

Schnellmethode zur Bestimmung der nuklidspezifischen Anteile einer Bodenkontamination (In-situ-Gammaspektrometrie)

B-IS-SPEKT-BODEN-01

Bearbeiter:

H. Keller
H. Sartorius
S. Weimer
W. Weiss
M. Zähringer

Leitstelle für die Überwachung der
atmosphärischen Radioaktivität

2 Schnellmethode zur Bestimmung der nuklidspezifischen Anteile einer Bodenkontamination (In-situ-Gammaspektrometrie)

1 Anwendbarkeit

Die In-situ-Gammaspektrometrie stellt die Schnellmeßmethode der Wahl im Intensivbetrieb von IMIS zur Ermittlung des Radionuklidgehalts auf und im Boden sowie der nuklidspezifischen Einzelbeiträge zur Ortsdosisleistung dar.

Gegenüber der klassischen Methode zur Bestimmung des Radionuklidgehalts auf und im Boden, der gammaspektrometrischen Analyse von Bodenproben im Labor (gemäß Anleitung F- γ -SPEKT-BODEN-01 der Meßanleitungen), besitzt sie eine Reihe von Vor- und Nachteilen.

Die Vorteile des Verfahrens liegen darin, daß

- auf die vergleichsweise zeitaufwendigen Arbeitsschritte der Probenentnahme und -aufbereitung, des Probenverkehrs sowie der Gammaanalyse im Labor verzichtet werden kann,
- durch Mittelung der Aktivitätskonzentration über vergleichsweise große Bodenflächen eine bessere Repräsentativität erreicht wird als dies mit *einer* Bodenprobe möglich wäre,
- durch Mittelung der Aktivitätskonzentration über vergleichsweise große Bodenoberflächen außerdem eine kurze Meßzeit erreicht wird,
- die Meßergebnisse unmittelbar nach der Messung vor Ort zur Verfügung stehen.

Diese Vorteile der schnellen Verfügbarkeit der Meßergebnisse müssen grundsätzlich mit dem Nachteil einer gewissen Einbuße an Genauigkeit aufgrund möglicher systematischer Fehler erkauft werden:

- Die Parameter des Rechenverfahrens, die zur Umrechnung der Meßdaten in die flächenbezogene Aktivität des Bodens benötigt werden, sind stets nur mit gewissen Unsicherheiten bekannt bzw. bestimmbar. Zwar lassen sich diese Parameter durch Vorabfestlegung und Parametrisierung fester Meßstandorte ermitteln bzw. ad hoc aufgrund der Kenntnis insbesondere der meteorologischen Bedingungen vor der Messung (nasse bzw. trockene Deposition) abschätzen. Die Möglichkeit der Vorabfestlegung der Parameter fester Meßstandorte sollte wann immer möglich genutzt werden. Bei mangelnder Kenntnis der erforderlichen Parameter kann der resultierende Fehler einen Faktor 2 betragen.
- Eine quantitative Auswertung der Meßdaten setzt voraus, daß die Aktivität des Bodens im Meßbereich näherungsweise räumlich konstant ist und die auszumessende Fläche (ca. 30 m Radius um den Detektor) ohne höheren Bewuchs und frei von Hindernissen ist.
- Die aus der Vorbelastung der Böden mit langlebigen Cäsiumnukliden infolge der atmosphärischen Kernwaffentests und des Unfalls in Tschernobyl resultierende nuklidspezifische γ -Flußdichte muß bekannt sein und bei der Auswertung berücksichtigt werden. Am einfachsten geschieht dies durch ein vorab aufgenommenes, aktuelles «Untergrundspektrum», welches mit den gleichen Parameterwerten wie das aktuelle Spektrum ausgewertet wird.

Die eigentliche Meßgröße bei der In-situ-Gammaspektrometrie ist der ungestreute Gammafluß am Ort des Detektors. Die daraus berechnete flächenbezogene Aktivität des Bodens variiert stark mit der angenommenen Bodenabsorption. Umgekehrt beeinflusst die Bodenabsorption stark die daraus resultierende Dosisleistung. Beide Effekte heben sich bis auf den Beitrag der Streustrahlung (Aufbaueffekt) auf.

Da die Vorbelastung der Böden eine in der Regel nicht bekannte Tiefenverteilung besitzt, sind die Ergebnisse dieses so ausgewerteten «Untergrundspektrums» nicht geeignet, die tatsächlich vorliegende flächenbezogene Aktivität absolut anzugeben. Um eine Überinterpretation dieser Daten zu verhindern, kann die flächenbezogene Aktivität anhand fester vorgegebener Umrechnungsfaktoren in nuklidspezifische Dosisleistung umgerechnet werden. Dabei ist darauf zu achten, daß bei der Auswertung *gleiche* Tiefenverteilung angenommen wird wie bei der Auswertung des Spektrums. Die *so* ermittelte nuklidspezifische Dosisleistung ist vergleichsweise wenig sensitiv gegenüber Fehlern in der angenommenen Tiefenverteilung.

Trotz dieser Nachteile stellt die In-situ-Gammaspektrometrie in allen Fällen, in denen die schnelle Verfügbarkeit von Meßdaten einen höheren Wert besitzt als eine hohe Genauigkeit, die Schnellmeßmethode der Wahl dar.

Folgende Anwendungsbereiche sind möglich:

- Schnelle Bestimmung der Kontamination von Boden inklusive Bewuchs nach lokaler Freisetzung von gammaaktiven Radionukliden in die Umwelt,
- Übersichtsmessung bei großräumiger Kontamination von Boden inklusive Bewuchs,
- Ermittlung der Einzelbeiträge der auf und im Boden vorhandenen Radionuklide zur Gammaortsdosisleistung,
- Überwachung von Deponien und anderen Flächen wie Parkplätzen, Rasenspielflächen etc.

Nicht mehr möglich ist die quantitative Auswertung von Bodenmessungen bei gleichzeitiger Anwesenheit von Luftaktivität, wenn der Beitrag der Luftaktivität zur Gammaflußdichte am Ort des Detektors unbekannt ist. Im Einzelfall sollte daher grundsätzlich mit In-situ-Messungen so lange gewartet werden, bis die Luftaktivität auf ein unbedeutendes Maß abgenommen hat und keine nennenswerte Deposition mehr erfolgt. Messungen an Stationen mit Luftmeßgeräten (z. B. DWD-Stationen) liefern dagegen in solchen Fällen die für IMIS notwendigen Daten. Auf keinen Fall darf bei Niederschlag gemessen werden.

2 Probeentnahme

entfällt

3 Analytik

entfällt

4 Messung der Aktivität

Für die hier ins Auge gefaßten Anwendungsbereiche der In-situ-Gammaspektrometrie ist der Einsatz von Halbleiterdetektoren (Reinstgermanium) mit hohem Energieauflösungsvermögen erforderlich. Für den Fall hoher Bodenkontamination sind bevorzugt kleinvolumige Detektoren einzusetzen.

Zur Messung wird der Detektor im auszumessenden Gelände so aufgestellt, daß sich der Kristall in einer Meßhöhe von 1 m über dem Boden befindet (vgl. Abb. 1). Im Rahmen der vorliegenden Meßanleitung wird angenommen, daß der Detektor nicht abgeschirmt ist, so daß als «Meßvolumen» der Halbraum «Boden» unterhalb und der Halbraum «Luft» oberhalb des Detektors zur Verfügung stehen.

Gemessen an den sonstigen Unsicherheiten bei der Umrechnung der Meßergebnisse in Werte der flächenbezogenen Aktivität des Bodens sind in diesem Fall die Unsicherheiten, die sich aus der Positionierung des Detektors ergeben können, vergleichsweise gering. Dennoch sollte die Meßhöhe von 1 m auf mindestens ± 10 cm eingehalten werden.

Eine Kontamination von Detektor und Stativ ist zu vermeiden. Für den Fall, daß während einer Messung die Luft noch kontaminiert ist, muß der Detektor durch eine Plastikhaube o. ä. ausreichend geschützt werden. Mit Kontrollmessungen im nicht kontaminierten Labor muß ggf. eine mögliche Kontamination quantifiziert oder ausgeschlossen werden.

Um die bei der Umrechnung der Meßdaten in die flächenbezogene Aktivität des Bodens möglichen Unsicherheiten und Fehlerquellen gering zu halten, muß als Meßstandort eine hinreichend große, unbearbeitete, ebene Fläche wie z. B. eine Wiese, eine Weide oder eine Rasenfläche gewählt werden. Der Bewuchs am Meßstandort sollte möglichst niedrig sein; Hindernisse z. B. infolge von Bebauung sowie Inhomogenitäten des Untergrunds z. B. durch asphaltierte Wege o. ä. müssen vermieden werden.

Die «Sichtweite» eines In-situ-Gammaspektrometers bestimmt die für die praktische Durchführung von In-situ-Messungen notwendige Größe des Meßstandorts. Sie hängt u. a. ab von der Meßhöhe, von der Energie der ungestreuten Gammaquanten und von der Vertikalverteilung der Radionuklide im Boden. Als Faustregel für eine frische Kontamination kann man eine «Sichtweite» von etwa 30 m Radius annehmen. Nähere Angaben sind dem Abschnitt 5.2 zu entnehmen.

Aufgrund von «Sichtweiten» dieser Größenordnung wird von der In-situ-Gammaspektrometrie die Kontamination auf Flächen von einigen tausend Quadratmetern erfaßt. Dies führt dazu, daß in relativ kurzen Meßzeiten statistische Genauigkeiten erreicht werden können, die vergleichbar oder klein gegenüber den sonstigen Unsicherheiten des

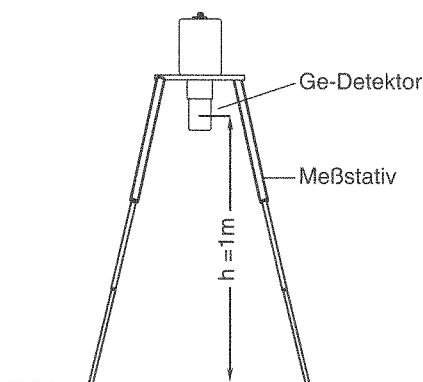


Abb. 1: In situ Gamma-Spektrometer in Meßposition (8)

Verfahrens (vgl. 5.5) sind. Bei Kontaminationen von einigen 10 Kilobecquerel pro Quadratmeter eines typischen Radionuklidgemisches liegen die entsprechenden Meßzeiten unterhalb von 30 Minuten.

Um diese kurzen Meßzeiten im Sinne einer Schnellmethode optimal nutzen zu können, muß sicher gestellt sein, daß die anderen zur Durchführung der Messung notwendigen Arbeitsschritte wie der Auf- und Abbau des Spektrometers, die Auswertung der Meßergebnisse und die Übermittlung der ausgewerteten Daten ebenfalls schnell erfolgen. Dies setzt u. a. ein geeignetes Fahrzeug, eine gute Handhabbarkeit der notwendigen Geräte, eine schnelle und zuverlässige Auswertung und regelmäßiges Üben aller Vorgänge voraus.

Die maximale flächenbezogene Aktivität des Bodens, die von einem In-situ-Spektrometer in der Meßgeometrie gem. Abb. 1 gemessen werden kann, ist begrenzt durch die Zahl der Impulse pro Sekunde, die von der Auswerteelektronik, also Vorverstärker, Hauptverstärker, ADC und Vielkanalanalysator verarbeitet werden kann. Bestimmend ist dabei nicht die Aktivität der einzelnen Nuklide sondern die Summe der Einzelaktivitäten. Es ist dabei zu beachten, daß die Zahl der von der Auswerteelektronik pro Sekunde zu verarbeitenden Impulse nicht allein aus der Summe der nuklidspezifischen Peakzählraten R_r (vgl. Abschnitt 5), sondern auch durch den Untergrund des Spektrums (Comptonuntergrund des Detektors, Aufbaueffekt) gegeben ist. Dieser Beitrag erhöht sich auch mit zunehmender flächenbezogener Aktivität und ist von mindestens der gleichen Größe.

Bei handelsüblicher Elektronik ist die maximale Zählrate i. a. auf 10000 bis 50000 Impulse pro Sekunde beschränkt. Bezogen auf I-131 entspricht dies einer Obergrenze von etwa 10 bis 50 MBq · m⁻². Die daraus resultierende Dosisleistung beträgt 12 bis 60 µGy · h⁻¹.

5 Berechnung der Analysenergebnisse

Die Auswertung eines In-situ-Spektrums und die Ermittlung der flächenbezogenen Aktivität erfolgt in der Regel mit Hilfe handelsüblicher Computerprogramme, welche weitgehend automatisch aus einem Spektrum die nuklidspezifischen flächenbezogenen Aktivitäten (in Bq · m⁻²) errechnen. Allerdings liegt es in der Verantwortung des Benutzers, zuvor die richtigen, energieabhängigen Kalibrierfaktoren zu implementieren. Die vom BMU den Ländern für die Zwecke des StrVG mit den In-situ-Meßfahrzeugen zur Verfügung gestellte Auswertesoftware beinhaltet eine weitgehende Unterstützung bei der unten beschriebenen Berechnung der Kalibrierfaktoren.

Die flächenbezogene Aktivität a_{Fr} des Bodens (in Bq · m⁻²) wird aus der Nettozählrate R_r der Gammalinie eines interessierenden Nuklides r folgendermaßen berechnet:

$$a_{Fr} = \varphi \cdot R_r \quad (1)$$

Da es praktisch nicht möglich ist, den Kalibrierfaktor φ durch eine Messung mit einem definierten, großflächig angebrachten Prüfstrahler unmittelbar zu bestimmen, muß man ihn mit Hilfe mathematischer Modellrechnungen näherungsweise bestimmen. Der Reziprokwert des Kalibrierfaktors läßt sich als Produkt aus drei Faktoren darstellen, wobei jeder einzelne Faktor unterschiedliche Einflußgrößen erfaßt:

$$\frac{1}{\varphi} = \frac{R_r}{\Phi} \frac{\Phi}{L_\gamma} p_\gamma = Q_D G_F p_\gamma \quad (2)$$

Hierin bedeuten:

- $Q_D = \frac{R_r}{\Phi}$: Detektorresponsefunktion in m^2 , d.h. der Quotient aus der Zählrate im Photopeak und der am Meßort vorhandenen Zahl der Gamma-Quanten pro Sekunde und Quadratmeter
- R_r : Nettopeakzählrate in s^{-1}
- Φ : Gammaflußdichte in $\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$, d.h. die Zahl der ungestreuten Gamma-Quanten am Meßort (Detektormitte), die aus beliebiger Richtung pro Fläche eintreffen.
- $G_F = \frac{\Phi}{L_\gamma}$: Geometriefunktion, d.h. die Gammaflußdichte, bezogen auf die im Boden pro Quadratmeter und Sekunde emittierte Zahl von Gamma-Quanten
- L_γ : spezifische Emissionsdichte in $\text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$, d.h. die Zahl der Quanten einer Gamma-Linie des Radionuklids r pro Sekunde, die auf einem Quadratmeter Boden durch radioaktiven Zerfall erzeugt werden. Sie ist das Produkt aus flächenbezogener Aktivität a_{Fr} und der absoluten Emissionswahrscheinlichkeit p_γ der γ -Linie.
- p_γ : absolute Emissionswahrscheinlichkeit einer Gamma-Linie des Radionuklids r (dimensionslose Zahl)

Die Größen Q_D und G_F sowie deren Bestimmung werden in den folgenden beiden Abschnitten erklärt.

5.1 Detektorresponsefunktion

Die Detektorresponsefunktion Q_D ist eine detektorspezifische, von der Energie abhängige Größe. Um sie zu bestimmen, wird eine Punktquelle bekannter Aktivität, i. a. ein geeichtes Kalibrierpräparat, in einem Abstand $d = 1 \text{ m}$ vom Detektor angebracht. Es wird empfohlen, Punktquellen von Eu-152 und Ba-133 für die Kalibrierung zu verwenden. Da bei der In-situ-Messung in Meßgeometrie gemäß Abb. 1 der Hauptanteil der Gammastrahlung nahezu horizontal einfällt, ist auch bei der Bestimmung der Detektorresponsefunktion eine horizontale Einstrahlungsrichtung zu wählen (vgl. Abb. 2). Als Bezugspunkt muß die Mitte des Detektorkristalls gewählt werden. Die horizontale Abstandsmessung zwischen der Mittelachse des Kristalls und der Kalibrierquelle ist auf mindestens 5 mm genau vorzunehmen. Der dadurch bedingte Fehler bei der Bestimmung der Detektorresponsefunktion liegt dann unter 1 %. Dagegen kann ohne große Fehler auch ein Bezugspunkt mit einer geringen vertikalen Abweichung vom Kristallmittelpunkt ($l < 5 \text{ cm}$) angenommen werden.

Grundsätzlich sollte für die In-situ-Messung ein nahezu richtungsunabhängiger Detektor verwendet werden. Für Detektoren mit stark winkelabhängigem Ansprechvermögen ($> 10\%$ Anisotropie) müssen entsprechende Korrekturen vorgenommen werden. [Vgl. dazu auch (2) bis (4).] Bei der erstmaligen Kalibrierung des Detektors ist daher die Isotropie des Kristalls zu überprüfen.

Je nach Stärke des Präparates kann die natürliche Untergrundstrahlung durch überlagernde Linien zu ungenauen Ergebnissen führen. Daher empfiehlt sich beim Kalibrieren die Abschirmung des Detektors mit mindestens 5 cm Blei; dabei muß jedoch sichergestellt sein, daß die direkte Strahlung aus dem Standardpräparat ungehindert auf den Detektor auftrifft (vgl. Abb. 2).

Die Meßzeit beim Kalibrieren sollte so gewählt sein, daß die Nettopeakfläche aller zur Auswertung herangezogenen Gammalinien des Kalibrierpräparates jeweils mehr als

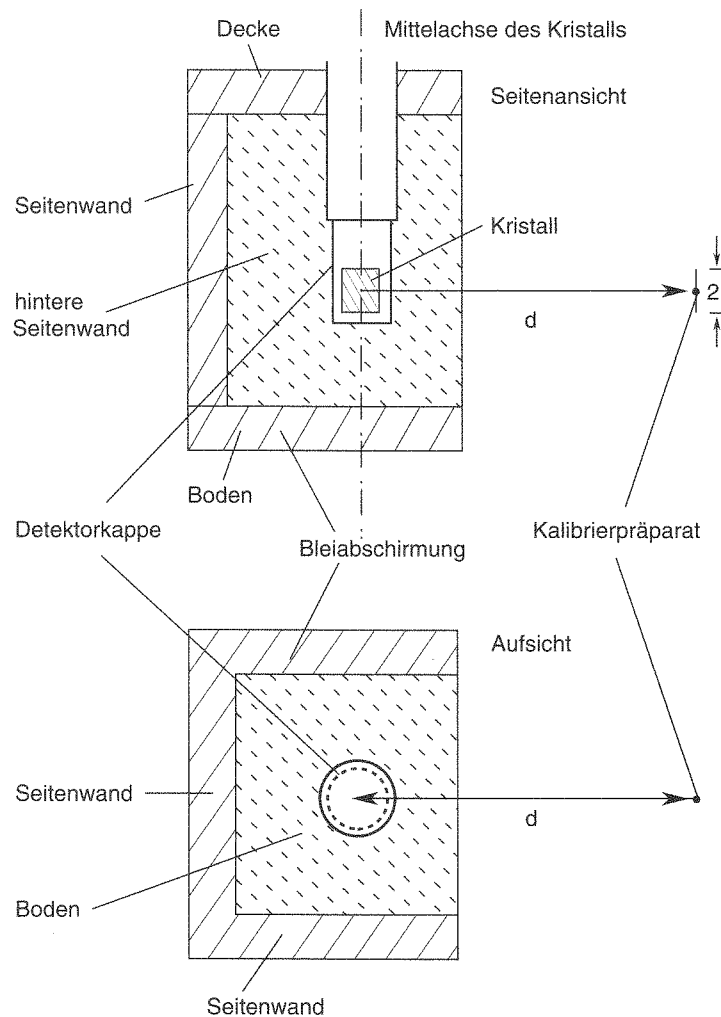


Abb. 2: Anordnung zur Kalibrierung des auf 5 Seiten mit Blei abgeschirmten Detektors. Der Abstand $d = 1\text{ m}$ ist auf mindestens $\pm 0,5\text{ cm}$ genau einzuhalten; die Abweichung 1 in vertikaler Richtung vom Kristallzentrum kann dagegen bis zu 5 cm betragen

10000 Impulse beträgt. Um z.B. bei einem Europium-152-Präparat der Aktivität 370 kBq die 411 keV Linie ($p_\gamma = 2,3\%$) noch auswerten zu können, muß man bei einem 10%-Detektor mindestens 12 Stunden lang messen. Erstrebenswert ist eine möglichst große Zahl von Gammalinien im gesamten Energiebereich zwischen 80 keV und 2000 keV.

Die Flußdichte der einzelnen Gammalinien des Präparates sind gegeben durch:

$$\Phi = \frac{A_r p_\gamma}{4\pi d^2} \quad (3)$$

wobei A_r die Aktivität des Präparates (in Bq) und $d = 1\text{ m}$ der Abstand des Präparates vom Detektorzentrum ist. Die Detektorresponsefunktion für die jeweilige Energie ergibt sich damit aus

$$Q_D = \frac{R_r 4\pi d^2}{A_r p_r} \quad (4)$$

5.2 Die Geometriefunktion G_F

Die Geometriefunktion ist eine von der Meßanordnung und der Gammaenergie abhängige, dimensionslose Größe. In ihre Berechnung gehen folgende Parameter ein:

- Die Beschaffenheit des Bodens, insbesondere die Bodendichte.
- Die Tiefenverteilung der Radionuklide im Boden.
- Die Oberflächenrauigkeit des Bodens.

Für die Bestimmung der Geometriefunktion mit Hilfe von Rechenmodellen wird angenommen, daß die flächenbezogene Aktivität im Bereich der «Sichtweite» des Spektrometers räumlich konstant ist. [Vgl. (2) bis (4).]

Häufig findet sich in der Literatur auch der Begriff des Geometriefaktors. Er bezeichnet das Produkt von Geometriefunktion G_F und der absoluten Emissionswahrscheinlichkeit p_γ und muß daher für jedes Nuklid einzeln berechnet werden.

Die wichtigsten Parameter der Bodenbeschaffenheit sind die Bodendichte und die Bodenfeuchte. Die Bodendichte kann für tiefere Schichten mit ca. $1,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ angenommen werden, für die hier relevanten obersten Zentimeter kann jedoch – je nach Durchwurzelung, Bodenbearbeitung etc. – die Dichte auf bis zu $0,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ und weniger abnehmen. Für die Auswertung wird daher angenommen, daß die Bodendichte einen Wert von $1,0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, die Bodenfeuchte einen Wert von 10 % besitzt. Abweichungen von diesen der Auswertung zugrunde gelegten Werten können zu systematischen Fehlern der berechneten Bodenkontamination führen. Im Fall der Bodendichte können Abweichungen von max. $\pm 0,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ auftreten, die bei der Berechnung von a_{Fr} zu Abweichungen von ca. $\pm 20 \%$ führen. Im Falle der Bodenfeuchte liegen die entsprechenden Abweichungen unterhalb eines Prozents.

Der Einfluß der unterschiedlichen Tiefenverteilungen einer Kontamination im Boden auf die Geometriefunktion wird durch die Relaxationslänge $1/\alpha$ beschrieben (1). Dabei wird angenommen, daß die Aktivität mit der Tiefe exponentiell abnimmt. Die Relaxationslänge $1/\alpha$ charakterisiert diese Abnahme: in der Tiefe $1/\alpha$ beträgt die Aktivität noch $1/e$ der Oberflächenaktivität.

Die Oberflächenrauigkeit des Bodens führt dazu, daß auch bei ausschließlicher Oberflächenkontamination eine Schwächung der auftretenden Strahlung erfolgt. In der Praxis läßt sich dieser Effekt durch eine zusätzliche fiktive Relaxationslänge beschreiben. Nach Modellrechnungen und experimentellen Daten (10, 11) ergibt sich für eine ebene Rasenfläche eine fiktive Relaxationslänge von 0,1 bis 0,3 cm.

Die Geometriefunktion wird für eine exponentielle Verteilung der Radionuklide im Boden folgendermaßen berechnet:

$$G_F = \frac{1}{2} \left[E_1(\mu_L h) - \exp\left(\frac{\alpha}{\mu_B} \mu_L h\right) E_1\left\{\left(1 + \frac{\alpha}{\mu_B}\right) \mu_L h\right\} \right] \quad (5)$$

Dabei bedeuten h die Höhe des Detektors, μ_B und μ_L die linearen Schwächungskoeffizienten für Boden und Luft und E_1 die Exponentialintegralfunktion erster Ordnung. Die genaue Ausführung der Berechnung kann der Literatur (12, 13) entnommen werden. Die Geometriefunktionen für die im Rahmen dieser Meßanleitung wichtigen Fälle können der Tabelle 1 oder der Abb. 3 entnommen werden. Man erkennt, daß die Geometriefunktion für eine feste Gammaenergie stark von der Relaxationslänge abhängt. Für den Fall einer frischen Oberflächenkontamination durch trockene Deposition ($1/\alpha = 0,3 \text{ cm}$) und den Fall der nassen Deposition ($1/\alpha = 1 \text{ cm}$) ergibt sich ein Unterschied in der Geometriefunktion von ca. 30 %. Zwischen der Situation beim frischen Fallout ($1/\alpha$ ca.

Tabelle 1: Geometriefunktion für verschiedene Relaxationslängen $1/\alpha$ und Energien (Bodendichte $\rho = 1,0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$)

Energie in keV	Geometriefunktion			
	$1/\alpha = 0 \text{ cm}$	$1/\alpha = 0,3 \text{ cm}$	$1/\alpha = 1 \text{ cm}$	$1/\alpha = 10 \text{ cm}$
100	1,72	1,20	0,83	0,21
200	1,82	1,31	0,94	0,27
300	1,89	1,38	1,00	0,30
400	1,95	1,44	1,05	0,33
500	1,99	1,48	1,10	0,35
600	2,03	1,52	1,13	0,37
700	2,06	1,54	1,16	0,39
800	2,09	1,58	1,19	0,41
900	2,12	1,61	1,22	0,43
1000	2,15	1,63	1,24	0,44
1100	2,17	1,65	1,26	0,46
1200	2,19	1,67	1,28	0,47
1300	2,21	1,70	1,30	0,48
1400	2,23	1,72	1,32	0,50
1500	2,25	1,73	1,34	0,51
1600	2,27	1,75	1,35	0,52
1700	2,28	1,76	1,37	0,53
1800	2,30	1,78	1,38	0,54
1900	2,31	1,79	1,40	0,55
2000	2,32	1,81	1,41	0,56

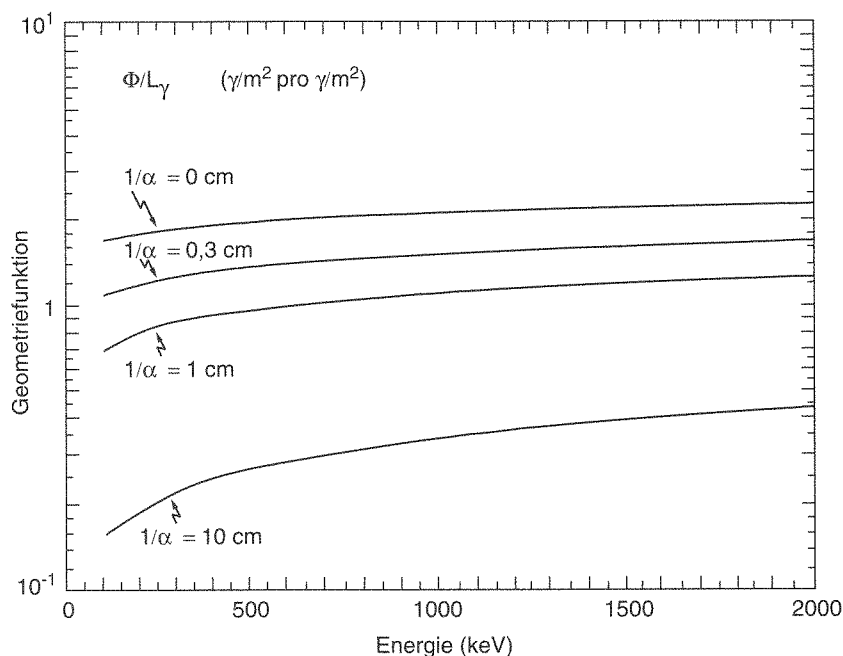


Abb. 3: Flußdichte der ungestreuten Gamma-Quanten im Energiebereich 100 keV bis 2000 keV bei Bodenkontamination unterschiedlicher Eindringtiefe ($1/\alpha = 0$ bis 10 cm). Zahlenangaben sind der Tab. 1 zu entnehmen

0,3 bis 1 cm) und einer tiefer im Boden sitzenden, älteren Kontamination ($1/\alpha = 10 \text{ cm}$) können sich Unterschiede bis zu einer Größenordnung ergeben. Dies zeigt die Wichtigkeit der Kenntnis der jeweils aktuellen Relaxationslänge für die Bestimmung der Geometriefunktion und damit die Umrechnung der Meßergebnisse.

Faustregel

In Fällen, in denen die tatsächliche Relaxationslänge und die Bodendichte unbekannt sind, wird in Situationen mit frischer Kontamination der Auswertung ein Wert von $1/\alpha = 1 \text{ cm}$ und $\rho = 1,0 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ zugrunde gelegt.

In Fällen, in denen mit Sicherheit ausschließlich trockene Deposition stattgefunden hat, ist eine Relaxationslänge von 0,3 cm zu verwenden.

Da diese Wahl der Parameter nicht unbedingt die tatsächlichen Verhältnisse beschreibt, sind die beiden Parameter Bodendichte und Relaxationslänge immer mit den nuklid-spezifischen Meßergebnissen anzugeben. Dies ermöglicht es in jedem Fall, die nuklid-spezifische Gammaflußdichte $a_{\text{Fr}} \cdot G_{\text{F}} \cdot p_{\gamma}$ sowie die nuklidspezifische Ortsdosisleistung relativ genau zu bestimmen. Für die in IMIS übertragenen Daten ist die Bodendichte auf $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ festgelegt und die Relaxationslänge ist nur zwischen den zwei Werten 0,3 cm und 1,0 cm wählbar.

Die Unterschiede der Geometriefunktionen für verschiedene Gammaenergien sind bei kleinen Eindringtiefen etwas geringer als bei großen Eindringtiefen, was auf die Wirkung der Absorption der Strahlung von tiefer im Boden enthaltenen Radionukliden zurückzuführen ist. Im Energiebereich 200 keV bis 2 MeV betragen sie für $1/\alpha = 0,3 \text{ cm}$ etwa 30 %, für $1/\alpha = 10 \text{ cm}$ einen Faktor 2. Unterhalb 200 keV gewinnt die Bodenabsorption zunehmend an Bedeutung, die Geometriefunktionen nehmen entsprechend schneller ab.

In Fällen wie z. B. auf Deponien, in denen die Tiefenverteilung i. a. unbekannt ist und sich möglicherweise auch nicht mit Hilfe einer Relaxationslänge beschreiben läßt, ist die quantitative Interpretation von Meßdaten der In-situ-Spektrometrie nicht möglich. Im Falle einer qualitativen Identifizierung künstlicher Radionuklide sind zur Quantifizierung des Meßergebnisses stets gezielte Zusatzuntersuchungen erforderlich (14).

Die «Sichtweite» der Detektor-Meßanordnung gem. Abb. 1 läßt sich rechnerisch bestimmen (2, 7). Sie hängt von der Relaxationslänge, der Energie des interessierenden Gammastrahlers und von der Meßhöhe ab. Man definiert sie über das Verhältnis der Flußdichten, die sich bei einer endlichen und bei einer unbegrenzten Ausdehnung einer Bodenkontamination am Meßort ergeben: Für eine Relaxationslänge von 1 cm kommen 90 % der registrierten Gammaquanten aus einer Entfernung bis zu 17 m ($E = 200 \text{ keV}$) bzw. 34 m ($E = 2000 \text{ keV}$). Bei größeren (kleineren) Eindringtiefen werden die entsprechenden «Sichtweiten» kleiner (größer).

5.3 Berechnung der energieabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeit

Im allgemeinen stimmen die Energien des Kalibrierpräparates nicht genau mit den Energien der interessierenden Radionuklide im Boden überein. Es ist daher notwendig, die Kalibrierdaten aus 5.1 und 5.2 zu interpolieren bzw. eine analytische Funktion an diese anzupassen, wie dies in der Gammaskpektrometrie für die Nachweiswahrscheinlichkeit üblich ist. Im Falle der In-situ-Spektrometrie ergibt sich die Nachweiswahrscheinlichkeit aus:

$$\varepsilon = Q_D \cdot G_F \quad (6)$$

Beispielhaft wurde in Abb. 4 die Nachweiswahrscheinlichkeit für einen 10 %-Detektor und eine Relaxationslänge von 1 cm dargestellt. Die einzelnen Datenpunkte entsprechen einer Kalibrierung mit einem Eu-152- und einem Ba-133-Präparat. Die Darstellung ist doppellogarithmisch. Die interpolierende Kurve besteht hier aus zwei Parabeln, eine von 80 bis 300 keV und eine zweite von 300 bis 2000 keV. Dieses Anpassungsverfahren entspricht der Auswertesoftware der vom BMU den Ländern für die Zwecke des StrVG

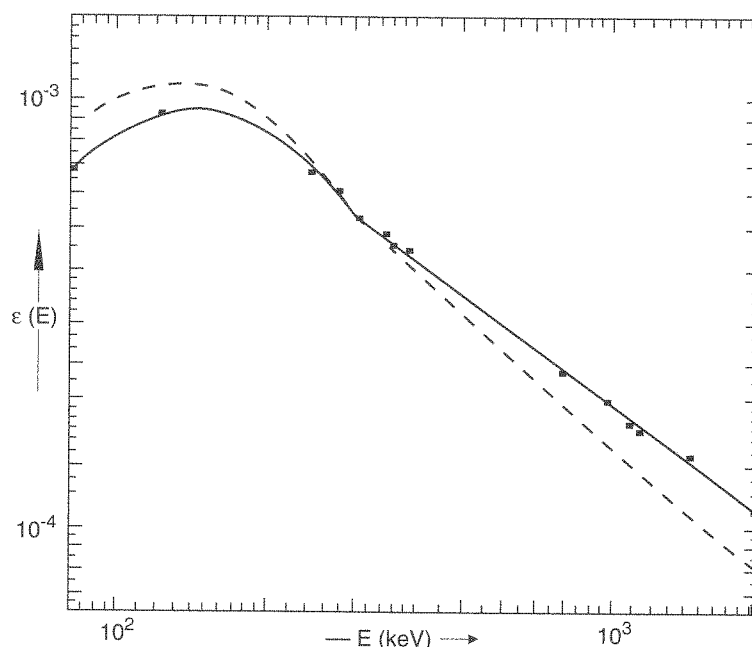


Abb. 4: Beispiel für die Nachweiswahrscheinlichkeit $\varepsilon(E)$ als Funktion der Energie (durchgezogene Linie) mit den entsprechenden Datenpunkten für $1/\alpha = 1$ cm. Sie ergibt sich aus der Detektorresponsefunktion (punktirierte Linie) und der Geometriefunktion aus Abb. 3

zur Verfügung gestellten In-situ-Spektrometer. Zur Veranschaulichung wurde in dieselbe Abbildung auch die Detektorresponsefunktion eingetragen. Sie unterscheidet sich um die Geometriefunktion von der Nachweiswahrscheinlichkeit und entspräche dem 4π -fachen der Nachweiswahrscheinlichkeit, würde man eine punktförmige Probe in 1 Meter Entfernung vom Detektor anbringen.

5.4 Rechenbeispiel

Annahmen: Es liegt eine Bodenkontamination mit I-131 und Cs-137 vor, die durch frischen Niederschlag verursacht wurde. Es wird mit einem 10%-Reinstgermanium-detektor in 1 Meter Höhe über einer Wiese gemessen. Als Relaxationslänge nimmt man 1 cm an. Die Meßzeit beträgt 30 Minuten.

	<i>Nuklid</i>	
	I-131 (364 keV)	Cs-137 (662 keV)
<i>Meßdaten</i>		
Nettopeakfläche	619	1397
Nettoimpulsrate in s^{-1}	0,344	0,776
<i>Zur Auswertung verwendete Daten</i>		
Detektorresponsefunktion (aus Abb. 4)	$4,45 \cdot 10^{-4}$	$2,27 \cdot 10^{-4}$
Geometriefunktion (aus Abb. 3 bzw. Tab. 1)	0,94	1,16
Nachweiswahrscheinlichkeit = Detektorresponsefunktion $\times$ Geometriefunktion	$4,18 \cdot 10^{-4}$	$2,63 \cdot 10^{-4}$
Emissionswahrscheinlichkeit p_γ	0,81	0,85
Kalibrierfaktor ϕ (aus Gl. 2)	2951	4468
<i>nach Gl. 1 berechnete flächenbezogene Aktivität</i>		
a_{Fr} in $Bq \cdot m^{-2}$	1015	3467

5.5 Fehlerbetrachtung

Die Genauigkeit der Untersuchungsergebnisse hängt in hohem Maße von der Kenntnis der Parameter der Modelle ab, die für die Umrechnung der Meßdaten in die flächenbezogene Aktivität des Bodens bzw. die nuklidspezifischen Beiträge zur Ortsdosisleistung verwandt werden (vgl. Tabelle 2). Die Bedeutung des mit wachsender Meßzeit abnehmenden statistischen Zählfehlers tritt i. a. dahinter zurück.

Auf der Basis der bisher vorliegenden Untersuchungsergebnisse, die u. a. auch nach dem Ereignis von Tschernobyl in großer Zahl gewonnen wurden (5, 8), kann man feststellen, daß bei Kenntnis der Vertikalverteilung der Radionuklide im Boden, die durch Laboranalysen von Bodenproben gewonnen werden muß (vgl. dazu Anleitung F- γ -SPEKT-BODEN der Meßanleitungen), zwischen den Ergebnissen der In-situ-Spektrometrie und denen der Laboranalyse Unterschiede von im Einzelfall bis zu 30 % auftreten können. Ein Vergleich der gemessenen Ortsdosisleistungen mit den aus den Meßergebnissen der In-situ-Spektrometrie errechneten Werten führt zu Unterschieden von typisch 10 %.

Die hier diskutierten Differenzen beziehen sich auf Messungen bei Kenntnis der Modellparameter und Einhaltung (Einhaltbarkeit) aller für die Durchführung der Messung notwendigen Randbedingungen [vgl. (6)]. In Fällen, in denen die Modellparameter nicht mit der möglichen Genauigkeit bekannt sind oder die Modellannahmen aufgrund z. B. logistischer Vorgaben nicht eingehalten werden (können), muß mit größeren Unsicherheiten gerechnet werden (vgl. dazu z. B. Abb. 3).

Es sei darauf hingewiesen, daß die hier angegebenen möglichen Unterschiede zwischen den beiden Meßmethoden nicht notwendigerweise als *Ungenauigkeit* der In-situ-Spektrometrie interpretiert werden dürfen. Vielmehr sind in diesen Unterschieden auch mögliche systematische Fehler der Laboranalysen enthalten, die z. B. durch Inhomogenitäten der flächenbezogenen Aktivität des Bodens in «Sichtweite» des In-situ-Spektrometers verursacht sein können [vgl. dazu (8)]. Solche Inhomogenitäten können durch eine einzige Vergleichsprobe nicht erfaßt werden. Es wird deshalb empfohlen, zur Bestimmung der Relaxationslänge einer Kontamination im Boden stets mehr als nur *eine* Bodenprobe aus dem Bereich der «Sichtweite» des In-situ-Spektrometers zu entnehmen. In wie weit die oben angegebenen Differenzen auf Ungenauigkeiten der In-situ-Spektrometrie zurückgeführt werden müssen, läßt sich auch in diesem Fall nur schwer beantworten.

Tabelle 2: Relative Fehler bei der Berechnung der flächenbezogenen Aktivität des Bodens bei Variation der Modellparameter um deren Bezugswerte:

Relaxationslänge = 1 cm

Bodendichte = $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$

Meßhöhe = 1 m

Parameter	angenommene Variationsbreite	rel. Fehler (%)	
		Cs-137 (662 keV)	Te-132 (228 keV)
Relaxationslänge	$\pm 1 \text{ cm}$	-20/ +80 %	-25/ +90 %
Bodendichte	$\pm 0,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$	-15/ +20 %	-15/ +25 %
Bodenfeuchte	$\pm 10 \%$	$< \pm 1 \%$	$< \pm 1 \%$
Meßhöhe	$\pm 10 \text{ cm}$	$< \pm 1 \%$	$\pm 1 \%$

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Die Nachweisgrenze der In-situ-Spektrometrie hängt von einer Reihe von Bestimmungsgrößen ab, nämlich

- den Detektoreigenschaften, insbesondere dem relativen Wirkungsgrad,
- der Meßzeit,
- der Eindringtiefe der Kontamination im Boden,
- der natürlichen Untergrundstrahlung des Bodens am Meßstandort.

Die Nachweisgrenze wird gemäß Gleichung 2.13 im Kapitel IV.5 der Meßanleitungen berechnet.

Die Angaben in Tabelle 3 beziehen sich auf einen 10 %-Detektor und eine Meßzeit von 30 Minuten. Die natürliche Untergrundstrahlung entspricht in diesem Beispiel einer Aktivität im Boden von ca. $700 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ K-40 sowie jeweils ca. $50 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ der Nuklide der Uran/Radium- und Thorium-Zefallsreihe. Sie gelten für Einzelnuklide, d. h. für den Fall, daß die Kontamination nur aus dem jeweils angegebenen Nuklid besteht. Im Falle einer Kontamination mit mehreren Nukliden wächst der Untergrund durch Überlagerung zahlreicher Compton-Kontinua und schwacher Linien stark an. Die Nachweis- und Erkennungsgrenzen von Tabelle 3 können dann nicht mehr erreicht werden.

Tabelle 3: Nachweisgrenzen für eine Bodenkontamination mit einer Relaxationslänge von 1 cm (30 Minuten Meßzeit, relative Detektor-Nachweiswahrscheinlichkeit: 10 % und $k_{1-\alpha} + k_{1-\beta} = 4,645$)

Nuklid	Energie (keV)	Nachweisgrenze für die flächenbezogene Aktivität des Bodens ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$)
Co-60	1332	170
Zr-95	757	230
Nb-95	766	160
Mo-99	739	1100
Tc-99m	141	220
Ru-103	497	160
Ru-106	622	1250
Ag-110m	658	140
Sb-125	428	420
Te-129m	696	4200
Te-129	460	1900
I-131	365	160
I-132	668	140
I-133	530	160
Te-132	228	200
Cs-134	605	140
Cs-136	341	280
Cs-137	662	160
Ba-140	537	620
La-140	1597	190
Ce-141	145	390
Ce-144	133	1900

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

entfällt

7.2 Geräte

- Reinstgermaniumdetektor (10 % relative Nachweiswahrscheinlichkeit) mit Vorverstärker und tragbarem Dewar (2 bis 5 l), spritzwassergeschützt
- Kabelsatz
- Stativ für Detektor
- Datenaufnahmeelektronik (Hauptverstärker, ADC, Speicher) mit Hochspannungsvorsorgung für Detektor
- Auswerterechner
- Punktstrahler für die Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit, ca. 400 kBq (z. B. Eu-152 und Ba-133)
- Punktstrahler für die Energiekalibrierung (Aktivität unterhalb der Freigrenze)
- Vorratsgefäß für Flüssigstickstoff

Literatur

- (1) Beck, H. L., DeCampo, J., Gogolak, C. V.: In situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma-Ray Spectrometry. HASL 258, Health and Safety Laboratory, U. S. Atomic Energy Commission, New York, September 1972
- (2) Winkelmann, I., Haimerl, W., Wutz, J.: Nuklidspezifische Messungen der Ortsdosisleistung in der Umgebung kerntechnischer Anlagen. ISH-Bericht 12, Neuherberg 1982
- (3) Gogolak, C. V.: Calibration of a Ge(Li) Spectrometer for In Situ Measurements. ISH-Bericht 6, Neuherberg 1981
- (4) Murith, Ch., Voelkle, H., Huber, O.: Radioactivity Measurements in the Vicinity of Swiss Nuclear Power Plants. Nucl. Instr. Meth., A 243, 549–560, 1986
- (5) Murith, Ch., Voelkle, H., Weimer, S.: Aspekte der in situ Gammaspektrometrie zur Überwachung der Umweltradioaktivität. Loseblattsammlung, Fachverband für Strahlenschutz, Arbeitskreis Umweltüberwachung, 1987
- (6) Der Bundesminister des Innern (Hrsg.): Allgemeine Berechnungsgrundlage für die Strahlenexposition bei radioaktiven Ableitungen mit der Abluft oder in Oberflächengewässer (Richtlinie zur StrlSchV). GMBI Nr. 21 vom 15. 08. 1979, S. 369
- (7) Zähringer, M., Stöhlker, U., Weiss, W.: Die nuklidspezifische Signifikanz und die «Frühwarneigenschaft» des Ortsdosisleistungsmeßnetzes des Warndienstes. BZS-IAR, Freiburg, 1988
- (8) Winkelmann, I., Haimerl, W., Klopfer, P., Weimer, S., Wolff, S.: Abschlußbericht über das Forschungsvorhaben St.Sch. 871 «Studien über Schnellmessungen bei höher kontaminierten Umweltmedien». ISH, ABE-275, Neuherberg, 1987
- (9) Beck, H. L.: Exposure Rate Conversion Factors for Radionuclides Deposited on the Ground. EML-378, DOE, N.Y., 1980
- (10) Winkelmann, I. et al.: Ergebnisse von Radioaktivitätsmessungen nach dem Reaktorunfall in Tschernobyl. ISH-Bericht 99, Neuherberg 1986
- (11) Helfer, I. K., Miller, K. M.: Calibration Factors for Ge Detectors Used for Field Spectrometry. Health Physics 55, 15–29, 1988
- (12) Haimerl, W., Wolff, S., Weimer, S.: Kalibrierung eines in situ Spektrometers. – Praktische Anleitung – ABE-237, Neuherberg, 1986
- (13) Jacob, P., Paretzke, H.: Gamma-Ray Exposure from Contaminated Soil. Nuclear Science and Engineering 93, 248–261, 1986

- (14) Weiss, W. et al.: Spezielle Anwendungen der Gammaspektrometrie – In-situ-Spektrometrie. 1. Fachliches Kolloquium zum Integrierten Meß- und Informationssystem (IMIS) zur Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt. 18.–20. 4. 1989, Neuherberg