

Verfahren zur Bestimmung der Gesamt-Beta-Aktivität im Niederschlag

A- β -GESAMT-NIEDE-01

Bearbeiter:

W. Kiese Wetter

H. Diedrich

W. Dyck

T. Steinkopff

H. Ulbricht

Leitstelle für Luft und Niederschlag

3 Verfahren zur Bestimmung der Gesamt-Beta-Aktivität im Niederschlag

1 Anwendbarkeit

Das nachfolgend beschriebene Verfahren dient der Bestimmung der flächenbezogenen Gesamt- β -Aktivität im Niederschlag (Gesamtdeposition). Es genügt den Anforderungen der Messprogramme der AVV-IMIS [1]. Da bei diesem Verfahren der Niederschlag eingedampft wird, ist zu bedenken, dass leichtflüchtige Radionuklide wie z. B. I-131 entweichen können und daher nicht erfasst werden.

2 Probenentnahme

Der Niederschlag wird in einer Auffangwanne gesammelt, die aus einer nach oben offenen Sammelfläche mit einer Ablaufmöglichkeit für den Niederschlag besteht. Weitere Ausführungen zur Wahl des Probenentnahmeortes, der Probenentnahmekonfiguration und zur Bestimmung der Gesamtdeposition (Trocken- und Nassdeposition) finden sich in A-VORBEMERK-NIEDE-01 und im Verfahren A- γ -SPEKT-NIEDE-01.

3 Analytik

3.1 Prinzip der Methode

Die in einem Probenentnahmeintervall gesammelte wässrige Niederschlagsprobe wird eingedampft. Die Gesamt- β -Aktivität der eingedampften Niederschlagsprobe wird 24 und 120 Stunden nach Ende der Probenentnahme gemessen. Die kurzlebigen Radonfolgeprodukte sind nach 24 Stunden weitgehend zerfallen. Als Ergebnis erhält man die Summe der langlebigen künstlichen und natürlichen Radioaktivität. Die Messung nach 24 Stunden dient der schnellen Erkennung der Deposition von künstlichen Radionukliden. Die Ergebnisse der nach 120 Stunden verzögert erfolgten Messung werden dokumentiert.

Aus der Aktivitätskonzentration der Probe kann durch Multiplikation mit der Niederschlagsmenge pro Quadratmeter die Deposition (flächenbezogene Aktivität) berechnet werden.

3.2 Probenvorbereitung

Grundlegende Fragen zur Probenvorbereitung werden im Verfahren A- γ -SPEKT-NIEDE-01 erörtert.

Die gesammelte Niederschlagsprobe wird dem Sammlergefäß entnommen und das Volumen gemessen. Die Niederschlagshöhe (mm) am Standort wird mittels standardisierter meteorologischer Instrumente ermittelt. Die Niederschlagsprobe wird in ein Verdampfungsgefäß überführt (Stahlschüssel, Porzellanschüssel oder Edelstahltopf) und auf einer

Heizplatte bei mäßigem Sieden schonend auf ein Volumen von ca. 100 ml eingedampft. Die wässrige Niederschlagsprobe mit den darin enthaltenen Schwebeteilchen wird mit Hilfe eines Gummiwischers in kleinere Porzellanschälchen überführt und auf einem Sandbad weiter eingeeengt. Dabei ist sehr vorsichtig zu verfahren, um Materialverluste zu vermeiden. Im letzten Schritt wird der feuchte Rückstand wiederum mit Hilfe eines Gummiwischers in ein vorher ausgewogenes Stahlschälchen (Durchmesser 30 mm) überführt. Reste am Gummiwischer werden mit wenigen Tropfen deionisiertem Wasser abgespült. Unter einer Infrarotlampe (100 W, Abstand zum Präparat ca. 10 cm) wird die Probe getrocknet. Der Eindampfrückstand sollte möglichst gleichmäßig auf dem Boden des Schälchens verteilt sein.

Die getrocknete Probe wird gewogen. Das Nettogewicht der Probe, einige 100 mg pro Probe, wird zur Ermittlung des massebezogenen Kalibrierfaktors benötigt. Der Feststoffgehalt des Niederschlags liegt im Allgemeinen zwischen 50 mg und 500 mg pro Liter.

3.3 Radiochemische Trennung

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

4 Messung der Aktivität

4.1 Prinzip der Methode

Zur Messung der Gesamt- β -Aktivität wird ein in Antikoinzidenz geschalteter Low-level-Betamessplatz mit Gasdurchflusszählrohr verwendet. Als Zählgas wird eine Mischung aus 99,05 % Helium und 0,95 % Isobutan eingesetzt. Das Zählrohr ist mit Bleiziegeln von 100 mm Wandstärke abgeschirmt. Die Zählrate der eingedampften Probe wird 24 und 120 Stunden nach Ende der Probeentnahme gemessen. Vor und nach jeder Messreihe ist eine Nulleffektmessung (Messung mit leerem Schälchen) durchzuführen. Bei allen Messungen beträgt die Messzeit mindestens 6000 Sekunden.

4.2 Kalibrierung

Zur Kalibrierung wird Kaliumchlorid (KCl) verwendet, da natürliches Kalium in einer genau bekannten Menge auch das radioaktive Isotop K-40 enthält (vergleiche auch Kapitel IV.6.4 dieser Messanleitungen). K-40 wird zur Kalibrierung eingesetzt, da seine mittlere Beta-Energie etwa der mittleren Beta-Energie eines Spaltproduktgemisches entspricht. 1000 mg Kaliumchlorid entsprechen einer Gesamt- β -Aktivität von 14,49 Bq. Mit mindestens fünf Kaliumchlorid-Kalibrierpräparaten, mit Massen im Bereich von 100 bis 1000 mg, wird eine Kalibrierkurve gemäß Abb. 1 erstellt. Die Kaliumchlorid-Kalibrierpräparate sind in Stahlschälchen mit Hilfe einer Ethanol/Silikon-Mischung fixiert.

Jedes einzelne Kaliumchlorid-Kalibrierpräparat wird fünfmal 6000 s gemessen. Der Nulleffekt mit leerem Schälchen wird vor und nach jeder Messreihe je einmal 6000 s gemessen.

Für jedes Kaliumchlorid-Kalibrierpräparat i wird der Kalibrierfaktor φ_{Ai} nach Gleichung (1) berechnet.

$$\varphi_{Ai} = \frac{A_i}{R_n} \quad (1)$$

mit

φ_{Ai} Kalibrierfaktor in $\text{Bq} \cdot \text{s}$
 A_i Gesamt-β-Aktivität des Kaliumchlorid-Kalibrierpräparats i in Bq
 R_n Mittelwert der Nettozählraten in s^{-1}

Der Kalibrierfaktor als Funktion der Masse der Kaliumchlorid-Einwaage wird durch lineare Regression ermittelt (Abb. 1).

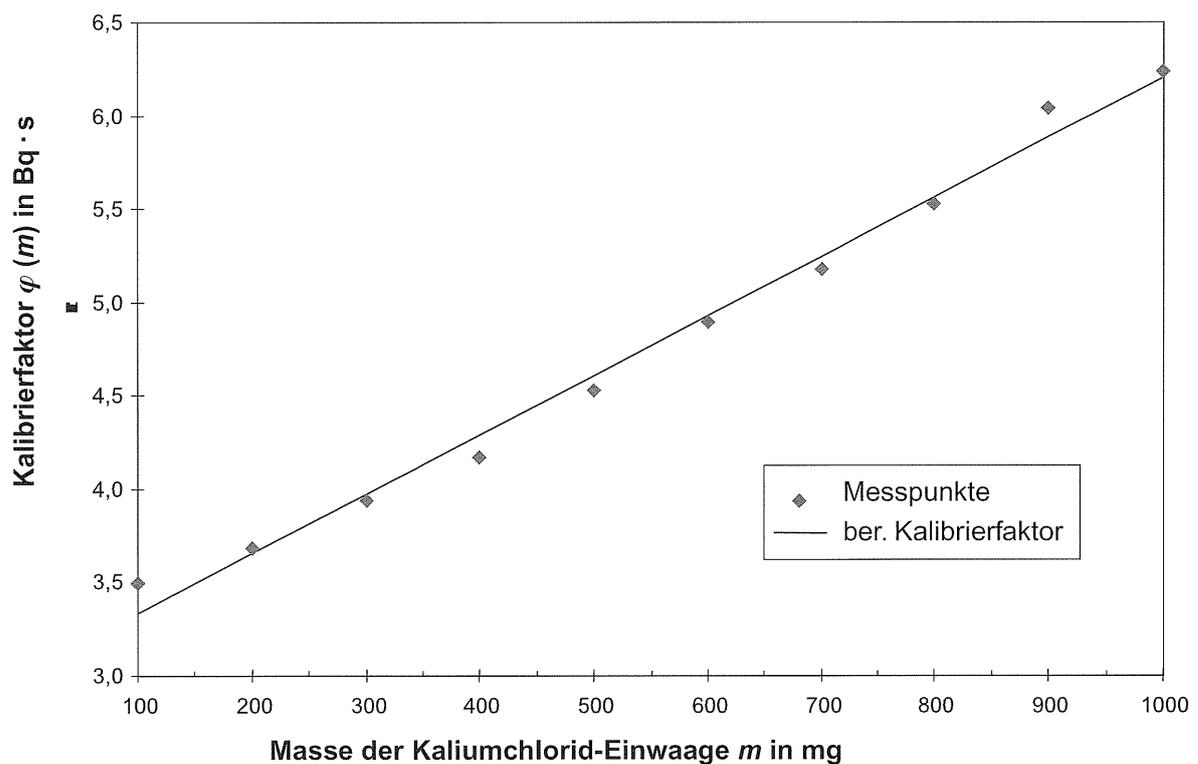


Abb. 1: Kalibrierfaktor $\varphi_A(m)$ als Funktion der Masse m der Kaliumchlorid-Einwaage

5 Berechnung der Analyseergebnisse

Die Gesamt-β-Aktivitätskonzentration $c_{G\beta}$ der Probe wird nach Gleichung (2) berechnet:

$$c = \frac{\varphi_A(m) \cdot (R_b - R_0)}{V} \quad (2)$$

Dabei bedeuten:

c	Gesamt-β-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$
R_b	Bruttozählrate der Probe in s^{-1}
R_0	Nulleffektzählrate in s^{-1}
$\varphi_A(m)$	Kalibrierfaktor bezogen auf die Eindampfmasse der Probe in $\text{Bq} \cdot \text{s}$
V	Probenvolumen in l bei Nassdeposition oder Spülwasservolumen in l bei Trockendeposition

Die flächenbezogene Gesamt-β-Aktivität a_F wird nach Gleichung (3) berechnet:

$$a_F = c \cdot V_F \quad (3)$$

mit

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

Liegt nur Trockendeposition vor, so ist in den Gleichungen (3) und (8) für V_F der Quotient aus dem Spülwasservolumen (l) und der Auffangfläche (m^2) der Probenentnahmeverrichtung einzusetzen.

Für die Standardabweichung $s(c)$ der Gesamt-β-Aktivitätskonzentration gilt gemäß Gleichung (4):

$$s(c) = \frac{\varphi_A(m)}{V} \cdot \sqrt{\frac{R_b}{t_m} + \frac{R_0}{t_0}} \quad (4)$$

mit

t_m Messdauer der Probe in s
 t_0 Messdauer für den Nulleffekt in s

Daraus ergibt sich gemäß Gleichung (5) für die Standardabweichung der flächenbezogenen Gesamt-β-Aktivität:

$$s(a) = s(c) \cdot V_F \quad (5)$$

5.1 Rechenbeispiele

a) Nassdeposition

Folgende Werte gelten für eine Tagesprobe:

R_0	= 0,0042 s^{-1}
R_b	= 0,0108 s^{-1}
t_0	= 12000 s
t_m	= 6000 s
V	= 0,4 l
V_F	= 0,62 $\text{l} \cdot \text{m}^{-2}$
$\varphi_A(m)$	= 3,68 $\text{Bq} \cdot \text{s}$, entsprechend einer Probenmasse von 200 mg

Für die Gesamt-β-Aktivitätskonzentration c der Probe ergibt sich nach Gleichung (2):

$$c = \frac{3,68 \cdot (0,0108 - 0,0042)}{0,4} = 0,061 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Die flächenbezogene Aktivität erhält man nach Gleichung (3):

$$a_F = 0,061 \cdot 0,62 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} = 0,038 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Standardabweichung $s(c)$ der Gesamt-β-Aktivitätskonzentration ergibt sich nach Gleichung (4):

$$s(c) = \frac{3,68}{0,4} \cdot \sqrt{\frac{0,0108}{6000} + \frac{0,0042}{12000}} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} = 1,35 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Die Standardabweichung $s(a_F)$ der flächenbezogenen Aktivität ergibt sich nach Gleichung (5):

$$s(a_F) = 1,35 \cdot 10^{-2} \cdot 0,62 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} = 8,37 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Der Wert der Gesamt-β-Aktivitätskonzentration c beträgt $(6,0 \pm 1,4) \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

Für die flächenbezogene Gesamt-β-Aktivität a_F ergibt sich ein Wert von $(3,7 \pm 0,8) \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$.

b) Trockendeposition

Folgende Werte gelten für eine Tagesprobe:

$$\begin{aligned} R_0 &= 0,005 \text{ s}^{-1} \\ R_b &= 0,028 \text{ s}^{-1} \\ t_0 &= 6000 \text{ s} \\ t_m &= 6000 \text{ s} \\ \varphi_A(m) &= 3,33 \text{ Bq} \cdot \text{s} \text{ entsprechend einer Probenmasse von } 100 \text{ mg} \\ V &= 11 \text{ (Spülwasser)} \end{aligned}$$

Für die Gesamt-β-Aktivitätskonzentration c der Probe erhält man nach Gleichung (2) den Wert:

$$c = \frac{3,33 \cdot (0,028 - 0,005)}{0,4} = 0,0766 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Da nur Trockendeposition vorliegt, wird für V_F der Quotient aus dem Spülwasservolumen ($V = 1 \text{ l}$) und der Auffangfläche von $0,64 \text{ m}^2$ in Gleichung (3) verwendet.

Der Wert der flächenbezogenen Gesamt-β-Aktivität (Deposition) wird nach Gleichung (3) berechnet:

$$a_F = \frac{1}{0,64} \cdot 0,0766 = 0,12 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Standardabweichung $s(c)$ der Gesamt-β-Aktivitätskonzentration ergibt sich nach Gleichung (4):

$$s(c) = \frac{3,33}{1} \cdot \sqrt{\frac{0,028}{6000} + \frac{0,005}{6000}} = 7,81 \cdot 10^{-3} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Die Standardabweichung für die Gesamt-β-Aktivität der Trockendeposition $s(a_F)$ beträgt damit:

$$s(a_F) = \frac{7,81 \cdot 10^{-3}}{0,64} = 1,22 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Gesamt-β-Aktivität der Trockendeposition $a_{FG\beta}$ beträgt $(0,12 \pm 0,01) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$.

5.2 Fehlerbetrachtung

Hauptbeiträge zur Gesamtunsicherheit liefern die Unsicherheiten bei der Probenentnahme, der Aufarbeitung der Probe und der Bestimmung der Niederschlagsmenge. Die relative Unsicherheit bei letzterem beträgt 10 % bis 30 %. Liegt der Messwert in der Größenordnung des Nulleffekts, können auch die zählstatistischen Unsicherheiten einen nennenswerten Beitrag zur Gesamtunsicherheit leisten.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Für die Nachweisgrenze g der gemessenen Gesamt-β-Aktivitätskonzentration gilt für hinreichend große Impulsanzahlen des Nulleffektes die Gleichung (6):

$$g = \frac{\varphi_A(m)}{V} \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right)} \quad (6)$$

Hierbei bedeuten:

- g Nachweisgrenze der Gesamt-β-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$
- $\varphi_A(m)$ Kalibrierfaktor in $\text{Bq} \cdot \text{s}$
- $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile der Normalverteilung
- R_0 Nulleffektzählrate in s^{-1}
- V Probenvolumen in l

Die Nachweisgrenze g_F für die flächenbezogene Gesamt-β-Aktivität wird nach Gleichung (7) berechnet.

$$g_F = g \cdot V_F \quad (7)$$

Mit den Quantilen $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$ sowie $t_m = t_0$ ergeben sich für die unter 5.1 aufgeführten Beispielrechnungen folgende Nachweisgrenzen:

a) Nassdeposition

$$g = \frac{3,68}{0,4} \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{0,0042 \cdot \left(\frac{1}{12000} + \frac{1}{12000} \right)} \quad (6)$$

Die Nachweisgrenze g für die flächenbezogene Gesamt- β -Aktivitätskonzentration beträgt $0,044 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$.

$$g_F = 0,044 \cdot 0,62 = 0,027 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$$

Die Nachweisgrenze g_F für die flächenbezogene Gesamt- β -Aktivität beträgt $0,027 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$.

b) Trockendeposition

$$g_F = \frac{3,33 \cdot 1}{0,64} \cdot (3 + 1,645) \cdot \sqrt{0,005 \cdot \left(\frac{1}{6000} + \frac{1}{6000} \right)} \quad (6)$$

Die Nachweisgrenze g_F der flächenbezogenen Gesamt- β -Aktivität beträgt $0,031 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2}$.

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte**7.1 Chemikalien**

- Kaliumchlorid (KCl) zur Herstellung der Kalibrierpräparate
- Zählgas: Helium/Isobutan (99,05 %/0,95 %)
- Deionisiertes Wasser
- Ethanol
- Sprühmittel zur Erzeugung eines dünnen Siliconfilms

7.2 Geräte

- Niederschlagsauffangwannen mit wärmeisoliertem Unterbau und Heizstrahler
- Niederschlagsauffangbehälter aus Kunststoff
- Edelstahltopf oder Porzellanschale mit maximal 5 l Inhalt
- Porzellanschälchen (z. B.: 100 ml, 50 ml)
- Heizplatte
- Sandbad
- Infrarotstrahler, 100 W
- Gummiwischer (Ionenbesen)
- Teigschaber
- Stahlschälchen für eingedampfte Probe mit einem Durchmesser von 30 mm
- Betamessplatz mit Antikoinzidenzschtung, Geiger-Müller-Durchflusszählrohr
- 1-Liter-Spritzflasche

Literatur

- (1) Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (Hrsg.): Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS), Bundesanzeiger 47, Nummer 200 a vom 24. Oktober 1995