gesamt- $\beta$ -Aktivität nur eine begrenzte Aussagekraft. Es ist lediglich eine „Ja-Nein-Entscheidung“ möglich.
- Für eine Dosisermittlung im Störfall sind weitere nuklidspezifische Messungen erforderlich. Für diesen Fall ist eine Vorselektion durch die Gesamt- $\beta$ -Messung durchaus sinnvoll.
- Im Bereich bis etwa  $50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  ist eine Unterscheidung zwischen künstlicher und kurzlebiger natürlicher Aktivität problematisch. Eine eventuell notwendige Abklingmessung, d. h. eine zweite Messung nach etwa 60 Minuten, ist zeitaufwändig und trägt je nach vorliegendem Nuklidgemisch nicht immer zur Klärung bei.

Es ist ferner festzustellen, dass in den letzten Jahren große Fortschritte auf dem Gebiet der nuklidspezifischen Analyse mit einfach zu bedienenden transportablen Gammaspktrometern mit schneller Spektrenauswertung gemacht wurden, so dass die Aktivität der Aerosolpartikel häufiger bevorzugt direkt gammaspktrometrisch ermittelt wird, z. B. nach dem im Losen Blatt 3.2.4 [4] beschriebenen Verfahren.

#### **5 Dokumentation**

Probenentnahmeort, Datum, Uhrzeit des Sammelbeginns, Sammelzeit, Luftvolumen, Abklingzeit, Uhrzeit des Messbeginns, Messzeit, Zählrate, Nulleffekt vor und nach der Messung sowie besondere Beobachtungen sind zu notieren. Es wird dringend empfohlen, entsprechende Protokollblätter vorzubereiten, so dass keine wichtigen Parameter im Feld vergessen werden.

Besonderheiten der einheitlichen Erfassung und Kennzeichnung der Probenahme- und Messbedingungen im Rahmen des Routinemessprogramms für den Störfall sind dem Losen Blatt 3.2.7 [3] zu entnehmen.

#### **6 Besonderheiten, Bemerkungen**

Wie bereits erwähnt, kann die natürliche Radioaktivität in der Umgebungsluft einen Beitrag zur ermittelten schwebstoffgebundenen Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration liefern. Dieser Beitrag kann in Abhängigkeit von verschiedenen Faktoren starken Schwankungen unterworfen sein [5]. Während der periodischen Messfahrten sollte man sich einen Überblick über diesen Beitrag und die Schwankungsbreite verschaffen.

Den wesentlichen Anteil an der natürlichen Aktivität der Aerosolpartikel haben die kurzlebigen Tochternuklide des Rn-222 aus der Uran-Radium-Zerfallsreihe: Po-218 ( $T_{1/2} = 3,05 \text{ min}$ ), Pb-214 ( $T_{1/2} = 26,8 \text{ min}$ ), Bi-214 ( $T_{1/2} = 19,8 \text{ min}$ ) und Po-214 ( $T_{1/2} = 164 \mu\text{s}$ ). Die relativen Aktivitätsverhältnisse hängen stark vom Turbulenzgrad der Atmosphäre ab. Die mittlere Aktivitätskonzentration des Rn-222 beträgt in Mitteleuropa etwa  $5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  in einigen Metern Höhe über dem Erdboden [6].

Eine relativ einfache Kontrolle darüber, ob es sich bei der gesammelten Filteraktivität um natürliche Aktivität handelt, ist während der routinemäßigen Messfahrten durch Abklinganalyse möglich, indem man 60 Minuten nach der ersten Messung eine zweite Messung anschließt.



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

**Blatt: 3.2.3**

Seite: 4 von 6

Stand: Oktober 2009

**7 Literatur**

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, „Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen“, GMBI. Nr. 57 (2006), S. 254 ff
- [2] H. Hauske, E.-M. Friedland, L. Izquierdo, J. Narrog, A. Neu, W. Seider: Konzeption und Ausstattung von Messfahrzeugen zur Störfallüberwachung bei kerntechnischen Anlagen, Blatt 3.2.6, Stand Juli 1996, in „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V.(Hrsg.), FS-78-15-AKU, ISSN 1013-4506, seit Dezember 2006 im Internet unter [www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung](http://www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung), Einsichtnahme: 24.08.2009
- [3] A. Abraham, B. Bucher, M. Kaden, A. Neu, K. Prokert, D. Wittekind: Einheitliche Erfassung und Kennzeichnung der Probenahme- und Messbedingungen bei Messfahrten, Blatt 3.2.7, Stand Juni 2009, in „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V.(Hrsg.), FS-78-15-AKU, ISSN 1013-4506, seit Dezember 2006 im Internet unter [www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung](http://www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung), Einsichtnahme: 24.08.2009
- [4] J. Narrog, A. Neu: Überwachung der Radioiod- und Radioaerosolaktivität der Luft mit mobilem Sammler und nachfolgender nuklidspezifischer Auswertung, Blatt 3.2.4, Stand Februar 2009, in „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V.(Hrsg.), FS-78-15-AKU, ISSN 1013-4506, seit Dezember 2006 im Internet unter [www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung](http://www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung)
- [5] C. E. Junge, Air Chemistry and Radioactivity, Int. Geophysics Series, Vol. 4, Academic Press, New York/London (1963) S. 211 - 230
- [6] United Nations, UNSCEAR 1988 Report to the General Assembly, Annex A, 92
- [7] DIN 25482 Teil 1: Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlungsmessungen – Zählende Messungen ohne Berücksichtigung des Probenbehandlungseinflusses, Beuth-Verlag GmbH, Berlin, April 1989
- [8] J. Narrog, W. Kukla, A. Neu, M. Rietschel, E. Rose, M. Vilgis, M. Winter: Berichterstattung gemäß der Richtlinie zur Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen, Blatt 2.4, Stand April 1997, in „Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität“, Loseblattsammlung des Arbeitskreises Umweltüberwachung, Fachverband für Strahlenschutz e.V.(Hrsg.), FS-78-15-AKU, ISSN 1013-4506, seit Dezember 2006 im Internet unter [www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung](http://www.fs-ev.de/aku-loseblattsammlung), Einsichtnahme: 24.08.2009

---

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

**8 Anhang: Berechnung von Messunsicherheit und Nachweisgrenzen**

Die Berechnungen von Messunsicherheit und Nachweisgrenzen basieren auf den Vorgaben der DIN 25482, Teil 1 [7] und werden im Zusammenhang mit der Berichterstattung nach REI in der Anlage 1 des Losens Blattes 2.4 [8] erläutert. Die Vorgehensweise wird im Folgenden mit den Daten aus Kap. 3 gezeigt:

Die Standardabweichung  $s_n$  für die Berechnung der Messunsicherheit für integrale, zählende Messungen ohne Probenbehandlungseinfluss wird berechnet nach (1)

$$s_n = \sqrt{\frac{R_0}{t_0} + \frac{R_m}{t_m}} \quad (1)$$

mit

$R_0$  = Nulleffekt in  $s^{-1}$

$R_m$  = Zählrate für die betrachtete Konzentration in  $s^{-1}$

$t_0$  = Nulleffekt-Messzeit in s

$t_m$  = Messzeit in s.

Die Zählrate  $R_m$  errechnet sich nach (2) zu:

$$R_m = \frac{c \cdot V}{f \cdot F} \quad (2)$$

wobei:

$c$  = Aktivitätskonzentration in der Luft in  $Bq \cdot m^{-3}$

$V$  = Luftdurchsatz in  $m^3$

$f$  = Kalibrierfaktor in  $s \cdot Bq \cdot m^{-2}$

$F$  = Filterfläche in  $m^2$ .

Setzt man für das in Kap. 3 genannte Beispiel in (2) folgende Werte ein:

$c$  =  $20 Bq \cdot m^{-3}$  (geforderte Nachweisgrenze)

$V$  =  $1 m^3$

$f$  =  $150 s \cdot Bq \cdot m^{-2}$  (Kalibrierfaktor für LB 214 Szint, bezogen auf Sr-90/Y-90)

$F$  =  $0,03 m^2$ ,

so errechnet sich eine Zählrate  $R_m = 4,4 s^{-1}$ .

Mit einem Nulleffekt von  $R_0 = 1 s^{-1}$  und einer Messzeit von  $t_0 = t_m = 60 s$ , sowohl für die Messung des Nulleffektes als auch für die Messung des beaufschlagten Filters selbst, ergibt sich nach (1) ein Wert für  $s_n$  von  $0,3 s^{-1}$ . Mit  $s_n$  wird die zählstatistische Messunsicherheit  $u_z$  nach (3) wie folgt berechnet, sofern die Unsicherheit des Kalibrierfaktors vernachlässigt werden kann (siehe [8]):

$$u_z = \frac{f \cdot k_v \cdot F \cdot s_n}{V} \quad (3)$$

wobei nach [8] der statistische Faktor  $k_v = \pm 1$  gesetzt wird.



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

**Blatt: 3.2.3**

Seite: 6 von 6

Stand: Oktober 2009

Als Ergebnis erhält man mit den Werten aus Kap. 3 für  $u_z$  einen Wert von rd.  $1,5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Die relative Messunsicherheit beträgt für die gemessenen  $20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  damit 7,5 %.

Unter den gleichen Bedingungen kann man die erreichbare Nachweisgrenze nach (4) wie folgt errechnen:

$$G_N = \frac{f \cdot k_N \cdot F \cdot s_{EN}}{V} \quad (4)$$

wobei für  $k_N$ , den Faktor für die statistische Sicherheit, nach [8] ein Wert von 4,6 gilt. Die Standardabweichung  $s_{EN}$  der Zählrate für integrale, zählende Messungen ohne Probenbehandlungseinfluss wird durch (5) definiert (siehe [8]):

$$s_{EN} = \sqrt{\frac{R_0}{t_0} + \frac{R_0}{t_m}} \quad (5)$$

Mit  $R_0 = 1 \text{ s}^{-1}$  und den oben angegebenen Werten errechnet sich für  $s_{EN}$  ein Wert von rd.  $0,2 \text{ s}^{-1}$  und eine Nachweisgrenze von rd.  $4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ .