

### 3 SCHNELLE BESTIMMUNG DES $^{89}\text{Sr}$ UND DES $^{90}\text{Sr}$ MIT DEM FLÜSSIGKEITSSZINTILLATIONSZÄHLER (LSC)

D. Tait

Max Rubner-Institut, Institut für Sicherheit und Qualität bei Milch und Fisch  
Leitstelle für Boden, Bewuchs, Futtermittel und Nahrungsmittel pflanzlicher und tierischer Herkunft

$^{90}\text{Sr}$  mit einer Halbwertszeit (HWZ) von 28,4 Jahren wird in relativ hoher Ausbeute bei der Kernspaltung erzeugt [17]. Heutzutage stammt das  $^{90}\text{Sr}$  in Umweltpollen überwiegend von den atmosphärischen Kernwaffenversuchen der 1950er und -60er Jahre. Strontium ist dem Calcium chemisch ähnlich und daher sind Nuklide des Strontiums mobil in der Umwelt. Nach einer Freisetzung gelangen sie in die Nahrungskette und werden von den Menschen ingestiert. Sr wird in die Knochenzellen aufgenommen. Mit einer effektiven Halbwertszeit von 17,5 Jahren ist  $^{90}\text{Sr}$  besonders dosisrelevant [18]. Daher wird  $^{90}\text{Sr}$  routinemäßig in Umwelt- und Nahrungsmittelproben überwacht.

Ein weiteres Strontiumnuklid,  $^{89}\text{Sr}$  mit einer Halbwertszeit von 50,5 Tagen, wird bei der Kernspaltung mit ähnlicher Ausbeute erzeugt. Auf Grund der unterschiedlichen Halbwertszeiten beträgt jedoch die  $^{89}\text{Sr}$ -Aktivität in Kernbrennstäben mittleren Abbrands etwa das 25-fache bis 30-fache der Aktivität des  $^{90}\text{Sr}$  [19]. Daher kann in den ersten Wochen und Monaten nach der Freisetzung von Kernspaltmaterial in die Umwelt die Aktivität des  $^{89}\text{Sr}$  die des  $^{90}\text{Sr}$  in Umwelt und Nahrungsmittelproben um ein Mehrfaches überschreiten. Da die Dosiskoeffizienten der Nuklide unterschiedlich sind [18], ist für Prognosen der Strahlenexposition der Menschen eine genaue Unterscheidung zwischen den Aktivitätskonzentrationen von  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$  erforderlich.

Daher sind schnelle Analyseverfahren für die Bestimmung beider Nuklide für den sog. Intensivfall besonders wichtig. Die Probleme bei solchen Bestimmungen, sowie verschiedene moderne Methoden für die Umweltüberwachung wird in [20, 21] zusammengefasst. Im Folgenden werden beschrieben: 1) das allgemeine Problem bei dieser Analytik, 2) die Hintergründe einer Messtechnik mit der Nuklide gleichzeitig in einer Probenlösung mit minimalem Kalibrier- und Auswertungsaufwand bestimmt werden können.

#### Allgemeine Probleme – die kernphysikalische Eigenschaften

Abbildung 3.1 fasst die relevantesten Eigenschaften der interessierenden Radionuklide zusammen [22].

Da  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  sowie das Tochternuklid  $^{90}\text{Y}$  praktisch reine  $\beta$ -Strahler sind, müssen sie von der Probe und allen störenden Radionukliden chemisch abgetrennt werden, um die Messung ihrer  $\beta$ -Strahlung zu ermöglichen.

Das Verhältnis der Halbwertszeiten von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$ , nämlich langlebiges Mutternuklid und kurzlebige Tochternuklid, bedeutet, dass sich zwischen den Aktivitäten dieser Nuklide ein sog. säkulares Gleichgewicht einstellt. Aus der bekannten [23] Gesetzmäßigkeit  $[A(^{90}\text{Y}) = A(^{90}\text{Sr}) \cdot (1 - e^{-kt})]$ ; wobei  $k = \ln 2 / \text{HWZ} (^{90}\text{Y})$  und  $t$  die seit der Abtrennung vergangene Zeit ist] ergibt sich die folgende, für die Messpraxis wichtige Tatsache: Durch Kenntnis des Zeitintervalls von der Herstellung eines reinen,  $^{90}\text{Y}$ -freien Präparates und der Ausgangsaktivität des  $^{90}\text{Sr}$  lässt sich die Aktivität des  $^{90}\text{Y}$  berechnen. Umgekehrt ist es durch Abtrennung und Messung der  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität möglich, auf die ursprüngliche  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität zurück zu schließen. In den ersten Stunden nach der Herstellung eines reinen  $^{90}\text{Sr}$ -Präparates nimmt die  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität mit einer Rate von etwa 1% der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität pro Stunde zu. (Nach 10 Stunden beträgt die  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität rund 10% der ursprünglichen  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität, und nach 20 Stunden etwa 19,5%). Nach etwa 7 Halbwertszeiten des  $^{90}\text{Y}$  (etwa 19 Tagen) sind die  $^{90}\text{Sr}$ - und die  $^{90}\text{Y}$ -Aktivitäten fast gleich.

Üblicherweise werden diese Tatsachen für eine Messstrategie mit Hilfe des Proportionalzählrohres (PZR) benutzt: Z.B., das Strontium wird aus der Probe radiochemisch abgetrennt und sofort vor dem Nachwachsen des  $^{90}\text{Y}$  gemessen. Nach der Messung wird das Messpräparat ein bis zwei  $^{90}\text{Y}$ -Halbwertszeiten (2,7 bis 5,4 Tage) aufbewahrt, bis das Tochternuklid des  $^{90}\text{Sr}$  auf 50 bis 75 % der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität nachgewachsen ist. Dann wird  $^{90}\text{Y}$ -90 abgetrennt und separat mit dem PZR gemessen. Bei bekannter Wartezeit bis zum Nachwachsen des  $^{90}\text{Y}$  und Kenntnis des Kalibrierfaktors kann man die ursprüngliche  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität berechnen. Mit Hilfe dieses Wertes und bei entsprechender Kalibrierung des PZR kann man dann aus der ersten Strontiummessung auch die  $^{89}\text{Sr}$ -Aktivität berechnen.

Dieses Verfahren hat natürlich den großen Nachteil der langen Wartezeit bis zur  $^{90}\text{Y}$ -Bestimmung. Der

Arbeits- und Zeitaufwand für die radiochemische Abtrennung und Ausbeutebestimmung des Yttrium sind weitere Nachteile.

## Mess-Strategien mit dem Flüssigkeitsszintillationszähler (LSC)

### Messung des Čerenkov-Effektes

Die Werte der maximalen  $\beta$ -Energien der Nuklide zeigen, dass  $^{89}\text{Sr}$ - und  $^{90}\text{Y}$ -Zerfälle den sog. Čerenkov-Effekt hervorrufen können. Dieser Effekt wird von  $\beta$ -Teilchen mit einer Energie größer als etwa 0,5 MeV ausgelöst. In wässriger Lösung ergibt sich dadurch eine Lichtemission bei etwa 400 nm, die mit Flüssigkeitsszintillationsdetektoren (LSC-Messgeräte) gemessen werden kann. Bei typischen LSC-Geräten beträgt die Detektornachweiswahrscheinlichkeit bei der Messung von  $^{89}\text{Sr}$  28% und von  $^{90}\text{Y}$  80%. Für  $^{90}\text{Sr}$  ist die Detektornachweiswahrscheinlichkeit deutlich kleiner als 2%.

Daher ist es möglich neben  $^{90}\text{Sr}$  nur  $^{90}\text{Y}$ -Zerfälle oder nur  $^{89}\text{Sr}$ -Zerfälle zu zählen. Dabei ist zu beachten, dass bei einer Čerenkov-Messung die Impulse von  $^{90}\text{Y}$  und  $^{89}\text{Sr}$  gleich sind. Deshalb darf bei der Messung von  $^{90}\text{Y}$  kein  $^{89}\text{Sr}$  anwesend sein und umgekehrt.

Eine Strategie für die schnelle Bestimmung des  $^{90}\text{Sr}$  bei Vorhandensein von  $^{89}\text{Sr}$  wäre dann:

*Schritt 1:* Abtrennung eines  $^{90}\text{Y}$ -freien Sr-Messpräparates in wässriger Lösung mit sofortiger Messung und Aktivitätsbestimmung des  $^{89}\text{Sr}$  über den Čerenkov-Effekt.

*Schritt 2:* Vorbereitung eines zweiten  $^{90}\text{Y}$ -freien Sr-Messpräparates in Szintillationscocktail, oder Dispergierung der Lösung von Schritt 1 im Szintillationscocktail. Danach sofortige Messung der Szintillationszählrate des  $^{89}\text{Sr}$  +  $^{90}\text{Sr}$  in der Mischung.

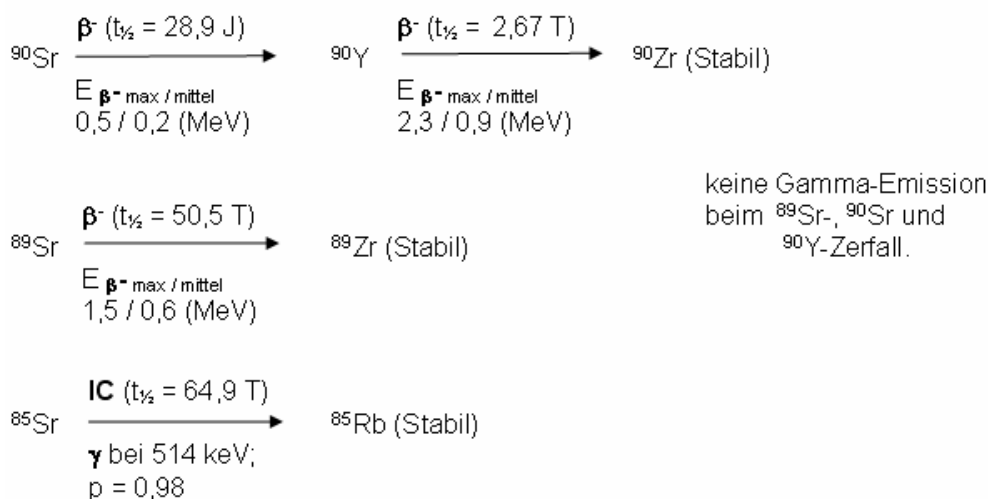


Abbildung 3.1  
Kernphysikalische Eigenschaften und Zerfallsarten der relevanten Nuklide

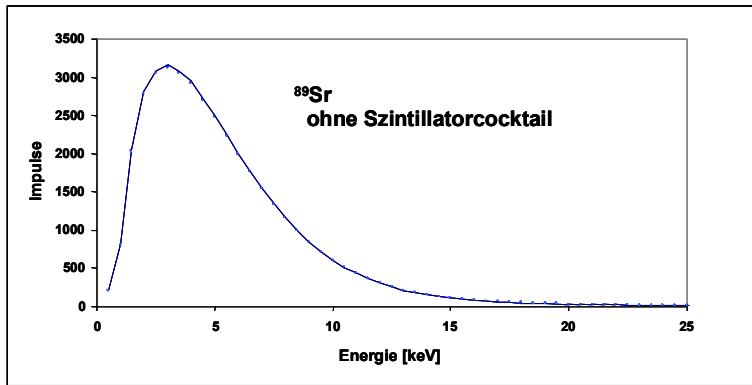
Bei entsprechender Kalibrierung des Gerätes kann der  $^{89}\text{Sr}$ -Anteil in der Szintillationszählrate über den bei Schritt 1 bestimmte Aktivität ermittelt und subtrahiert werden. Es bleibt dann die Nettozählrate des  $^{90}\text{Sr}$ . Es wird vorausgesetzt, dass beide Schritte vor dem Nachwachsen signifikanter  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität durchgeführt werden. [Abbildung 3.2](#) zeigt ein Beispiel eines Čerenkovspektrums.

**Messung der Flüssigszintillationsspektren der Nuklide**

Moderne, mit Vielkanalanalysatoren ausgestattete LSC-Messgeräte ermöglichen die Messung von

Szintillationsspektren der im Szintillationscocktail vorliegenden Nuklide. Dabei spiegeln sich in den Spektren die unterschiedlichen maximalen und mittleren  $\beta$ -Energien ( $E_{\beta^- \text{ max}}$ ,  $E_{\beta^- \text{ mittel}}$ ) der Nuklide wider. Da die mittleren und maximalen  $\beta$ -Energien und folglich die Szintillationsspektren der Nuklide  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$  sich ausreichend unterscheiden ([Abbildung 3.1](#)) ist die nuklidspezifische Messung aller drei Nuklide gleichzeitig in einem Präparat prinzipiell möglich.

Zuerst müssen lediglich die Szintillationsspektren der Nuklide  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  im Gleichgewicht und  $^{90}\text{Y}$  allein gemessen werden. Das Spektrum des  $^{90}\text{Sr}$  kann durch Subtraktion des  $^{90}\text{Y}$ -Anteils vom  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Spektrum rechnerisch erzeugt werden. Mit Hilfe des Einzelnuclid-Szintillationsspektrums kann man das Verhältnis der Nettozählrate ( $R_n$ ) des Nuklids in



Nuklid	NWW Čerenkov (%)
Sr-85	0,15
Sr-89	28
Sr-90	< 2
Y-90	80

Abbildung 3.2  
Messung der Čerenkov-Emission mit dem LSC-Gerät – spektrale Form und Tabelle der Nachweiswahrscheinlichkeiten (NWW) relevanter Nuklide. Beispielspektrum mit 100 Bq Sr-89 in H<sub>2</sub>O erzeugt (Y-90 ergibt die gleiche spektrale Form)

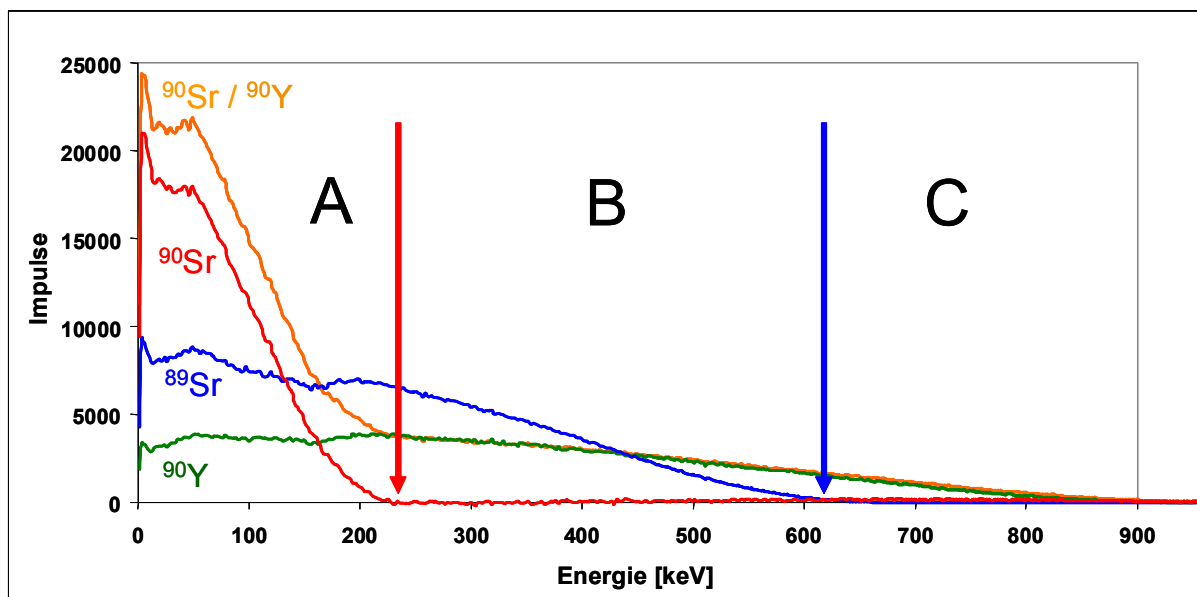


Abbildung 3.3  
Szintillationsspektren (alle mit 100 Bq Nuklid in 2 ml wässriger 12,5-prozentiger Toluolsulfonsäure und 19,0 ml InstantScintGel Plus (LSC: TriCarb 2260XL))

einem gegebenen Energiebereich zu  $R_n$  in jedem anderen Bereich berechnen.

Die [Abbildung 3.3](#) zeigt, dass ein Mischspektrum der drei Nuklide in drei getrennte und sich nicht überlappende Energiebereiche A, B und C aufgeteilt werden kann:

A (0 bis 225 keV): mit Zählbeiträgen von <sup>90</sup>Sr, <sup>89</sup>Sr und <sup>90</sup>Y,

B (225 bis 610 keV): mit Zählbeiträgen von <sup>89</sup>Sr und <sup>90</sup>Y, und

C (610 bis 900 keV): mit Zählbeiträgen von <sup>90</sup>Y allein.

Eine Auswertungsstrategie könnte sein: In Bereich C wird <sup>90</sup>Y allein gemessen. Mit Hilfe dieser Messung

und der Kenntniss der spektralen Form des <sup>90</sup>Y-Einzelnuklidspektrums können die Bereiche A und B für die <sup>90</sup>Y-Beiträge korrigiert werden. Danach enthält Bereich B nur <sup>89</sup>Sr Beiträge. Dies ermöglicht:

1. die <sup>89</sup>Sr-Aktivitätsbestimmung
2. die Ermittlung von <sup>89</sup>Sr-Beiträgen im Bereich A.

Nach der Substraktion der <sup>89</sup>Sr-Beiträge in Bereich A bleiben dann nur die Beiträge des <sup>90</sup>Sr. Damit wird die <sup>90</sup>Sr-Aktivität bestimmt.

D.h. durch die sequentielle Ermittlung und Substraktion der Zählbeiträge der Einzelnuklide werden Nettozählraten für <sup>89</sup>Sr (in Fenster B) und <sup>90</sup>Sr (in Fenster A) bestimmt. Bei entsprechender Kalibrierung zur Festlegung der Energiebereiche und Ermittlung der Nuklid-Nachweiswahrscheinlichkeiten in diesen Be-

reichen können die Aktivitäten des  $^{90}\text{Sr}$  und des  $^{89}\text{Sr}$  bestimmt werden.

Diese Auswertungsstrategie jedoch bedeutet für die Bestimmung von Messunsicherheiten, Nachweis- und Erkennungsgrenzen einen erheblichen Kalibrier- und Rechenaufwand im Voraus. Folgende Umstände verringern den Mess-, Kalibrier- und Rechenaufwand:

*Fall 1:* Das Yttrium wurde von der  $^{89}\text{Sr}+^{90}\text{Sr}$ -haltigen Probe abgetrennt, und die Messung wurde vor dem Nachwachsen signifikanter  $^{90}\text{Y}$ -Aktivitäten durchgeführt.

*Fall 2:* Die Probe ist eine  $^{89}\text{Sr}$ -freie Routineprobe.

Im Falle 1 entfällt eine Korrektur für  $^{90}\text{Y}$ . Die Nettozählrate für  $^{89}\text{Sr}$  allein wird direkt im Bereich B gemessen und die  $^{89}\text{Sr}$ -Aktivität mit Hilfe der entsprechenden Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Fenster A wird von Beiträgen des  $^{89}\text{Sr}$  mit Hilfe des entsprechenden Korrekturfaktors bereinigt. Die verbleibende  $^{90}\text{Sr}$ -Nettozählrate wird mit Hilfe der Nachweiswahrscheinlichkeit in Aktivität umgerechnet.

Im Falle 2, wenn die Bestimmung auch ohne Zeitdruck durchgeführt werden kann, wird die abgetrennte Sr-Probe so lange aufbewahrt, bis die nachwachsende  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität wieder mit der des  $^{90}\text{Sr}$  im Gleichgewicht ist. In diesem Fall kann der Energiebereich für die Messung der Zählrate erweitert werden. Zur Auswertung wird ein Cocktail mit einer Standardaktivität des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  im Gleichgewicht unter genau den gleichen Bedingungen wie die Probe gemessen. Die Aktivität der Probe wird durch den Vergleich der Proben- und Standardzählraten ermittelt.

Die Werte für die End- und die mittlere Energien der Szintillationsspektren der Nuklide in [Abbildung 3.1](#) sind viel kleiner als die in der [Tabelle 3.1](#) angegebenen Werte. Die im LSC-Gerät beobachtete spektrale Form ist vom sog. Quencheffekt (Löscheffekt) in der Messlösung abhängig. Der Effekt wird durch die Zusammenstellung der Messlösung beeinflusst und hauptsächlich durch gelösten Sauerstoff und zum Teil durch das Wasser verursacht. Halogenierte Kohlenwasserstoffe, Aldehyde/Ketone, Übergangs- und Schwermetalle sowie gefärbte Stoffe (sog. Farbquench) verursachen auch Quench. Jedoch bei gleichbleibenden Bedingungen in der Lösung bleibt der Quench und folglich die spektrale Form gleich. Der Quenchwert (ein Maß für den Quencheffekt) der Messlösung wird automatisch vor Beginn jeder Szintillationsmessung vom LSC-Gerät durchgeführt. So kann die Vergleichbarkeit der Messungen stets geprüft werden.

Das Maß für Quench bei den hier gezeigten Spektren war der Packard tSIE-Wert („transformed Spektral Index of External Standard“). Der beobachtete Schwankungsbereich der Werte war 345 bis 366. In diesem Wertebereich waren keine signifikanten Änderungen in der spektralen Form eines gegebenen Nuklids ( $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  oder  $^{90}\text{Y}$ ) erkennbar.

### Berücksichtigung des $^{85}\text{Sr}$ -Ausbeutetracers

[Abbildung 3.1](#) zeigt auch die relevanten kernphysikalischen Daten für  $^{85}\text{Sr}$ , das häufig als Ausbeutetracer benutzt wird.  $^{85}\text{Sr}$  ist kein Kernspaltprodukt. Es wird künstlich im Zyklotron (durch  $^{85}\text{Rb}(p,n)^{85}\text{Sr}$  oder  $^{85}\text{Rb}(d,2n)^{85}\text{Sr}$ ) hergestellt. Die starke 514 keV Gammalinie ist problemlos durch Gammaskpektrometrie mit Ge(Li) oder HpGe-Detektoren zu messen. Das Nuklid zerfällt durch Elektroneneinfang und emittiert dabei statt  $\beta$ -Strahlung, sog. Auger-Elektronen.

Die Auger-Elektronen ergeben nur schwache Signale bei den üblichen  $\beta$ -Messungen mit dem Proportionalzählrohr und Flüssigkeitsszintillationszähler (LSC). Daher stört die Anwesenheit des  $^{85}\text{Sr}$  bei  $^{90}\text{Sr}$ -Messungen lediglich wenn die zugegebene  $^{85}\text{Sr}$ -Aktivität einige Größenordnungen höher als die  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität im Messpräparat liegt. Die [Abbildung 3.4](#) vergleicht das Szintillationspektrum erzeugt von 100 Bq des  $^{85}\text{Sr}$  mit dem Spektrum des Untergrundes. Die Spektren gleichen sich erst bei Energien größer als etwa 240 keV. [Tabelle 3.2](#) zeigt die Zählraten von Cocktails mit und ohne unterschiedlichen  $^{85}\text{Sr}$ -Aktivitäten in verschiedenen Energiebereichen.

In aktuellen Routineproben mit relativ kleinen  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentrationen müssen diese Effekte berücksichtigt werden um das Vortäuschen von  $^{90}\text{Sr}$  auszuschließen. Z.B. [Tabelle 3.1](#) gibt die Zählraten in verschiedenen Energiefenstern des Szintillationspektrums bei unterschiedlichen  $^{85}\text{Sr}$ -Zugaben zum Cocktail an und stellt diese Zählraten den entsprechenden „ $^{85}\text{Sr}$ -freien“-Untergrundzählraten gegenüber. Die Zählbeiträge zum Untergrund werden erst bei relativ geringer  $^{85}\text{Sr}$ -Zugabe (maximal 15 Bq) und bei höheren Energien (z.B. Energiebereich 350 – 1000 keV) insignifikant.

Daher können auch relativ geringe Aktivitätszugaben des  $^{85}\text{Sr}$ -Tracers die Szintillationsmessung des  $^{90}\text{Sr}$  in Routineproben erheblich stören. Z.B. die Messpräparate von Routineproben enthalten üblicherweise etwa 0,01 bis 1 Bq  $^{90}\text{Sr}$ . Bei Vernachlässigung der Störung durch  $^{85}\text{Sr}$ , würde die Zugabe von z.B. nur 15 Bq  $^{85}\text{Sr}$ -Tracer etwa 0,08 Bq  $^{90}\text{Sr}$  im Energiebereich 15 – 155 keV vortäuschen.

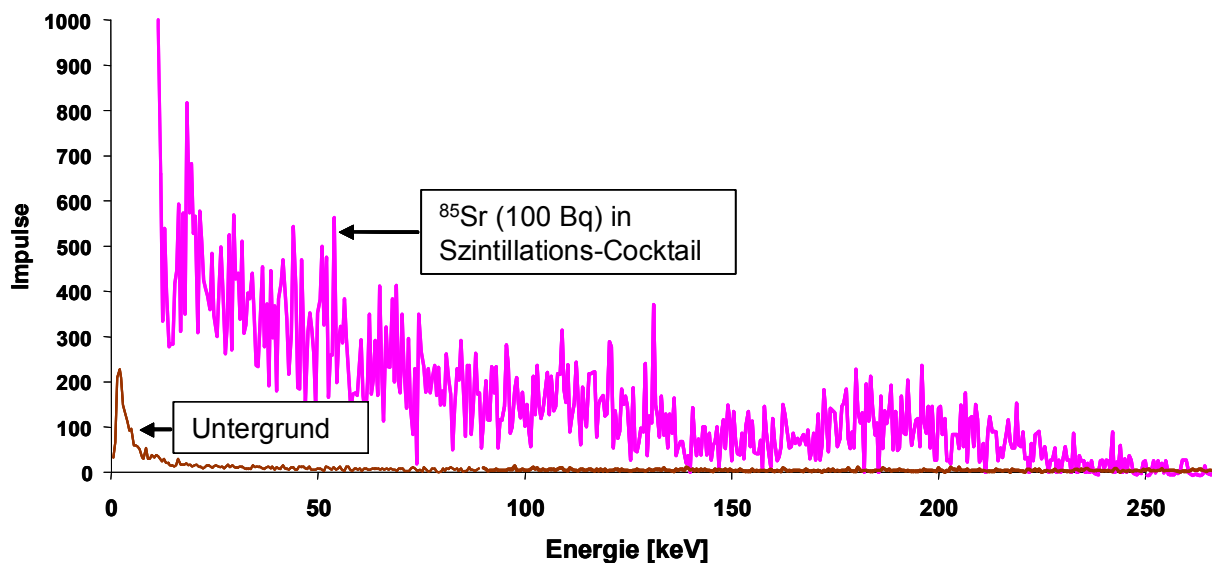


Abbildung 3.4

Ausschnitte der Szintillationspektren des  $^{85}\text{Sr}$  (ca. 100 Bq) und des Untergrundes nach gleicher Messzeit

Tabelle 3.1

Low-Level LSC-Messung<sup>1)</sup> von Szintillationscocktail<sup>2)</sup> nach der Zugabe verschiedener  $^{85}\text{Sr}$ -Aktivitäten

$^{85}\text{Sr}$ Bq	Impulse pro Minute im Energiebereich (keV)					
	0-15	16-155	155-1000	250-1000	300-1000	350-1000
0	4,1	6,7	12,5	11,0	10,3	9,9
5	136	19,7	13,6	10,8	10,1	9,7
10	--	--	--	10,8	10,0	9,5
15	385	44,5	15,3	11,4	10,6	10,1
30	746	76,7	19,1	11,9	10,8	10,2
1000	--	--	--	13,2	11,3	10,6

<sup>1)</sup> LSC: TriCarb 2260XL

<sup>2)</sup> 19 ml InstantScintGel Plus und 2 ml wässriger 12,5-prozentiger Toluolsulfonsäure

Tabelle 3.2

Nachweiswahrscheinlichkeiten in %<sup>1)</sup> in unterschiedlichen Energiebereichen (Messbereichen) eines Low-Level LSC-Gerätes

Energiebereich (keV)	$^{85}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{90}\text{Y}$
16 – 155	4,10	71	15
156 – 1000	0,35	8	62
350 – 1000	<0,01	<1	35

<sup>1)</sup> (Netto Impulszahl pro Sek. / Bq Nuklid)·100

$^{85}\text{Sr}$ -Störungen bei routinemäßigen, Low-Level Sr-90-Bestimmungen in  $^{89}\text{Sr}$ -freien Präparaten kann

man verringern bzw. ganz vermeiden, indem man entweder:

1. Nur wenig (maximal 15 Bq)  $^{85}\text{Sr}$ -Aktivität zur Probe zugibt und das Messpräparat der Routineprobe bis zur Einstellung des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Gleichgewichts aufbewahrt. Anschließend wird  $^{90}\text{Y}$  allein gemessen in einem Energiebereich, der von  $^{85}\text{Sr}$ -Beiträgen frei ist, z.B. 350 bis 1000 keV, gemessen, oder:
2. Keinen  $^{85}\text{Sr}$ -Tracer zur eigentlichen Probe sondern lediglich zu einer Blindprobe aus dem gleichen Material gibt, die man zusammen mit den echten Proben behandelt und analysiert. Die  $^{85}\text{Sr}$ -Ausbeute wird durch Gamma-spektrometrie der Blindprobe bestimmt. Unter der Vorausset-



zung ausreichender Wiederholbarkeit des Verfahrens (bei gleichem Probenmaterial sowie gleichzeitiger und gleichartiger Durchführung)

wird diese  $^{85}\text{Sr}$ -Ausbeute der Blindprobe für die anderen echten Proben angenommen.

Die o. g. Ausführungen sind selbstverständlich nur bei Routineproben geringer  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätskonzentration wichtig. Wenn im Messvial die Aktivitäten des  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$  die dem  $^{85}\text{Sr}$  gleichen oder es überschreiten, sind die Störungen vernachlässigbar.

### Richtigkeit bei unterschiedlichen $^{89}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätsverhältnissen

Die Richtigkeit der Auswertung kann dann mit Hilfe von zusammengestellten Mischnuklidstandards (z. B.  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$ ) geprüft werden. Hier ist es

wichtig, unterschiedliche Aktivitätsverhältnisse des  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$  zu prüfen, und die Nachweisgrenze des  $^{90}\text{Sr}$  bei verschiedenen  $^{89}\text{Sr}$ -Aktivitätszugaben zu bestimmen. Im Allgemeinen nimmt die Unsicherheit der Bestimmung des  $^{90}\text{Sr}$  (das dosisrelevantere Nuklid) mit dem Anteil an  $^{89}\text{Sr}$  zu. Diese Zusammenhänge werden durch die Messbedingungen beeinflusst und müssen vom Anwender untersucht werden. Als Anhaltspunkt zeigt die [Tabelle 3.1](#) einige Ergebnisse der Aktivitätsbestimmungen von Szintillatorcocktails mit unterschiedlichen  $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivitätsmischungen. Um die Bedeutung der Festlegung der Energiefenster zu verdeutlichen, werden in der [Tabelle 3.3](#) die Auswertungsergebnisse bei zwei unterschiedlichen Energiefenstereinstellungen gezeigt.

Tabelle 3.3

Auswertungen<sup>1)</sup> der LSC-Spektren von Szintillatorcocktails mit unterschiedlichen  $^{89}\text{Sr}/^{90}\text{Sr}$ -Aktivitätsmischungen bei zwei verschiedenen Einstellungen der Energiebereiche

$A(^{89}\text{Sr}) / A(^{90}\text{Sr})$ im Szintillatorcocktail (alle Angaben in Bq)		
Sollwerte	LSC-Spektrum	
	Energie-Einstellungen 1 A: 30 bis 220 keV B: 220 bis 670 keV C: 670 bis 1040 keV	Energie-Einstellungen 2 A: 10 bis 155 keV B: 155 bis 560 keV C: 560 bis 990 keV
20,0 / 50,0	18,7 / 47,8	23,4 / 45,5
21,8 / 18,4	23,0 / 17,8	23,2 / 17,6
20,0 / 8,0	22,1 / 6,8	21,6 / 6,9
20,0 / 4,0	21,7 / 2,7	20,7 / 3,1
20,0 / 2,0	21,8 / 1,2	20,8 / 1,6
20,0 / 1,0	21,8 / 0,6	19,8 / 0,9
20,0 / 0,8	21,0 / 0,7	20,1 / 0,8
20,0 / 0,7	22,1 / 0,1	20,8 / 0,5
20,0 / 0,5	19,6 / < 0,05	18,5 / 0,3

<sup>1)</sup> Auswertungsverfahren des MRI, Kiel. Messbedingungen: LSC-Gerät: PackardTriCarb 3170 TR. Szintillatorcocktail wie in Abbildung 2 beschrieben. Cocktails waren  $^{85}\text{Sr}$ -frei.  $^{90}\text{Sr}$  im Gleichgewicht mit  $^{90}\text{Y}$ . Messzeit 16 Stunden

### Zusammenfassung

Die LSC-Spektrometrie ermöglicht die gleichzeitige Bestimmung von mehreren Nukliden, z. B.  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$  unabhängig vom Zustand des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Gleichgewichtes. Sogar  $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$  können im Prinzip in einem Messpräparat gleichzeitig bestimmt werden [20]. Im dem Fall entfallen die Arbeitsschritte zur Bestimmung der chemischen Ausbeute des Strontiums. Diese Aspekte sind im Ereignisfall mit Freisetzung von frischem  $^{89}\text{Sr}$ - und  $^{90}\text{Sr}$ -haltigen Kernspaltmaterial besonders wichtig. Die Einstellung der opti-

malen Messbedingungen (z. B. insbesondere die Einstellung der Energiebereiche) und die Kalibrierung sind jedoch relativ aufwändig und müssen im Voraus durchgeführt werden [20].

Andererseits verringert sich der Kalibrier- und Auswertungsaufwand erheblich, wenn lediglich  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{89}\text{Sr}$  vor dem Nachwachsen signifikanter Aktivitäten des Tochternuklids  $^{90}\text{Y}$  gemessen werden. Diese Voraussetzung ist im Intensivfall, wenn die Proben mit einigen Bq  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{89}\text{Sr}$  kontaminiert sind, sicherlich erfüllbar.

Zum Beispiel: Eine Messprobe mit 1 Bq  $^{90}\text{Sr}$  wurde nach einer Messzeit von 60 Minuten in dem Energiebereich 16 – 155 keV gemäß der in [Tabelle 3.2](#) angegebenen Nachweiswahrscheinlichkeit etwa 2550 Impulse ergeben. Die relative statistische Unsicherheit dieser Impulszahl (2 s) liegt bei 4%. Wenn die Probe ursprünglich  $^{90}\text{Y}$ -frei war, werden in der gleichen Zeit in diesem Energiebereich weniger als 5 Impulse des  $^{90}\text{Y}$  gezählt, d.h. ein praktisch insignifikanter Beitrag zur Gesamtimpulszahl.

Jedoch während der erforderlichen langen Messungen (mindestens einen Tag) von Routineproben wächst signifikante  $^{90}\text{Y}$ -Aktivität nach. In diesem Fall kann durch das Abwarten bis zur Einstellung des  $^{90}\text{Sr}$ -/ $^{90}\text{Y}$ -Gleichgewichtes (mindestens 16 Tage) der Auswertungsaufwand minimiert werden.

Daher ist die Nutzung der LSC-Technik für die  $^{89}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Sr}$ -Bestimmung im Intensivfall empfehlenswert und ohne großen Rechenaufwand möglich. Die Richtigkeit der Ergebnisse für beide Nuklide ist bis zu einem  $^{89/90}\text{Sr}$ -Aktivitätsverhältnis von etwa 25 ausreichend (siehe [Tabelle 3.3](#)). Ausschlaggebend für die Richtigkeit ist die sorgfältige Festlegung der Grenzen der Energiebereiche und die Kalibrierung. Die Energiegrenzen sind vom Detektor, Szintillationscocktail und Quench abhängig und müssen für jedes Messsystem einzeln festgestellt werden. Die Technik hat im Intensivfall große Vorteile gegenüber der konventionellen PZR-Messtechnik in Hinsicht auf die Gesamtanalysezeit.

Bei der  $^{90}\text{Sr}$ -Bestimmung im Routinefall ist die LSC-Technik ebenfalls nützlich. In diesem Fall jedoch gibt es keine Vorteile gegenüber der Messung mit PZR-Technik.