

# Radiochemische Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden

Herbert Wershofen\*

## Notwendigkeit und Grundprinzipien

Im Gegensatz zu Gammastrahlung, die ein bekannt hohes Durchdringungsvermögen durch Materie hat und daher relativ leicht gemessen werden kann, bleibt die in einer Umweltprobe enthaltene Alphastrahlung oder Betastrahlung schon weitgehend in der Probe selbst stecken. Der Anteil, der die Probe verlässt, gelangt nicht direkt zu einem Detektor, sondern wird auf dem Weg dorthin vom Messgefäß, der Umgebungsluft und ggf. von Bauteilen des Messgerätes geschwächt. Zudem liegen die Energien der Alpha- und Betastrahlen in einem relativ engen Bereich, sodass sie sich im Spektrum überlagern. Dadurch wird die Zuordnung der Linien zu bestimmten Radionukliden erschwert oder sogar unmöglich. Damit ist eine direkte, rein physikalische Messung von Alpha- oder Betastrahlung emittierenden Radionukliden auf dem Pegel von Spurenmessungen praktisch unmöglich. Hier hilft dann die Radiochemie weiter, die zu Beginn der Messung radioaktiver Stoffe in der Umwelt auch vor den gammaspektrometrischen Messungen mit den damaligen NaI(Tl)-Detektoren unverzichtbar war.

## Radiochemie – das Prinzip ist einfach

Das chemische Element, dessen radioaktive Isotope Alpha- oder Betastrahlen aussenden, wird aus einer Umweltprobe mit chemischen Verfahren abgetrennt. In den meisten Fällen wird damit auch eine Anreicherung erreicht, die zur Erhöhung der schließlich im Messpräparat vorliegenden Aktivität führt. Erst wenn die vorliegende Aktivität die Erkennungsgrenze des Messgerätes signifikant überschreitet, wird eine zuverlässige Aktivitätsmessung möglich. Die Umsetzung des Prinzips ist allerdings nicht trivial. Das wird an der Vielzahl von radiochemischen Verfahren deutlich, die in der Sammlung der „Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ für die verschiedenen Umweltmedien enthalten sind [1]. Dort werden die Grundlagen der radiochemischen Verfahren detaillierter beschrieben. Für die Erklärung von Fachbegriffen bieten die Leitstel-

len das „Glossar zu den Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ an, in dem eine große Fülle von Fachbegriffen erklärt ist [2].

## Die relevanten Radionuklide

Die bei der Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt interessierenden Alphastrahlen emittierenden Nuklide sind die natürlichen Radionuklide aus den radioaktiven Zerfallsreihen von Uran-238 (U-238) und Thorium-232 (Th-232), in geringerem Maße auch die von Uran-235 (U-235) sowie die künstlich erzeugten Isotope der Elemente Neptunium (Np-237), Plutonium (Pu-238, Pu-239, Pu-240), Americium-241 (Am-241) und Curium (Cm-242, Cm-244). Die wichtigsten Betastrahlen emittierenden Radionuklide sind Tritium, Kohlenstoff-14 (C-14), die Isotope Strontium-89 (Sr-89) und Sr-90 sowie dessen Tochternuklid Yttrium-90 (Y-90).

Im Routinebetrieb des Integrierten Mess- und Informations-System (IMIS) werden zur Überwachung der bodennahen Luft im Rahmen der Spurenanalyse monatliche Analysen von Am-241, Sr-90, Uran- und Plutonium-Isotopen verlangt. Am-241 kann mit den hochempfindlichen Gammaspektrometern der PTB sogar direkt in den wöchentlichen Aschen gemessen werden, und der Monatsmittelwert wird aus diesen Messwerten berechnet. Das ist bei den anderen Radionukliden nicht möglich, weil sie keine leicht messbare Gammastrahlung aussenden. Daher werden die Aschen eines Monats zu einer einzigen Monatsmischprobe vereinigt. Diese wird nach dem unten beschriebenen radiochemischen Trennungsgang verarbeitet, sodass bei Luftvolumen von bis zu 750 000 m<sup>3</sup> und der hohen Messempfindlichkeit der Messplätze typische Nachweisgrenzen von wenigen nBq/m<sup>3</sup> für Sr-90 und unter 0,1 nBq (U und Pu) erreicht werden. Das maximale Luftvolumen wird nur unter optimalen Bedingungen erreicht, nämlich dann, wenn ein Kalendermonat fünf Wochen umfasst und in dieser Zeit nur wenig Staub in der Luft enthalten ist. Der Mittelwert des Luftvolumens der letzten Jahre liegt bei rund 700 000 m<sup>3</sup>.

\* Dr. Herbert Wershofen, Arbeitsgruppe „Umweltradioaktivität“, E-Mail: herbert.wershofen@ptb.de

## Der radiochemische Trennungsgang der Spurenmesstelle

Die wesentlichen Teilschritte des radiochemischen Trennungsganges werden beschrieben, ohne im Einzelnen auf die den Trenn- und Reinigungsschritten zugrunde liegenden chemischen Reaktionen einzugehen, was den Rahmen dieser Übersicht sprengen würde. Diese Darstellung beschränkt sich auf die Arbeiten mit Luftstaubproben, in denen nur die löslichen Anteile der interessierenden Radionuklide zu erfassen sind. Anpassungen, die für die Bestimmung von Alpha- oder Betastrahlung emittierenden Radionukliden in anderen Umweltproben oder für die Bestimmung der insgesamt in einem Umweltmedium enthaltenen Aktivität erforderlich sind, werden nicht beschrieben. Wird die Bestimmung der gesamten z. B. in einem Boden enthaltenen spezifischen Aktivität der Uran- oder Thoriumisotope gefordert, ist ein Totalaufschluss der Probe erforderlich, denn eine Extraktion ist dann unzureichend.

## Probenvorbehandlung

Nach den gammaspektrometrischen Messungen liegen die einzelnen Wochenproben in Form von gepressten Aschetabletten vor (Bild 1). Die Tabletten werden aus den Messröhrchen entnommen, zunächst in einem Mörser zerrieben und anschließend in einer Kugelmühle fein zermahlen. Damit wird erreicht, dass im folgenden Schritt die löslichen Anteile leichter und schneller extrahiert werden. Als Extraktionsmittel wird „Königswasser“ eingesetzt. Königswasser ist ein Gemisch aus konzentrierter Salzsäure und konzentrierter Sal-

petersäure im Verhältnis 3:1. Damit wird die fein gemahlene Luftstaubasche etwa zwei Stunden lang ausgekocht. Die unlöslichen Anteile werden nach dem Abkühlen der Probe von der Säure, mit der anschließend weiter gearbeitet wird, abfiltriert.

## Vorabtrennung und Anreicherung der Radionuklide

Nach der Extraktion liegen die zu bestimmenden Radionuklide in einer großvolumigen Lösung, meist etwa ein Liter, vor. Das Blockschema auf den Seiten 54 und 55 zeigt den gesamten radiochemischen Trennungsgang im Überblick. Die Radionuklide werden im nächsten Schritt z. B. durch eine Gruppenfällung oder Mitfällung von den nicht radioaktiven Anteilen der Probe abgetrennt. Dabei erfolgt gleichzeitig auch die Trennung von einem großen Teil der Radionuklide, die später die Messung stören würden. In der PTB kommt hier die Mitfällung an Eisenhydroxid ( $\text{Fe}(\text{OH})_3$ ) zum Einsatz. Wenn sich die Eisenhydroxidkristalle bilden, werden die Atome der Aktinoide darin eingeschlossen, der Niederschlag fällt aus und setzt sich auf dem Gefäßboden ab (Bild 2). Die löslichen Bestandteile der Probe, darunter auch Sr-89 und Sr-90, bleiben bei der folgenden Filtrierung in der Lösung und werden abgetrennt. Die Lösung wird zur anschließenden Reinigung des Strontiums benutzt, während das Eisenhydroxid im weiteren Verlauf des Trennungsgangs für die Abtrennung und Reinigung von Uran und Plutonium benutzt wird.



Bild 1:  
Luftstaub-Aschetabletten.

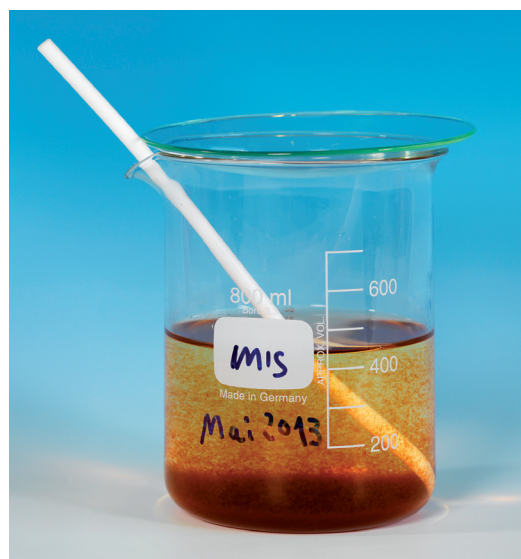


Bild 2:  
Eisenhydroxid-Niederschlag mit Uran- und Pu-Isotopen, Strontium verbleibt in der überstehenden Lösung.

## Abtrennung und Reinigung von Strontium

In der Strontiumlösung, die vom Eisenhydroxid getrennt wurde, können sowohl Sr-89 als auch Sr-90 enthalten sein. Sr-89 ist jedoch nur nach einer frischen Kontamination zu erwarten und dann auch nur relativ kurz im Vergleich zu Sr-90. Die Halbwertszeit von Sr-89 beträgt ca. 2,6 Jahre, die von Sr-90 dagegen ca. 28,6 Jahre. Der radiochemische Trennungsgang wird im Routinebetrieb so durchgeführt, wie er zur Bestimmung beider Isotope erforderlich ist. Das ist zwar deutlich aufwendiger und dauert länger, aber wir „bleiben in Übung“. Der Hintergrund für dieses Vorgehen ist, dass beide Isotope reine Betastrahler sind, die chemisch nicht voneinander getrennt werden können. Auch mit einem Proportionalzählrohr können sie nicht unterschieden werden. Ein alternatives Messverfahren, die sogenannte Flüssig-Szintillationsspektrometrie, die eine Unterscheidung der beiden Isotope anhand der verschiedenen Energie der Betastrahlen erlaubt, befindet sich in der PTB jedoch noch in der Vorbereitung. Aus der messtechnischen Klemme hilft allerdings, dass nur die Tochter von Sr-90, das Y-90, radioaktiv ist, eine Halbwertszeit von rund 64 Stunden hat und Betastrahlung emittiert. Die Tochter von Sr-89, das Y-89, ist nicht radioaktiv. Deshalb wird im weiteren Verlauf des Trennungsganges das zuerst abgetrennte Strontium mit einem speziell auf Strontium abgestimmten Ionenchromatographie-Trennharz gereinigt. Bild 3 zeigt eine solche Trennsäule für die Sr-Reinigung. Dabei wird auch alles Yttrium entfernt. Anschließend wird gewartet, bis sich nach ungefähr zwei Wochen das radioaktive Zerfallsgleichgewicht von Sr-90 und seiner Tochter



Bild 3: Trennsäule für die Abtrennung des Sr von störenden Radionukliden und die Trennung von Sr- und Y-Isotopen vor der Herstellung der Messpräparate.

Y-90 wieder eingestellt hat, dann sind die beiden Aktivitäten gleich. Anschließend werden die beiden Elemente noch einmal getrennt, wonach die beiden damit erhaltenen Lösungen separat zu Messpräparaten weiterverarbeitet werden.

Die beiden Messpräparate werden gleichzeitig in einem Proportionalzähler gemessen. Bild 4 zeigt ein Messpräparat, das aus einem getrockneten Filterkuchen von entweder Strontiumcarbonat oder von Yttriumoxalat besteht, der einen Durchmesser von rund 5 cm hat. Die Messdauer beträgt im Routinebetrieb etwa 25 Stunden. Die Messdauer eines Präparates ist sowohl für die Bestimmung der Blindwerte als auch für die Bestimmung der Nulleffekte der Proportionalzähler gleich lang.



Bild 4: Beispiel eines Messpräparates zur Aktivitätsbestimmung von Y-90 oder von Sr-89 und Sr-90 zum Einsatz im Proportionalzählrohr.

Aus dem Messergebnis der Y-Messung errechnen wir die zum Zeitpunkt der Trennung vom Sr vorhandene Aktivität von Sr-90, die ja gleich groß ist. Aus der Sr-Messung ergibt sich die Summe der Aktivitäten von Sr-89 und Sr-90. Aus dieser Summe ergibt sich die Aktivität des Sr-89 durch Abzug der über Y-90 bestimmten Aktivität von Sr-90.

Ein Blick auf Bild 8, das auch die störenden „Dreckeffekte“ am Beispiel eines Alphaspektrums eines Plutoniumpräparates zeigt, macht deutlich, dass die Berücksichtigung der radiochemischen Ausbeuten, der Nulleffektbeiträge und der radiochemischen Blindwerte einen erheblichen Aufwand erfordert. Daneben ist die Erfassung aller bei der Auswertung einer Analyse zu berücksichtigenden Korrekturen des radioaktiven Zerfalls in der Zeit zwischen der Probenentnahme und den radiometrischen Messungen für die korrekte Ermittlung eines Messergebnisses unverzichtbar. Die Grundlagen zur Berücksichtigung dieser Korrekturen sind in den allgemeinen Kapiteln der „Messanleitungen“ erläutert [1].

## Trennung von Uran und Plutonium

Im Eisenhydroxid, das nach der Strontiumabtrennung vorliegt, sind Uran und Plutonium noch nebeneinander enthalten. Zu ihrer Trennung wird das Eisenhydroxid aufgelöst und die entstehende

Lösung durch eine Trennsäule geschickt. In dieser befindet sich ein spezielles Trennharz, das unter genau eingestellten Reaktionsbedingungen das Plutonium festhält und das Uran passieren lässt. Ist die nötige Menge – hier ist die Erfahrung des Personals sehr gefragt – an Lösung durch die Säule hindurchgelaufen, wird zunächst das Auffanggefäß gewechselt. Dann werden die Reaktionsbedingungen so eingestellt, dass das Plutonium nicht mehr auf der Säule verbleibt und mit der Lösung herausläuft.

### Reinigung von Uran

Das Uran ist nach der Abtrennung von Plutonium in den meisten Fällen radiochemisch schon so rein, dass aus dieser Lösung das Messpräparat für die Aktivitätsbestimmung hergestellt werden könnte. Die Erfahrungen im Verlauf der Trennungsgangentwicklung haben jedoch gezeigt, dass Luftstaub sehr viel des natürlich radioaktiven Polonium-210 (Po-210) enthalten kann, sodass die zu Beginn des Trennungsganges durchgeführte Abtrennung nicht ausreicht. Dann kann Po-210 gemeinsam mit dem als Ausbeutetracer zugesetzten U-232 im Messpräparat vorliegen. In diesem Fall lässt sich die radiochemische Ausbeute für Uran nicht zuverlässig bestimmen, weil die Alphastrahlen von Po-210 und U-232 an der gleichen Stelle im Alphaspektrum registriert werden. Dann ist nicht mehr exakt feststellbar, wie groß die im Verlauf des Trennungsganges unvermeidbaren Uranverluste waren, sodass die ursprünglich in der Luftstaubprobe vorhandenen Aktivitäten von U-234, U-235 und U-238 ebenfalls nicht zuverlässig bestimmt werden können. Zur Reinigung des U von Po-210 wird eine Trennsäule eingesetzt, ähnlich wie in Bild 3 gezeigt, allerdings enthält sie nun ein Ionenaustauscherharz. Aus der nach dieser Reinigung erhaltenen Lösung wird mit

einem elektrolytischen Abscheideverfahren das U auf einem Edelstahlplättchen abgeschieden, das anschließend mit einem Alphaspektrometer gemessen wird. Bild 5 zeigt eine Auswahl typischer Messpräparate für die Alphaspektrometrie. Die Messdauer liegt meist bei einigen Tagen bis zu einer Woche, sodass auch U-235 noch recht genau messbar ist, dessen Aktivität in Natur-Uran nur bei 4,7 % der Aktivität des in der Probe vorhandenen U-238 liegt.

### Reinigung von Plutonium

Die derzeit im Luftstaub zu erwartende Aktivitätskonzentration von Pu liegt ungefähr bei einem Tausendstel der Aktivitätskonzentration von U-234 oder U-238. Deshalb ist bei der Durchführung des radiochemischen Trennungsganges peinlich darauf zu achten, eine möglichst hohe radiochemische Ausbeute zu erzielen. Anderenfalls ist die auf dem Messpräparat vorliegende Aktivität der Pu-Isotope so gering, dass die Empfindlichkeitsgrenze der Detektoren nicht überschritten wird. Ein zweiter Grund für die besonders sorgfältige Reinigung des Pu ist, dass einige der natürlichen Radionuklide aus den Zerfallsreihen von Uran und Thorium, die auch auf dem Edelstahlplättchen abgeschieden würden, ebenfalls Alphastrahlen emittieren. Diese erscheinen dann im Alphaspektrum an der gleichen Stelle wie die Alphastrahlen der Pu-Isotope oder so dicht daneben, dass sie nur schlecht oder gar nicht zu unterscheiden sind.

Daher wird die nach der Trennung von U und Pu erhaltene Lösung zuerst einer Reinigung mit einem Trennharz unterzogen, das in einer Trennsäule eingesetzt wird, ähnlich wie in Bild 3 gezeigt. Anschließend wird noch eine weitere Reinigung des Pu mit einem Ionenaustauscherharz durchgeführt. Aus der nach dieser Reinigung erhaltenen

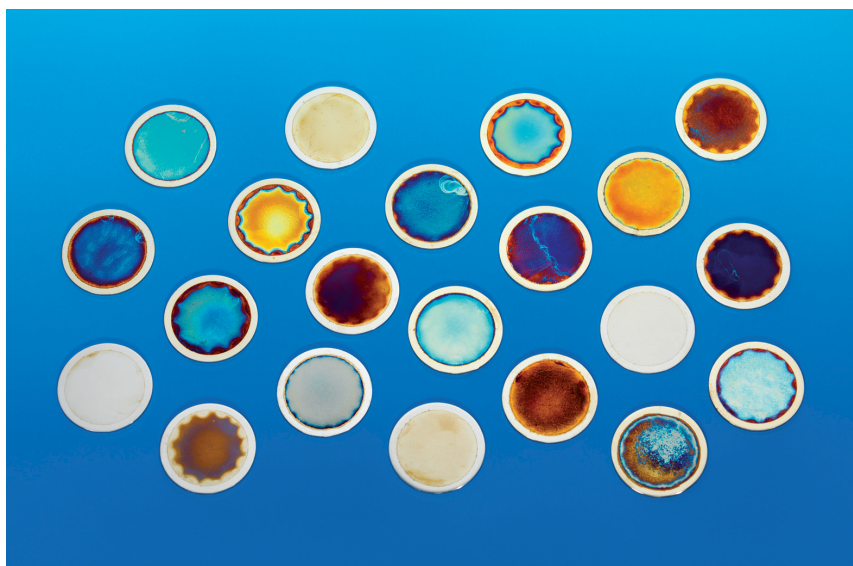


Bild 5: Auswahl typischer Messpräparate für die Alphaspektrometrie. Diese Art der Färbung oder der Musterung sagen nichts über die Qualität der Präparate oder die radiochemische Ausbeute aus. Der Durchmesser der Stahlplättchen beträgt 30 mm, der effektive Durchmesser des Präparates beträgt 25 mm.

Lösung wird mit einem elektrolytischen Abscheideverfahren das Pu auf einem Edelstahlplättchen abgeschieden, das anschließend mit einem Alpha-spektrometer gemessen wird. Die Messdauer liegt meist bei mehreren Wochen. Pu-(239+240) kann in Aktivitätskonzentrationen von wenigen nBq/m<sup>3</sup> bestimmt werden, während Pu-238 meist unter der Nachweisgrenze liegt. Diese ist weniger von den Nulleffekten der Detektorsysteme, sondern hauptsächlich von den radiochemischen Blindwerten bestimmt, sodass Pu-238 in Monatsproben meist nicht nachweisbar ist.

### Wo stoßen wir an Grenzen?

Im Wesentlichen wird die Nachweisgrenze der radiochemischen Verfahren von der Erkennungsgrenze des Detektorsystems bestimmt. Das ist im Prinzip die kleinste Aktivität, die das Messgerät neben dem immer vorhandenen Untergrund messen kann. Daher wird bei der Spurenmessung radioaktiver Stoffe in der Luft versucht, möglichst viel Luftstaub für eine Probe zu sammeln, damit die Aktivität der darin zu messenden Radionuklide möglichst hoch ist. An dieser Stelle ist anzumerken, dass die Staubmenge, die gesammelt wird, auch sehr stark vom Wetter abhängt. Vereinfacht ausgedrückt: Viel Regen – wenig Staub – kleine Aktivitäten! Das gilt für alle Messverfahren, egal für welche Art von Strahlung oder welches Messgerät eingesetzt wird.

Ist vor der eigentlichen radiometrischen Messung, wie im Fall der Bestimmung von Alphastrahlen oder Betastrahlen emittierenden

Radionukliden, noch eine aufwendige radiochemische Abtrennung und Reinigung erforderlich, müssen Aktivitätsverluste hingenommen werden. Diese sind unvermeidbar, weil praktisch kaum eine chemische Reaktion zu absolut 100 % abläuft. Trotz sorgfältigster Arbeiten gehen auch immer geringe Mengen des Probenmaterials bei Trennungen und Umfüllungen verloren.

Ein besonderes Problem stellen die immer in Chemikalien, Geräten oder in der Laborumgebung enthaltenen natürlichen Radionuklide dar. Diese gelangen teilweise mit in die Messpräparate, wo sie ebenfalls Alphastrahlen und Betastrahlen emittieren. Dieser Beitrag zur Zählrate eines Messpräparates wird Blindwert (englisch: blank) genannt und muss separat bestimmt werden. Dafür ist regelmäßig eine vollständige radiochemische Analyse notwendig, weil sich der Blindwert im Verlauf der Zeit verändern kann. Er kann sich ebenfalls verändern, wenn eine Chemikalie durch eine andere ersetzt wird oder neue Glasgeräte aus einem anderen Glas zum Einsatz kommen. Der Arbeits- und Zeitaufwand für eine Blindwertanalyse entspricht praktisch dem Aufwand für eine Luftstaubanalyse, weil sie genauso durchgeführt wird: mit den gleichen Geräten, mit gleichen Mengen an Reagenzien und Lösemitteln, bei identischen Warte- und Verarbeitungszeiten – nur eben ohne eine Luftstaubprobe. Aus einer ausreichend großen Anzahl (aktueller!) Blindwerte wird ein mittlerer Blindwert für jedes Radionuklid, also auch für die Ausbeutetracer, ermittelt. Dieser Beitrag muss bei der Berechnung der Messergebnisse von der gesamten Zählrate des

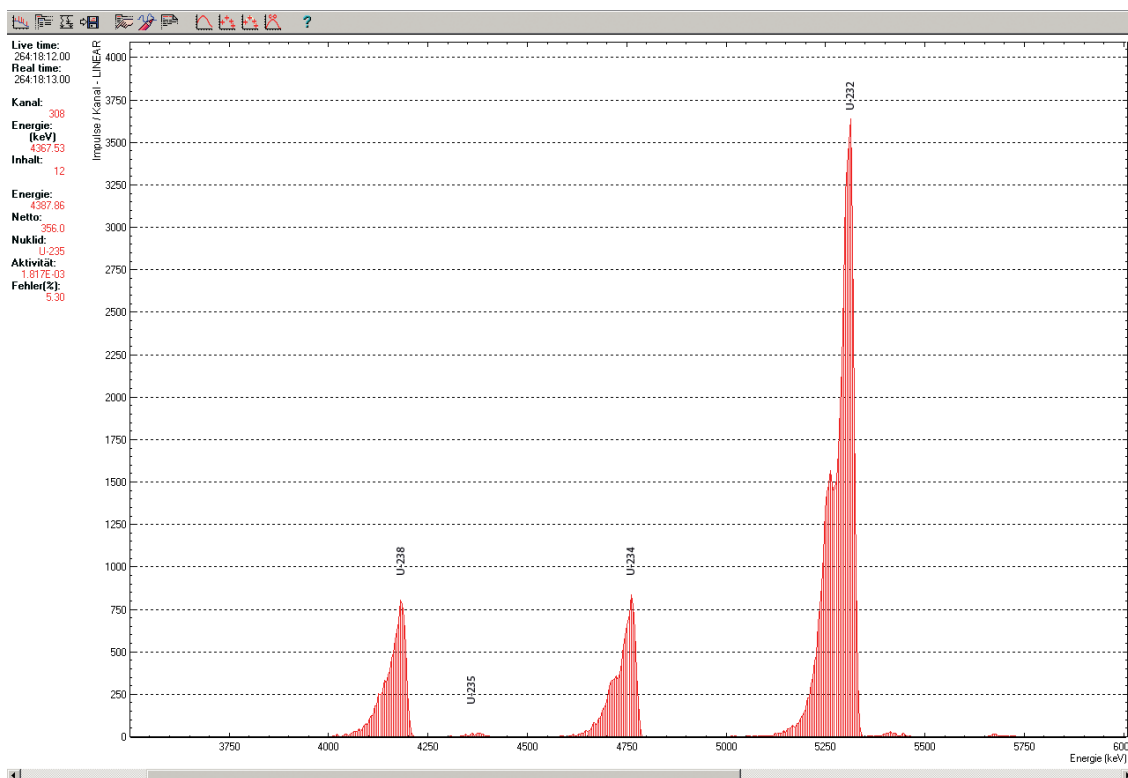


Bild 6:  
 Alphaspektrum von Uran-Isotopen aus der Luftstaubprobe vom Februar 2013.

betreffenden Radionuklids abgezogen werden. In den meisten Fällen ist dieser Beitrag höher als der Nulleffekt der Detektorsysteme.

Was der Blindwert für die Beurteilung und Auswertung eines Alphaspektrums bedeutet, wird am Beispiel der Spektren von Uran (Bild 6) und von Plutonium (Bild 7 und 8) deutlich. Diese Spektren stammen von einer Luftstaubanalyse aus der Zeit der Trennungsgangentwicklung, als die radiochemischen Trenn- und Reinigungsverfahren noch nicht optimiert und die Blindwerte, speziell die für die Pu-Isotope, noch nicht genau bekannt waren.

Deutlich sichtbar sind in Bild 6 die große Linie des Ausbeutetracers U-232, dessen Aktivität eigentlich im Vergleich zu den Aktivitäten der Isotope U-234 und U-238 etwas zu hoch bemessen wurde, sowie die Linien von U-234 und U-238. Die radiochemische Ausbeute lag bei dieser Analyse bei 92 %. U-235 ist in dieser Darstellung nur schlecht erkennbar, war aber Dank der Messdauer von mehr als 264 Stunden mit ausreichender Genauigkeit messbar. Die kleinen Linien rechts der Tracerlinie stammen von Tochternukliden, die aus dem Tracernuklid entstehen. Mit steigender Betriebszeit des Detektors erhöht sich diese Kontamination. Diese Erhöhung des Detektornulleffekts wird durch regelmäßige Nulleffektmessungen erfasst und sowohl bei der Auswertung eines Luftstaubspektrums als auch bei der Auswertung eines Blindwertspektrums berücksichtigt.

Die derzeit erreichbaren Nachweisgrenzen für die Uran-Isotope in einer Luftstaub-Monatsprobe sind, wie bereits erwähnt, maßgeblich vom radio-

chemischen Blindwert bestimmt und liegen bei etwa  $0,5 \text{ nBq/m}^3$ .

Im Vergleich zum Uranspektrum stellt sich das Plutoniumspektrum derselben Luftstaubprobe anders dar. Bild 7 zeigt die schön ausgeprägte Linie des Ausbeutetracers Pu-242, die einer radiochemischen Ausbeute von ca. 68 % entspricht. Der Trennungsgang ist grundsätzlich leistungsfähig und erlaubt die Herstellung von Pu-Messpräparaten mit recht guter Ausbeute. Die Ausbeuten für Pu können von Probe zu Probe stark variieren und sollten sich durch ständige Optimierung des Trennungsganges bei zukünftigen Analysen insgesamt noch verbessern lassen. Allerdings ist in diesem Spektrum noch eine deutliche Verunreinigung mit nicht vollständig abgetrennten natürlichen Uran- und Thorium-Isotopen zu sehen. Daher eignet sich dieses Spektrum gut zur Diskussion der Blindwertproblematik. Bild 8 zeigt dafür dasselbe Spektrum in einer Darstellung, in der die Blindwertbeiträge und die Einflüsse der noch vorhandenen Reste natürlicher Radionuklide deutlicher hervortreten.

Unter dem linken Bereich der Linie des Pu-242 liegt die Linie des U-234, die die Auswertung der Linie des Pu-242 erschwert. Zur Abschätzung, wie groß ein hier vorliegender Anteil von U-234 in der Linie des Ausbeutetracers ist, kann man versuchen die Linie des U-238 auszuwerten. Kennt man die vorliegende Aktivität von U-238, muss die Aktivität von U-234 gleich groß sein – wenn es sich um Natur-Uran handelt. Das kann jedoch nicht immer als uneingeschränkt gültige Annahme vorausgesetzt werden. Außerdem wird die Bestimmung der

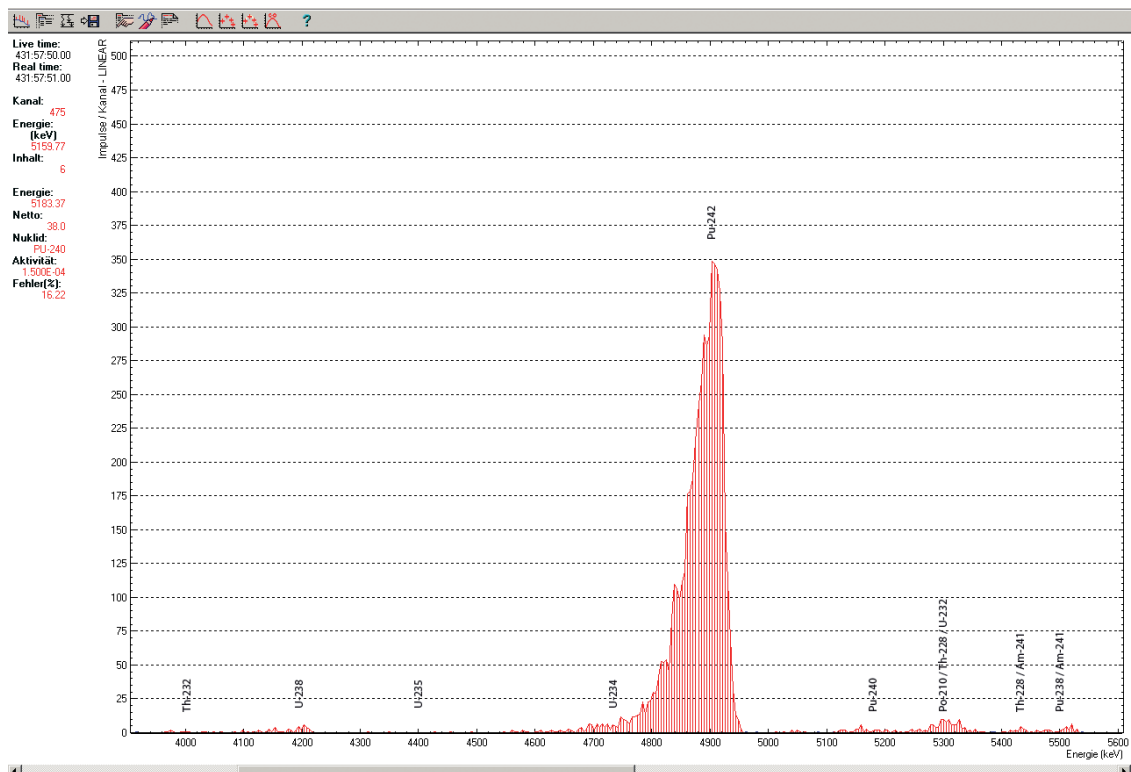


Bild 7: Alphaspektrum von Plutonium-Isotopen aus der Luftstaubprobe vom Februar 2013 zur Darstellung des Ausbeutetracers Pu-242.

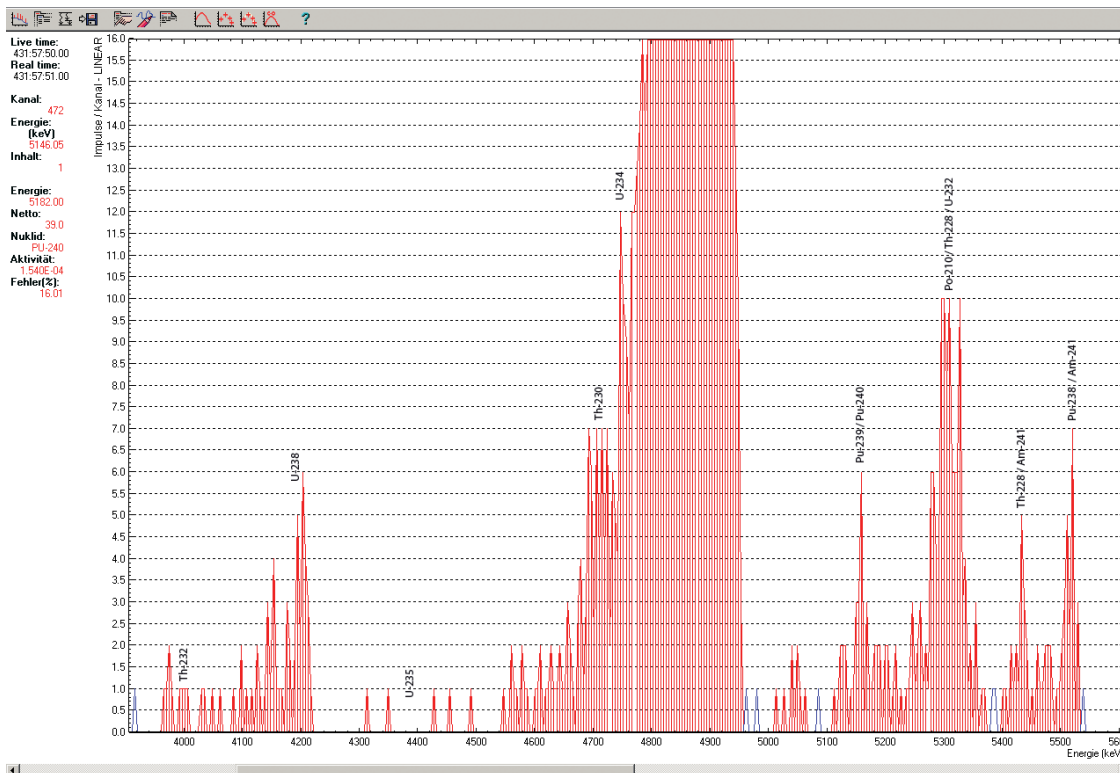


Bild 8: Alphaspektrum von Plutonium-Isotopen aus der Luftstaubprobe vom Februar 2013 zur Darstellung der Einflüsse natürlicher Radionuklide und des radiochemischen Blindwertes auf die Nachweisgrenze.

Aktivität von U-238 und U-234 erschwert, wenn auch Thorium-232 (Th-232) und Th-230 auf dem Messpräparat vorliegen, deren Linien dicht bei den Uranlinien liegen.

Während diese Einflüsse auf die Bestimmung der radiochemischen Ausbeute meistens von untergeordneter Bedeutung sind, weil die Linie des Pu-242 so deutlich im Spektrum hervortritt, ist die Situation bei den zu bestimmenden Pu-Isotopen kritisch (Bild 8).

Im rechten Teil des Spektrums sind einige Linien erkennbar, die sowohl den Pu-Isotopen, die zu bestimmen sind, zugeordnet werden können, als auch natürlichen Radionukliden. Im vorliegenden Beispiel lässt sich die Linie, die vom Auswerteprogramm mit „Pu-(239 / 240)“ markiert wird, zwar gut erkennen. Aber eine zuverlässige Aktivitätsbestimmung ist nur schwer möglich. Die Energien der genannten Pu-Isotope liegen so dicht nebeneinander, dass sie mit alphaspektrometrischen Messungen nicht voneinander getrennt werden können. Diese Trennung erlauben derzeit nur Verfahren der Massenspektrometrie [3]. Daher wird in Messreihen meistens die Summe der Aktivitäten dieser beiden Radionuklide angegeben, die durch die Schreibweisen Pu-(239+240),  $^{239/240}\text{Pu}$  oder  $^{239+240}\text{Pu}$  verdeutlicht wird. Die Linie des Pu-238 ist sogar ganz unter den störenden Linien verborgen, sodass das Auswerteprogramm neben Pu-238 auch Th-228 und Am-241 als im Messpräparat vorliegende Radionuklide vorschlägt.

Die Vorschläge, die das Auswerteprogramm liefert, müssen immer kritisch hinterfragt und mit den Ergebnissen der separat gemessenen radio-

chemischen Blindwerte korrigiert werden. In der Praxis bedeutet das, dass die bei den Analysen erreichbare Nachweisgrenze weniger von den Nulleffekten der Alphaspektrometer, als vielmehr von den radiochemischen Blindwerten bestimmt wird. Derzeit liegen die Nachweisgrenzen für die Pu-Isotope bei ca.  $1 \text{ nBq/m}^3$ . Wir erwarten, dass sich durch Verbesserungen im Trennungsgang und einer Verringerung der radiochemischen Blindwerte diese Grenze in Zukunft zu einer deutlich höheren Messempfindlichkeit hin verschiebt. ■

## Literaturverzeichnis

- [1] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, [www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen/](http://www.bmub.bund.de/themen/atomenergie-strahlenschutz/strahlenschutz/radioaktivitaet-in-der-umwelt/messanleitungen/)
- [2] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, [www.bmub.bund.de/service/publikationen/downloads/details/artikel/glossar-zu-den-messanleitungen-fuer-die-ueberwachung-radioaktiver-stoffe-in-der-umwelt-und-externer-strahlung/?tx\\_ttnews\[backPid\]=384](http://www.bmub.bund.de/service/publikationen/downloads/details/artikel/glossar-zu-den-messanleitungen-fuer-die-ueberwachung-radioaktiver-stoffe-in-der-umwelt-und-externer-strahlung/?tx_ttnews[backPid]=384)
- [3] H. Wershofen, R. Kierepko, J. W. Mietelski, R. Anczkievicz, Z. Holgye, K. Isajenko, J. Kapala, A. Komosa, P. Gaca: The puzzling rare events of high  $^{238}\text{Pu}$  content in the ground level atmosphere: Poster-Vortrag, "Migration conference 2013; 14<sup>th</sup> International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere", September 8<sup>th</sup>–13<sup>th</sup> 2013, Brighton UK

# Radiochemischer Trennungsgang zur Bestimmung von Alpha- und Betastrahlen emittierenden Radionukliden in Luftstaub

## Blockschema

(Stand: Februar 2014)

