

Deutsche Einheitsverfahren zur Wasser-, Abwasser- und Schlammuntersuchung
Physikalische und physikalisch-chemische Kenngrößen (Gruppe C)

Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration A_α
in Trink-, Grund- und Oberflächenwasser (C 14)

DIN
38 404
Teil 14

German standard methods for the examination of water, waste water and sludge; physical-chemical parameters (group C); determination of total alpha activity concentration A_α in potable water, ground water and surface water (C 14)

Méthodes normalisées allemandes pour l'analyse des eaux, des eaux résiduaires et des boues; paramètres physiques et physico-chimiques (groupe C); détermination de la concentration radioactivité alpha totale A_α dans des eaux potables, des eaux souterraines et des eaux de surface (C 14)

Diese Norm wurde gemeinsam mit der Fachgruppe Wasserchemie in der Gesellschaft Deutscher Chemiker aufgestellt (siehe Erläuterungen).

Es ist erforderlich, bei den Untersuchungen nach dieser Norm Fachleute oder Facheinrichtungen einzuschalten.

1 Allgemeine Angaben

Die in der Hydrosphäre auftretenden Alpha-Strahler gehen auf natürliche wie anthropogene Quellen zurück. Die einzelnen Nuklide treten sowohl gelöst als auch an suspendierten Feststoffen gebunden auf.

Im Grundwasserbereich gehen bevorzugt die löslichen Zwischenglieder der natürlichen Zerfallsreihen in die Wasserphase über und gelangen in die Oberflächengewässer [1]. Als Folge der Erosion werden insbesondere natürliche Radionuklide in die Gewässer eingebracht. Bisweilen werden radiumhaltige Abwässer in die Vorfluter eingeleitet [2].

Kerntechnische Einrichtungen leiten ebenfalls in geringen Mengen Alpha-Strahler in die Gewässer ein. So können in den Abwässern der Kernbrennstoff verarbeitenden Betriebe nicht nur natürliche Nuklide, sondern auch künstliche Alpha-Strahler auftreten. Wiederaufarbeitungsanlagen geben in geringen Mengen Transurane an den Vorfluter ab [3]. Auch in den Abwässern von Kernkraftwerken kommen Alpha-Strahler in geringer Konzentration vor [4].

Darüber hinaus treten langlebige Transurane als Folge von atmosphärischen Kernwaffenversuchen sowie bei unkontrollierten Freisetzungen nach Unfällen in den Gewässern auf.

Fortsetzung Seite 2 bis 11

Normenausschuß Wasserwesen (NAW) im DIN Deutsches Institut für Normung e.V.

AVA Documents
Document Sharing Hub

2 Anwendungsbereich

Das Verfahren ist zur Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration A_α in Trink-, Grund- und Oberflächenwasser mit Werten $> 0,05 \text{ Bq/l}$ und einer Salz- bzw. Feststoffbelastung im Bereich von 100 mg/l bis 2000 mg/l geeignet. Bei Werten $> 500 \text{ Bq/l}$, die in der Regel nicht zu erwarten sind, ist die Probe entsprechend zu verdünnen oder ein kleineres Probenvolumen einzusetzen, um Zählverluste bei der Messung, insbesondere bei Verwendung eines Auslösezählers, zu vermeiden. Soll bei erhöhten Schwebstoffgehalten zwischen gelösten und an Feststoff gebundenen Aktivitätsanteilen unterschieden werden, so ist die Messung sowohl an unfiltrierten als auch an filtrierten (Membranfilter, Porendurchmesser $0,45 \text{ }\mu\text{m}$) Proben durchzuführen.

3 Zweck

Langlebige Alpha-Strahler weisen im Ingestionsfalle eine vergleichsweise hohe Radiotoxizität auf. Hieraus ergibt sich die Notwendigkeit, diese Nuklide bzw. Nuklidgruppe im Bereich der Hydrosphäre zu überwachen.

Mit diesem Verfahren können bei geringem Aufwand die in einer Wasserprobe insgesamt enthaltenen Alpha-Strahler ermittelt werden; es stellt somit eine wichtige Monitormessung dar.

Hinweise über die in einer Wasserprobe vorliegende Nuklidzusammensetzung können hieraus nicht entnommen werden. Zur radiologischen Bewertung der mit der Inkorporation von Alpha-Strahlern verbundenen Auswirkung sind Einzel-nuklidmessungen dann vorzunehmen, wenn erhöhte Werte ($> 0,37 \text{ Bq/l}$) auftreten [5], [6].

4 Grundlage des Verfahrens

Zur Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration A_α wird die unfiltrierte Wasserprobe unter Zusatz von Schwefelsäure eingedampft, abgeraucht und geglüht. Der fein pulverisierte Rückstand wird mit einem Proportionalzähler gemessen [7], [8], [9].

Daneben können zur Messung auch Auslöse- und spezielle Szintillationsdetektoren verwendet werden.

5 Störungen

Bei der Aufarbeitung der Proben ist insbesondere mit Verlusten der flüchtigen Zwischenglieder der natürlichen Zerfallsreihen zu rechnen. So wird das Tochternuklid $\text{Rn } 222$ des $\text{Ra } 226$ der $\text{U } 238$ -Zerfallsreihe aus dem radioaktiven Gleichgewicht entfernt. Da dieses Nuklid sowie dessen Folgeprodukte mit einer Halbwertszeit von $t_{\text{Rn } 222} = 3,8 \text{ d}$ nachgebildet werden, ist bei Proben mit merklichen $\text{Ra } 226$ -Gehalten die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes zu beachten.

6 Bezeichnung

Bezeichnung des Verfahrens zur Bestimmung der Gesamt-Alpha-Aktivitätskonzentration A_α in Trink-, Grund- und Oberflächenwasser (C 14):

Verfahren DIN 38 404 – C 14

7 Geräte

- Low-level-Meßeinrichtung (Detektor: z. B. Proportionalzählgerät für fensterlosen Zählbetrieb und Antikoinzidenzschaltung; Abschirmung mit aktivitätsarmem Material (mindestens 5 cm) zur Herabsetzung des Nulleffektes)
- Meßschalen (Durchmesser 6 cm bzw. 20 cm)
- Eindampfvorrichtung, z. B. Oberflächenverdampfer
- Wärmeschrank, z. B. nach DIN 12 880 Teil 1
- Sandbad
- Muffelofen
- Exsikkator, z. B. Vakuum-Exsikkator nach DIN 12 491
- Glas- oder Porzellanschalen (Durchmesser: etwa 20 cm)
- Achatmörser oder Kugelmühle
- Filternutsche (Durchmesser 8 cm) mit Membranfilter (Durchmesser 10 cm), Porendurchmesser 0,45 µm

8 Chemikalien

8.1 Am 241-Standardlösung¹⁾ bzw. Natururanoxid mit Zertifikat

8.2 Schwefelsäure, $c(\frac{1}{2} \text{H}_2\text{SO}_4) = 1 \text{ mol/l}$

8.3 Calciumsalz-Lösungen:

- Aus handelsüblichen Calcium-Standardlösungen durch Verdünnen mit destilliertem Wasser Lösungen mit einer Massenkonzentration an Calciumionen von 1 g/l bzw. 10 g/l herstellen.

8.4 Lanthanchlorid-Lösung:

- 267 mg Lanthanchlorid-7-hydrat, $\text{LaCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, in Wasser lösen; die Lösung mit Wasser in einem Meßkolben auf 100 ml auffüllen.

9 Probenahme

- Wasserproben derart entnehmen, daß für den überwachten Bereich und Zeitraum repräsentative Proben erhalten werden.
- In Fließgewässern Wasserproben aus der fließenden Welle nach Möglichkeit kontinuierlich (zeit- oder mengenproportional) entnehmen.

Bei stehenden Gewässern sowie bei der Überwachung von Trink- und Grundwasser genügen Einzelproben an ausgesuchten Entnahmestellen.

¹⁾ Zu beziehen durch die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig

10 Durchführung

10.1 Probenvorbereitung

- 1 l bis 2 l einer unfiltrierten Wasserprobe (V_p) mit 5 ml bis 10 ml Schwefelsäure (nach Abschnitt 8.2) in einer Schale im Abzug eindampfen und anschließend auf dem Sandbad abrauchen.
- Den Rückstand 1 h bei 450 °C in einem Muffelofen glühen.
- Nach dem Abkühlen den Rückstand wiegen (m_G) und dann in einem Achatmörser oder in einer Kugelmühle staubfein zermahlen.

Bei salzarmen Wässern sind der Wasserprobe vor der Verarbeitung bis zu 3 ml Calciumsalz-Lösung (entsprechend 30 mg bzw. 300 mg Calciumionen) zuzusetzen, um ausreichende Rückstände zu erhalten, oder es ist ein entsprechend größeres Ausgangsvolumen beim Eindampfen einzusetzen.

10.2 Herstellen einer Meßprobe

- Einen Teil des fein pulverisierten Rückstandes von 90 g (bzw. 1000 mg siehe Abschnitt 10.1), abwiegen (m_u : Masse der Meßprobe), auf einer Meßschale (Durchmesser: 6 cm bzw. 20 cm) mit wenig destilliertem Wasser aufschlämmen, mit einem Pistill gleichmäßig verteilen und anschließend an der Luft für 1 h bis 2 h vortrocknen.
- Die Meßproben 1 h bei 105 °C im Trockenschrank trocknen und bis zur Messung in einem Exsikkator aufbewahren.

Bei Meßschalen anderer Größe ist die Einwaage der Meßprobe entsprechend anzugleichen.

Zur Erhöhung der Haftung der Meßprobe empfiehlt es sich, den Boden der Meßschale vorher mit feinem Schleifpapier leicht anzurauen. Die flächenbezogene Masse der Meßprobe beträgt hiernach etwa 3,2 mg/cm². Die Herstellung von Meßproben mit einer Flächenbelegung < 2 mg/cm² ist nicht unproblematisch, da hier verstärkt unzusammenhängende Beläge erhalten werden, die eine Messung beeinträchtigen können.

10.3 Kalibrierung der Meßeinrichtung und Messung

- Zählordnung mit Am 241 kalibrieren.

Anmerkung: Bei Verwendung von U_{nat} (Natururan) als Kalibriersubstanz können Störeinflüsse bei der Probenpräparation auftreten [7], [10], [11], [12]. Das im Handel erhältliche Uran stammt bisweilen aus Uran-Anreicherungsanlagen mit einer nicht näher bekannten Isotopenzusammensetzung. Hinzu kommt, daß die Energie der von Am 241 ausgesandten Alpha-Strahlung (5,4 MeV), die den Verlauf der Selbstabsorption, damit die Zählausbeute, entscheidend mitbestimmt, selbst bei Kalibrierproben mit natürlichen Alpha-Strahlern (neben U 238, U 235, U 234 insbesondere Ra 226 und Folgeprodukte) besser angepaßt ist als die des U_{nat} (4,2 MeV bis 4,6 MeV [12]).

- Zur Minimierung des Matrixeinflusses die Kalibrierung mit dem (nahezu) gleichen Probenmaterial durchführen, das bei den eigentlichen Überwachungsmaßnahmen untersucht werden soll. Bei fensterlosem Betrieb des Proportionalzählers ist auf ausreichende Vorspülung mit Zählgas zu achten (Vorspüldauer je nach Anordnung: 30 min bis 60 min je Probe).