

**Verfahren zur Bestimmung  
von Strontium-89 und Strontium-90  
in Oberflächenwasser  
im Normalfall**

C-Sr-89/Sr-90-OWASS-01

Bearbeiter:  
H. Mundschenk

Leitstelle für Oberflächenwasser, Schwebstoff  
und Sediment in Binnengewässern

# 8 Verfahren zur Bestimmung von Strontium-89 und Strontium-90 in Oberflächenwasser im Normalfall

## 1 Anwendbarkeit

Mit dem angegebenen Verfahren können die beiden Strontiumisotope Sr-89 und Sr-90 in Oberflächenwasser im Normalfall bestimmt werden. Zur Erhöhung der Empfindlichkeit der Methode wird eine Anreicherung beider Nuklide aus Probenvolumina von 50 Litern vor der eigentlichen Bestimmung vorgenommen. Bei Meßzeiten von 100 Minuten pro Probe können hiermit noch Gehalte von 0,1 (Sr-90) bzw. 1 (Sr-89)  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  gemessen werden.

Mit diesem Verfahren können die langfristigen Belastungen eines Gewässers mit Sr-89 und Sr-90 empfindlich erfaßt und die Auswirkungen der verschiedenen Quellen im Nah- und Fernbereich der Emittenten aufgezeigt werden (1).

## 2 Probeentnahme

Die Probeentnahme ist unter Verfahren C- $\gamma$ -SPEKT-OWASS-01 beschrieben.

## 3 Analytik

### 3.1 Prinzip der Methode

Die Bestimmung der beiden Strontiumisotope Sr-89 und Sr-90 in Oberflächenwasser bei Gehalten von 0,1 bis 100  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  verläuft in zwei Schritten:

#### 3.1.1 Anreicherung

Anreicherung von Sr-89 und Sr-90 aus Probenvolumina von 50 Litern durch Mitfällung an Strontiumhydrogenphosphat unter Verwendung von bentonitischen Flockungshilfsmitteln und anschließender Säureelution (2).

Alternativ kann die Flußwasserprobe mittels Rotationsverdampfer o.ä. konzentriert und der Rückstand in Säure aufgenommen werden.

#### 3.1.2 Radiochemische Trennung

Spalt- und Aktivierungsprodukte werden durch wiederholte Fällung der Erdalkalinitrate in hochkonzentrierter Salpetersäure in der Kälte ( $< 0^\circ\text{C}$ ) abgetrennt («Nitratmethode»). Ba-140 und etwaige Anteile von Ra-226 und Ra-228, die bei diesem Trennungsschritt Sr-89 und Sr-90 begleiten, werden über eine Chromatfällung abgetrennt. Reste von nachgebildetem Y-90 werden durch eine Yttriumhydroxid-Scavenger-Fällung entfernt.

Nach Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen Sr-90/Y-90 (ca. 14 Tage) wird die Probe als Strontiumcarbonat zum Zeitpunkt  $t_p$  in einem Proportionalzähler gemessen. Anschließend wird die Meßprobe in Säure gelöst und das nachgebildete Y-90

an einem mit Bis-(2-ethylhexyl)-phosphat (HDEHP) imprägnierten Filterboden aus schwach saurer Lösung extrahiert, mit konzentrierter Salzsäure eluiert, als Yttriumoxalatgefällt und zum Zeitpunkt  $t_Y$  gemessen. Aus der auf den Zeitpunkt der Abtrennung  $t_M$  bzw. der Bruttomessung  $t_B$  umgerechneten Zählrate  $R_{Y-90}(t_B)$  kann, unter Beachtung des Grads der Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen Sr-90 und Y-90, die entsprechende Zählrate des Mutternuklides  $R_{Sr-90}$  berechnet werden (2).

Der auf Sr-89 zurückgehende Anteil  $R_{Sr-89}$  wird erhalten, indem man von der zum Zeitpunkt  $t_B$  erhaltenen Bruttoaktivität  $R_b$  die nun bekannten Anteile  $R_{Sr-90}$ ,  $R_{Y-90}(t_B)$  und  $R_o$  abzieht.  $R_{Sr-90}$  wird unter Zugrundelegung der bekannten Zählausbeute  $\epsilon_{Sr-89}$  in die gesuchte Aktivität  $A_{Sr-89}$  (Bq) bzw. Aktivitätskonzentration  $c_{Sr-89}$  ( $Bq \cdot l^{-1}$ ) umgerechnet. In gleicher Weise kann die entsprechende Aktivitätskonzentration  $c_{Sr-90}$  ( $Bq \cdot l^{-1}$ ) erhalten werden. Zur Berechnung der einzelnen Aktivitätsanteile sind die Zeitpunkte der Abtrennung von Y-90 bei der letzten Yttriumhydroxid-Scavenger-Fällung  $t_F$ , der Bruttomessung  $t_B$ , der Abtrennung Y-90 am HDEHP-Filterboden  $t_M$  sowie der Messung(en) von Y-90  $t_Y$  zu notieren und bei der Ermittlung der einzelnen Aufbaufaktoren und Korrektur des radioaktiven Zerfalls zu berücksichtigen.

## 3.2 Probenvorbereitung

Die entnommene (Stichprobe) bzw. gesammelte (Mischprobe) Wasserprobe wird ohne jegliche Vorbehandlung unfiltriert zur weiteren Verarbeitung eingesetzt.

## 3.3 Radiochemische Trennungen

### 3.3.1 Anreicherung durch Fällung nach dem Bentonit-Verfahren (2)

Bei der Anreicherung von Sr-89 und Sr-90 nach dem Bentonit-Verfahren wird im folgenden von einem Probenvolumen von  $V = 50$  Liter ausgegangen. Wird ein kleineres bzw. größeres Probenvolumen und damit verminderte bzw. erhöhte Empfindlichkeit des Nuklidnachweises zugrundegelegt, ist der folgende Ansatz entsprechend anzupassen. Hierbei wird wie folgt vorgegangen:

**3.3.1.1** In einem Kunststoffbehälter (60l) wird ein Teil der unbehandelten und unfiltrierten Probe von ca. 15l eingefüllt, anschließend 10 ml Strontiumchlorid-Lösung ( $100 \text{ mg Sr}^{2+}$ ) zugesetzt, der Rest der Probe von ca. 35l hinzugefügt und ca. 15 Minuten gerührt.

#### Anmerkung (a)

Soll die chemische Ausbeute  $\eta_{Sr}$  mit Hilfe von Sr-85 bestimmt werden, ist zusätzlich eine exakt dosierte Menge dieses Tracers zuzusetzen. Hierbei sind jedoch zwei  $\gamma$ -spektrometrische Messungen des  $\gamma$ -Strahlers Sr-85 ( $E_\gamma = 514,01 \text{ keV}$ ;  $t_{Sr-85} = 64,849 \text{ d}$ ) durchzuführen. Zudem ist bei der Ermittlung der Bruttoaktivität  $R_b$  bei  $t_B$  der auf dieses Nuklid zurückgehende Anteil  $R_{Sr-85}$  zu berücksichtigen; hierbei wird die Kenntnis der  $\beta$ -Zählausbeute  $\epsilon_{Sr-85}$  von Sr-85 vorausgesetzt. Auf die Möglichkeit der Beeinträchtigung der Bestimmung von Sr-85 anhand der  $\gamma$ -Linie bei 514,01 keV durch die stets vorhandene Linie bei 511,0 keV wird hingewiesen.

#### Anmerkung (b)

Die Gehalte an stabilem Strontium ( $Sr^{2+}$ ) in typischen Binnengewässern liegen bei 0,02 bis  $0,05 \text{ mg} \cdot l^{-1}$  (5). Sie sind somit gegenüber dem Trägerzusatz von  $2 \text{ mg} \cdot l^{-1}$  i. a. zu vernachlässigen.

**3.3.1.2** Daraufhin werden 60 g di-Natriumhydrogenphosphat ( $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ), in wenig dest. Wasser gelöst, der Probe unter Rühren zugegeben.

**3.3.1.3** Nun werden 400 ml Flygtol A-Lösung (aktivierter Montmorillonit), dann 100 bis 150 ml konzentrierte Ammoniak-Lösung ( $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) bis zur alkalischen Reaktion (pH-Wert  $> 8$ ) zugegeben und 30 Minuten gerührt.

**3.3.1.4** Anschließend werden 300 ml Kerafloc-Lösung (Polyelektrolyt) zugefügt, 3 Minuten gerührt und den Niederschlag mindestens 1 Stunde absetzen lassen.

#### **Anmerkung**

Bei dieser Fällung werden Sr-89 und Sr-90 zu ca. 90 % abgetrennt bzw. ausgefällt (6).

**3.3.1.5** Nach dem Absetzen des Niederschlages wird der Überstand abgehebert bzw. abgesaugt und verworfen. Der Niederschlag wird in einen Zentrifugenbehälter (1000 ml) überführt, 30 Minuten bei 3000 Umdrehungen pro Minute zentrifugiert und der Überstand anschließend dekantiert und wiederum verworfen.

#### **Anmerkung**

Soll nach einer gammaspektrometrischen Einzelnuklidbestimmung auch eine Bestimmung der beiden Strontiumisotope vorgenommen werden, so kann der nach Abschnitt 3.3.1.12 der Meßanleitung C- $\gamma$ -SPEKT-OWASS-01 anfallende Rückstand wie folgt weiter verarbeitet werden.

**3.3.1.6** Der Rückstand wird nun mit 100 ml konzentrierter Salzsäure ( $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) in einem Zentrifugenbehälter (1000 ml) unter Rühren eluiert. Das Eluat wird durch Zentrifugieren abgetrennt und in ein 1000 ml Becherglas überführt.

**3.3.1.7** Die Elution mit 100 ml konzentrierter Salzsäure ( $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) wird wiederholt und erneut zentrifugiert.

**3.3.1.8** Schließlich wird mit 100 ml Salzsäure ( $2 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) eluiert und wiederum zentrifugiert. Die einzelnen Eluate von Schritt 3.3.1.6 bis 3.3.1.8 werden vereinigt.

**3.3.1.9** Die vereinigten Eluate werden nun mit konzentrierter Ammoniak-Lösung ( $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) auf den pH-Wert von 1 eingestellt.

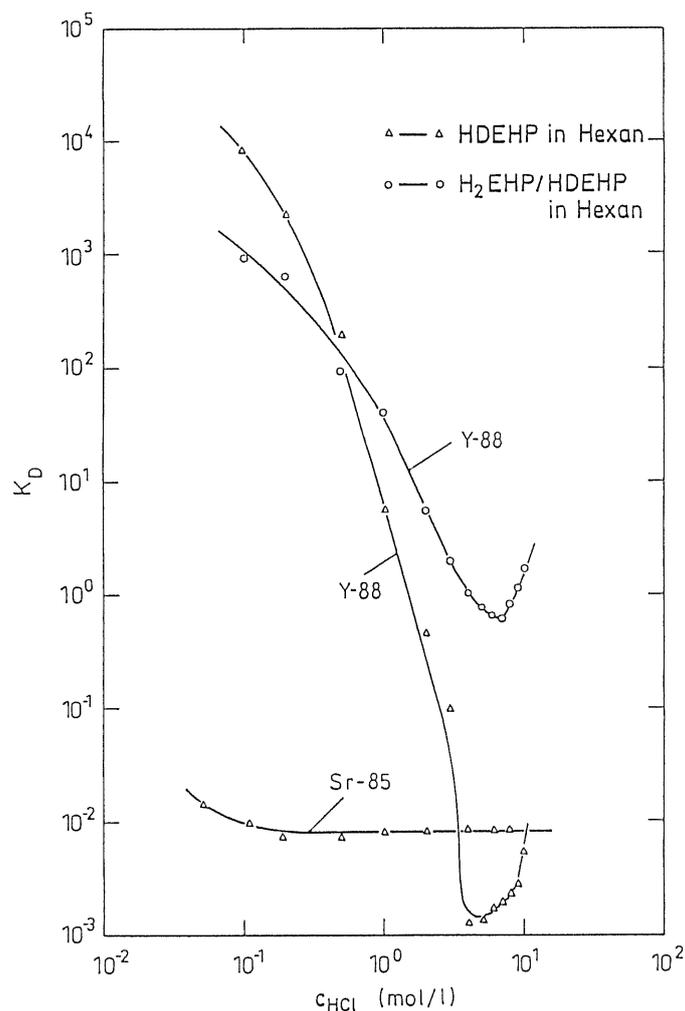
**3.3.1.10** Durch Zugabe von gesättigter Natriumcarbonat-Lösung im Überschuß werden nun die Erdalkalicarbonate gefällt. Der Niederschlag wird 15 Minuten bei 3000 Umdrehungen pro Minute abzentrifugiert und der Überstand verworfen. Der Niederschlag wird nun, wie unter Abschnitt 3.3.3 beschrieben, weiter verarbeitet.

#### **Anmerkung**

Eine Konzentrierung der beiden Strontiumisotope mittels Rotationsverdampfer oder Eindampfsammler ist ebenfalls möglich. Hierzu ist bei Proben von 50 Litern jedoch ein erheblicher Aufwand an Zeit und Energie erforderlich (6).

### **3.3.2 Abtrennung von Y-90 an mit HDEHP imprägnierten Filterböden**

Die Abtrennung von Y-90 an mit HDEHP imprägnierten Filterböden ist der Extraktion im Flüssig/Flüssig-Zweiphasensystem (Salzsäure ( $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ )/HDEHP in Petrolether) insoweit überlegen, als bereits bei Kontaktzeiten von weniger als einer Sekunde hohe Abscheidungsquoten erzielt werden. Vorteilhaft ist weiterhin, daß der Filterboden mehrfach verwendet werden kann und das einmal imprägnierte Filterbodenmaterial in fester Form nahezu unbegrenzt lagerfähig ist (2, 4).



**Abb. 1:** Verteilungskoeffizienten  $K_D$  von Y-88 und Sr-85 im Zweiphasensystem Salzsäure/HDEHP bzw.  $H_2DEHP$  in Abhängigkeit von der Säurekonzentration  $c_{HCl}$  (2)

Das Extraktionsverhalten von Strontium und Yttrium im Zweiphasensystem Salzsäure/HDEHP kann einer Auftragung der Verteilungskoeffizienten  $K_D$  im Konzentrationsbereich von  $0,1$  bis  $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$  Abbildung 1 entnommen werden. Die Messungen wurden unter Verwendung der beiden Radioisotope Sr-85 und Y-88 als Tracer durchgeführt (2).

Hieraus kann entnommen werden, daß die höchsten Trennfaktoren von ca.  $10^6$  und damit die günstigsten Trennbedingungen für Strontium/Yttrium bei einer Säurekonzentration von  $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$  zu erwarten sind.

Zur Präparation des HDEHP-Filterbodenmaterials werden 3 Gewichtsteile Voltalef 300 (Polyfluorchlorethylen) mit 1 Gewichtsteil HDEHP (in Aceton gelöst) unter kräftigem Rühren in einer Porzellanschale versetzt und im Abzug an der Luft getrocknet. Anstelle von Voltalef 300 kann auch das chemisch identische Produkt Voltalef 302 verwendet werden, das jedoch zuvor in einer Kugelmühle auf die für Filterböden geeignete Korngröße zerkleinert werden muß. Weitergehende Hinweise können von der Bundesanstalt für Gewässerkunde in Erfahrung gebracht werden.

Zur Herstellung des eigentlichen Filterbodens wird das derart imprägnierte Filterbodenmaterial in dest. Wasser aufgeschlämmt und auf einer Hahn'schen Nutsche über Glasfaserfilter abgesaugt. Die optimale Flächenbelegung liegt bei  $1$  bis  $1,5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-2}$ . Um

Verluste beim Durchsaugen der eigentlichen Lösungen infolge Aufwirbelung zu vermeiden, wird der Filterboden mit einem Glasfaserfilter abgedeckt. Auf dichte Packung des Filterbodenmaterials ist zu achten. Zur Abtrennung von Y-90 von Sr-90 wird die schwach salzsaure Lösung (pH-Wert 1,5) mit maximaler Sauggeschwindigkeit durch den Filterboden hindurchgesaugt. Die unter praxisnahen Bedingungen erreichbaren Extraktionsausbeuten liegen über 90 %. Ein Filterboden kann nach der Extraktion des Y-90 mit konzentrierter Salzsäure ( $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) und Auswaschen mit verdünnter Salzsäure ( $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) erneut verwendet werden (2).

#### **Anmerkung**

In handelsüblichen Produkten von HDEHP sind bisweilen erhebliche Anteile von Mono-(2-ethylhexyl)-phosphat ( $\text{H}_2\text{DEHP}$ ) enthalten, die die Abtrennung von Y-90 erheblich stören können. Diese Produkte sind für den vorgesehenen Zweck nicht geeignet.

### **3.3.3 Radiochemischer Trennungsgang (2, 3, 6)**

**3.3.3.1** Der nach Schritt 3.3.1.10 erhaltene Rückstand wird in 20 bis 30 ml Salpetersäure ( $4 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gelöst. Die Lösung wird anschließend in einem Kühlthermostat auf  $< 0^\circ\text{C}$  abgekühlt.

**3.3.3.2** Zu dieser Lösung werden 100 ml auf  $< 0^\circ\text{C}$  gekühlte rauchende Salpetersäure ( $24 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) unter Rühren hinzugegeben. Abzug benutzen!

#### **Anmerkung**

Rauchende Salpetersäure reagiert heftig mit leicht oxidierbaren Stoffen (Ethanol, Terpentin, Holzwolle, Zellstoff u. a.) und wirkt stark ätzend auf Haut, Atemwege und Schleimhäute. Auf die diesbezüglichen Bestimmungen der Gefahrstoffverordnung wird hingewiesen.

**3.3.3.3** Die ausgefällten Erdalkalinitrate werden nun in einer Kühlzentrifuge 15 Minuten bei 3000 Umdrehungen pro Minute in 250 ml-Behältern aus Teflon abzentrifugiert. Der Überstand wird dekantiert und verworfen.

**3.3.3.4** Der Rückstand wird in 10 ml Salpetersäure ( $1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gelöst und die Lösung wiederum im Kühlthermostat auf  $< 0^\circ\text{C}$  abgekühlt.

**3.3.3.5** Zur auf  $< 0^\circ\text{C}$  abgekühlten Lösung werden erneut 40 ml auf  $< 0^\circ\text{C}$  vorgekühlte rauchende Salpetersäure ( $24 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) zugesetzt und mit einem Glasstab umgerührt. Der Niederschlag wird wiederum abzentrifugiert und der Überstand verworfen.

#### **Anmerkung**

Liegen in der Probe weitere Spalt- und Aktivierungsprodukte vor, müssen an dieser Stelle (Nitratfällung) entsprechende Rückhalteträger (10 mg Träger pro Nuklid) zur Verbesserung der Trennwirkung zugegeben werden.

**3.3.3.6** Die Schritte 3.3.3.4 und 3.3.3.5 sind viermal zu wiederholen.

#### **Anmerkung**

Bei einer fünfmaligen sukzessiven Fällung der Erdalkalinitrate kann Strontium (und Barium) selbst von einem 100fachen Überschuß an Calcium mit einer chemischen Ausbeute von 80 bis 90 % abgetrennt werden (6). Der Calcium-Anteil im Strontiumnitrat-Niederschlag liegt bei sorgfältiger Ausführung bei maximal 3 %. Barium, Radium und Blei begleiten Strontium bei der Nitratfällung. Die chemischen Ausbeuten für Barium liegen ebenfalls bei 80–90 %. Alle anderen Spalt- und Aktivierungsprodukte werden, ebenso wie das Tochternuklid Y-90, praktisch quantitativ abgetrennt. Die

Trennwirkung kann erfahrungsgemäß durch Trägerung der abzutrennenden Nuklide bei den ersten beiden Nitratfällungen erhöht werden.

**3.3.3.7** Nach den Nitratfällungen werden die Erdalkalinitrate in 20 ml dest. Wasser gelöst.

**3.3.3.8** Zur wäßrigen Lösung der Erdalkalinitrate werden nun die folgenden Zusätze zugegeben:

- 5 ml Bariumchlorid-Lösung (50 mg Ba<sup>2+</sup>)
- 1 ml Essigsäure (6 mol · l<sup>-1</sup>)
- 2 ml Ammoniumacetat-Lösung (6 mol · l<sup>-1</sup>)

**3.3.3.9** Mit Salzsäure (1 mol · l<sup>-1</sup>) bzw. Ammoniak-Lösung (1 mol · l<sup>-1</sup>) wird der pH-Wert der Lösung mit Hilfe eines pH-Meters auf 5,5 eingestellt.

**3.3.3.10** Die Lösung wird anschließend auf einer Heizplatte auf 95 °C erhitzt und 1 bis 2 ml Natriumchromat-Lösung (0,3 mol · l<sup>-1</sup>) tropfenweise hinzugefügt. Nach dem Absetzen des Bariumchromat-Niederschlag ist die Vollständigkeit der Fällung durch Zugabe von einigen Tropfen Na<sub>2</sub>CrO<sub>4</sub>-Lösung (0,3 mol · l<sup>-1</sup>) zu überprüfen: Die überstehende Lösung muß leicht gelb gefärbt sein.

**3.3.3.11** Nach dem Abkühlen der Lösung wird der Niederschlag (Ba-140 u. a.) über Blaubandfilter abfiltriert und das Filtrat mit Sr-89 und Sr-90 in ein 400 ml-Becherglas überführt. Der Bariumchromat-Niederschlag wird verworfen.

#### **Anmerkung**

Bei der Bariumchromat-Fällung ist der pH-Wert exakt einzuhalten. In stärker saurer Lösung fällt Barium unvollständig, in stärkerer alkalischer Lösung fällt Strontium mit aus. Der Anteil Ba-140, der Sr-89/Sr-90 begleitet, liegt bei sorgfältiger Arbeitsweise bei maximal 3 %. Der Anteil Sr-89/Sr-90, der mit Bariumchromat ausfällt, schwankt zwischen 5 und 10 %. Bei stark erhöhten Ba-140-Gehalten in der Probe, empfiehlt es sich, die Bariumchromat-Fällung im Filtrat nach Schritt 3.3.3.11 zu wiederholen.

**3.3.3.12** Zur chromhaltigen Lösung von Sr-89 und Sr-90 wird Hydraziniumhydroxid tropfenweise zur Reduktion von Cr<sup>6+</sup> und Cr<sup>3+</sup> zugesetzt und erwärmt.

#### **Anmerkung**

Ist hinreichend bekannt, daß in der Probe Ba-140 und andere störende Nuklide (z. B. Ra-228) nicht vorliegen, können die Schritte 3.3.3.8 bis 3.3.3.12 entfallen. In diesem Fall kann, wie folgt, weiter vorgegangen werden:

**3.3.3.13** Zur Lösung von Sr-89 und Sr-90 werden anschließend 10 ml Yttriumchlorid-Lösung (100 mg Y<sup>3+</sup>) zugesetzt und gut vermischt. Durch tropfenweise Zugabe von konzentrierter Ammoniak-Lösung (18 mol · l<sup>-1</sup>) bis zur alkalischen Reaktion (pH-Wert > 8,5) wird Yttriumhydroxid ausgefällt. Die Suspension wird in einen Zentrifugenbehälter (250 ml) überführt und 5 Minuten bei 3000 Umdrehungen pro Minute zentrifugiert. Der Zeitpunkt der Phasentrennung t<sub>F</sub> ist zu notieren. Der Überstand mit Sr-90 und Sr-89 wird dekantiert und der Rückstand (Yttriumhydroxid und ggfs. Chromhydroxid) verworfen.

**3.3.3.14** Die Lösung mit Sr-89/Sr-90 wird nun in einem Becherglas (400 ml) bis zur Siedehitze erhitzt und durch Zugabe von Ammoniumcarbonat-Lösung im Überschuß Strontiumcarbonat ausgefällt.

**3.3.3.15** Nach dem Abkühlen wird der Strontiumcarbonat-Niederschlag auf einem vorgewogenen Membranfilter (Porenweite:  $0,45\ \mu\text{m}$ ) abfiltriert, 1 Stunde bei  $105^\circ\text{C}$  getrocknet und anschließend zur Bestimmung der chemischen Ausbeute  $\eta_{\text{Sr}}$  gewogen ( $m_{\text{Sr}}^g$ ).

**Anmerkung**

Ist eine Bestimmung der radiochemischen Ausbeute  $\eta_{\text{Sr}}$  mit Hilfe von Sr-85 vorgesehen, so ist die nach Schritt 3.3.3.15 erhaltene Meßprobe  $\gamma$ -spektrometrisch auszumessen. Die gesuchte Ausbeute  $\eta_{\text{Sr}}$  wird aus der gemessenen Zählrate  $R_{\text{Sr-85}}$  und der an einer entsprechenden Standardprobe erhaltenen Zählrate  $R_{\text{Sr-85}}(\text{St})$  für die gleichen Meßbedingungen ermittelt. Bei der Bestimmung von  $\eta_{\text{Sr}}$  mit Sr-85 ist jedoch die relativ hohe  $\beta$ -Zählausbeute des  $\gamma$ -Strahlers Sr-85 bei der folgenden Summenaktivitätsmessung bei  $t_{\text{B}}$  von  $\varepsilon_{\text{Sr-85}} = 0,05$  bis  $0,10$  zu beachten. Bei hoher Dosierung von Sr-85 zur Verkürzung der Meßzeit wird hierdurch die Erkennungsgrenze für Sr-90 merklich angehoben. Hier kann die gravimetrische Bestimmung von  $\eta_{\text{Sr}}$  von Vorteil sein. Auf eine potentielle Störung bei der  $\gamma$ -spektrometrischen Bestimmung von Sr-85 bei  $514,01\ \text{keV}$  durch die stets vorhandene Linie bei  $511\ \text{keV}$  wird hingewiesen.

**3.3.3.16** Das nach Schritt 3.3.3.15 erhaltene Strontiumcarbonat-Präparat wird zur Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes zwischen Sr-90 und Y-90 ca. 14 Tage stehen lassen. Hierbei wird die Summenaktivität der Probe  $R_{\text{b}}$  zum Zeitpunkt  $t_{\text{B}}$  ermittelt. Der Grad der Gleichgewichtseinstellung kann über den Aufbaufaktor  $f_2$  exakt angegeben werden. Nach der Messung wird die Probe bei  $450^\circ\text{C}$  verascht.

**Anmerkung**

Ist hinreichend bekannt, daß in der Probe kein Sr-89 vorliegt, so kann die Bestimmung der Summenaktivität  $R_{\text{b}}$  entfallen. In diesem Fall kann wie folgt, weiter vorgegangen werden.

**3.3.3.17** Das Strontiumcarbonat-Präparat wird mit insgesamt ca. 30 ml Salzsäure ( $1\ \text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) portionsweise gelöst. Zur salzsauren Lösung werden 10 ml Yttriumchlorid-Lösung ( $100\ \text{mg}\ \text{Y}^{3+}$ ) zugegeben.

**3.3.3.18** Die salzsaure Lösung von Sr-90/Y-90 und ggfs. Sr-89 und Sr-85 wird mit Ammoniak-Lösung ( $1\ \text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) auf den pH-Wert 1,5 eingestellt und anschließend über einen entsprechend präparierten HDEHP-Filterboden gesaugt (Herstellung des Filterbodens: Siehe Abschnitt 3.1.2 dieser Meßanleitung). Zeitpunkt der Extraktion von Y-90 am Filterboden  $t_{\text{M}}$  notieren.

**Anmerkung**

Eine Abtrennung von Y-90 durch Extraktion am HDEHP-Filterboden kann auch bereits nach 5 Tagen nach der Yttriumhydroxid-Scavenger-Fällung ( $t_{\text{F}}$ ) vorgenommen und somit die Wartezeit entsprechend abgekürzt werden. Nach dieser Zeit ist das radioaktive Gleichgewicht zwischen Sr-90 und Y-90 zu ca. 75% erreicht. Dies kann durch den Aufbaufaktor  $f_2$  entsprechend berücksichtigt werden.

**3.3.3.19** Das auf dem HDEHP-Filterboden abgeschiedene Y-90 wird insgesamt fünfmal mit jeweils 10 ml konzentrierter Salzsäure ( $10\ \text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) sukzessive eluiert.

**3.3.3.20** Die vereinigten Eluate werden mit konzentrierter Ammoniak-Lösung ( $18\ \text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) auf den pH-Wert von 1 bis 2 eingestellt, anschließend auf einer Heizplatte auf  $95^\circ\text{C}$  erhitzt und Yttriumhydroxid durch tropfenweise Zugabe von Ammoniak-Lösung bis zur alkalischen Reaktion (pH-Wert  $> 8,5$ ) gefällt. Nach dem Abkühlen wird der Niederschlag abzentrifugiert. Die überstehende Lösung wird dekantiert und verworfen;

der Rückstand Yttriumhydroxid mit Y-90 wird in wenigen ml Eisessig ( $17 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ ) gelöst und die Lösung mit 25 ml dest. Wasser verdünnt.

**3.3.3.21** Die Lösung von Y-90 wird nun auf einer Heizplatte auf  $95^\circ \text{C}$  erhitzt und durch tropfenweise Zugabe von gesättigter Oxalsäurelösung Yttrium als Yttriumoxalat bei einem pH-Wert von 2 bis 3 gefällt.

**3.3.3.22** Nach dem Abkühlen wird der Niederschlag auf Blaubandfilter abfiltriert, mit wenig dest. Wasser nachgewaschen und anschließend im Trockenschrank bei  $105^\circ \text{C}$  1 Stunde getrocknet.

**3.3.3.23** Das auf Blaubandfilter vorliegende Präparat wird in eine Meßschale (Durchmesser: 50 bzw. 60 mm) überführt, mit Tesafolie überklebt und anschließend in einem Proportionalzähler gemessen. Der (Die) Zeitpunkt(e) der Messung(en)  $t_Y$  ist (sind) zu notieren und die Zählrate(n)  $R_{Y-90}(t_Y)$ , nach Abzug einer etwaigen Untergrundzählrate  $R_u$  (Abb. 4), auf den Zeitpunkt der Abtrennung  $t_M$  entsprechend umzurechnen.

#### **Anmerkung**

Bei der Ermittlung von  $R_{Y-90}(t_M)$  ist der Abfall der Y-90-Aktivität über mindestens 5 Tage – entsprechend 2 Halbwertszeiten von Y-90 – auszumessen, um eine etwaige Untergrundzählrate  $R_u$  von langlebigen Störstrahlern (z. B. Sr-90, Ra-226 u. a.) möglichst genau ermitteln zu können. Mit dieser Auswertung kann die Selektivität der Y-90-Bestimmung ganz wesentlich erhöht werden (Abb. 4).

**3.3.3.24** Nach der (den) Messung(en) der Y-90-Aktivität wird das Meßpräparat mit Tesafolie in einem Tiegelofen 2 Stunden bei  $800^\circ \text{C}$  verascht und als  $\text{Y}_2\text{O}_3$  zurückgewogen ( $m_Y^g$ ). Hieraus wird die chemische Ausbeute  $\eta_Y$  bei der Abtrennung von Y-90 am HDEHP-Filterboden ermittelt.

## **4 Messung der Aktivität**

Zur Bestimmung der beiden Strontiumisotope wird eine gut abgeschirmte, kalibrierte  $\beta$ -Meßanordnung benötigt. Meßeinrichtungen mit automatischem Probenwechsler oder Simultanmeßbetrieb in Verbindung mit einer rechnergestützten Meßwertverarbeitung sind von Vorteil. Hierbei weisen mit Argon/Methan betriebene Proportionalzähler gegenüber Geiger-Müller-Zählrohren Vorteile dadurch auf, daß höhere Zählraten koinzidenzfrei gemessen werden können.

Zur Überprüfung der Langzeitkonstanz der Meßeinrichtung und der Zählausbeuten sind in angemessenen Zeitabständen Kontrollmessungen mit Sr-90-Standardproben vorzunehmen. Eine fortlaufende Überprüfung des Nulleffektes ist erforderlich, um etwaige Kontaminationen oder sonstige Beeinträchtigungen rechtzeitig erkennen zu können. Weitere Hinweise können Kapitel V. dieser Meßanleitungen entnommen werden.

### **4.1 Kalibrierung der Meßanordnung**

Die Kalibrierung der Meßanordnung erfolgt mit Meßpräparaten bekannter spezifischer Aktivität unter den gleichen Meßbedingungen, wie die Messung der eigentlichen Proben. Die Meßpräparate werden aus Lösungen von Sr-90 und Sr-89 bekannter Aktivitätskonzentration, die von der Phys.-Tech. Bundesanstalt, Braunschweig, bezogen werden können, hergestellt.

Sr-89 wird mit Strontiumcarbonat ausgefällt und gemessen. Sr-90 wird, nach Abtrennung des Y-90 an einem HDEHP-Filterboden, ebenfalls mit Strontiumcarbonat ausgefällt und gemessen. Der Anstieg des nachwachsenden Tochternuklids Y-90 wird auf den Zeitpunkt der Abtrennung  $t_M$  extrapoliert und somit die Zählrate  $R_{Sr-90}$  des reinen Sr-90 erhalten. Das am HDEHP-Filterboden abgeschiedene Y-90 wird mit konzentrierter Salzsäure eluiert, als Yttriumoxalat gefällt und gemessen. Die Zählrate  $R_{Y-90}$  wird wiederum auf den Zeitpunkt der Abtrennung  $t_M$  bezogen. Die zum Zeitpunkt der Messung bzw. der Abtrennung vorliegende spezifische Aktivität der Proben kann aus den zertifizierten Angaben der Standardlösungen berechnet werden.

Aus den direkt erhaltenen ( $R_{Sr-89}$ ) bzw. auf den Zeitpunkt der Abtrennung extrapolierten ( $R_{Sr-90}$ ,  $R_{Y-90}$ ) Zählraten ( $s^{-1}$ ), der bekannten Aktivitätskonzentration der Standardlösungen  $c_{Sr-89}$  und  $c_{Sr-90}$  ( $Bq \cdot ml^{-1}$ ) sowie dem bei der Herstellung der Meßpräparate eingesetzten Probenvolumen  $V$  (ml) können die  $\beta$ -Zählausbeuten der drei Nuklide  $\varepsilon_{Sr-89}$ ,  $\varepsilon_{Sr-90}$  und  $\varepsilon_{Y-90}$  berechnet werden. Die Vollständigkeit der Abtrennung und Fällung ist durch Auswägen der Standardproben sicherzustellen. Gegebenenfalls erfolgt eine Korrektur über die chemische Ausbeute  $\eta_{Sr}$  und  $\eta_Y$ .

$$\varepsilon_{Sr-89} = \frac{R_{Sr-89}}{c_{Sr-89} \cdot V \cdot \eta_{Sr}} \quad (1)$$

$$\varepsilon_{Sr-90} = \frac{R_{Sr-90}(t_M)}{c_{Sr-90} \cdot V \cdot \eta_{Sr}} \quad (2)$$

$$\varepsilon_{Y-90} = \frac{R_{Y-90}(t_M)}{c_{Y-90} \cdot V \cdot \eta_Y} \quad (3)$$

Die Bestimmung der chemischen Ausbeuten erfolgt durch Wägung der Carbonate (Sr-89, Sr-90) bzw. des Yttriumoxids nach Verglühen des Yttriumoxalat-Niederschlags (Y-90). Aus der vorgegebenen ( $m^v$ ) und der nach der Abtrennung zurückgewogenen Masse ( $m^g$ ) erhält man die chemischen Ausbeuten  $\eta$  zu:

$$\eta_{Sr} = \frac{m_{Sr}^g}{m_{Sr}^v} \quad (4)$$

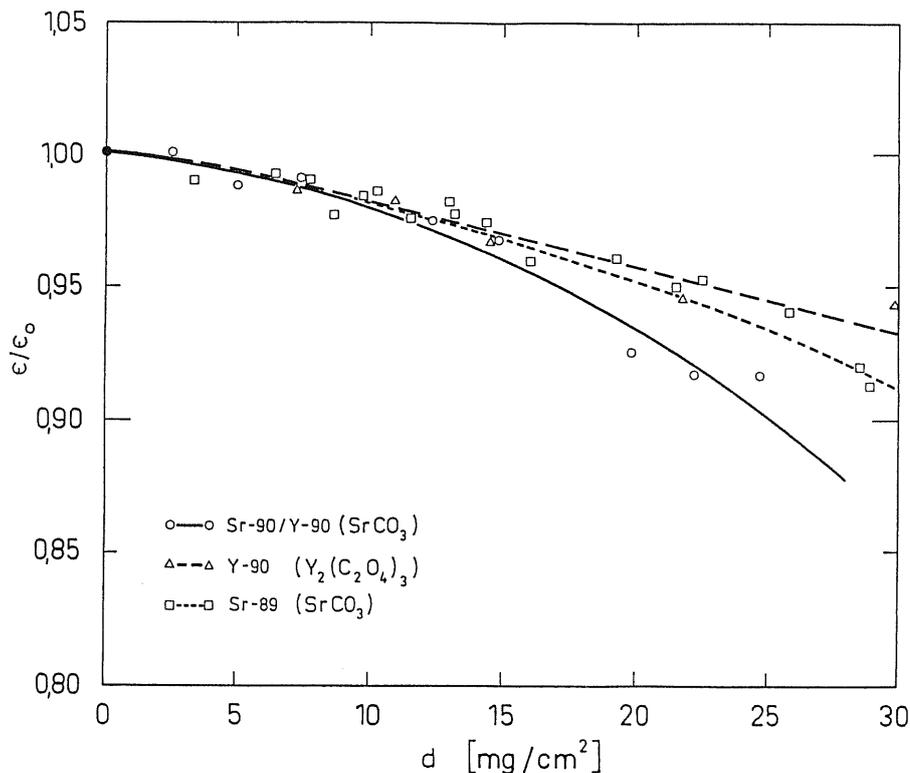
$$\eta_Y = \frac{m_Y^g}{m_Y^v} \quad (5)$$

In gleicher Weise werden bei der eigentlichen Untersuchung von Flußwasserproben die chemischen Ausbeuten bestimmt. Alternativ kann hier eine Bestimmung der chemischen Ausbeute bei der Sr-90-Bestimmung mit Hilfe von Sr-85 durchgeführt werden. Hierbei gilt analog:

$$\eta_{Sr} = \frac{R_{Sr-85}^g}{R_{Sr-85}^v} \quad (6)$$

In diesem Falle sind zwei zusätzliche  $\gamma$ -spektrometrische Messungen durchzuführen.

Wegen der bei Sr-90/Y-90 zu erwartenden Absorption der emittierten  $\beta$ -Teilchen innerhalb des eigentlichen Meßpräparates (Selbstabsorption) sind die Zählausbeuten stets auf eine bestimmte Flächenbelegung  $d$  zu beziehen. Werden die eigentlichen Meßproben bei



**Abb. 2:** Abhängigkeit des Selbstabsorptionsfaktors  $f_s (= \epsilon/\epsilon_0)$  von der Flächenbelegung  $d$  des Meßpräparates

anderen Werten von  $d$  gemessen, als die zur Kalibrierung verwendeten Standardproben, so ist dieser Einfluß durch einen Selbstabsorptionsfaktor  $f_s$  gegebenenfalls zu korrigieren. Solche Bedingungen können auftreten, wenn beispielsweise die chemischen Ausbeuten bei der Aufarbeitung der Proben starken Schwankungen unterliegen.

Zur Veranschaulichung des Einflusses der Selbstabsorption auf die Zählausbeute  $\epsilon$  ist der Selbstabsorptionsfaktor  $f_s (= \epsilon/\epsilon_0)$  für Sr-89, Y-90 sowie Sr-90/Y-90 in Abhängigkeit von der Flächenbelegung des Meßpräparates in Abb. 2 beispielhaft aufgetragen. Hieraus kann entnommen werden, daß i. a. eine Korrektur nur bei extremen Schwankungen von  $d$  erforderlich ist.

## 4.2 Störungen

Bei der Sr-89 Bestimmung sind Beeinträchtigungen dann zu erwarten, wenn bei komplexen Nuklidgemischen Strontiumnitrat bei der Nitratfällung mit unzureichendem Trennfaktor abgetrennt wird und merkliche Anteile von störenden Nukliden Sr-89 bei der Bruttomessung  $t_B$  vortäuschen. In diesem Falle ist die Anzahl der Fällungen entsprechend zu erhöhen. Eine Kontrolle über eine  $\gamma$ -spektrometrische Messung des Meßpräparates ist hier angezeigt.

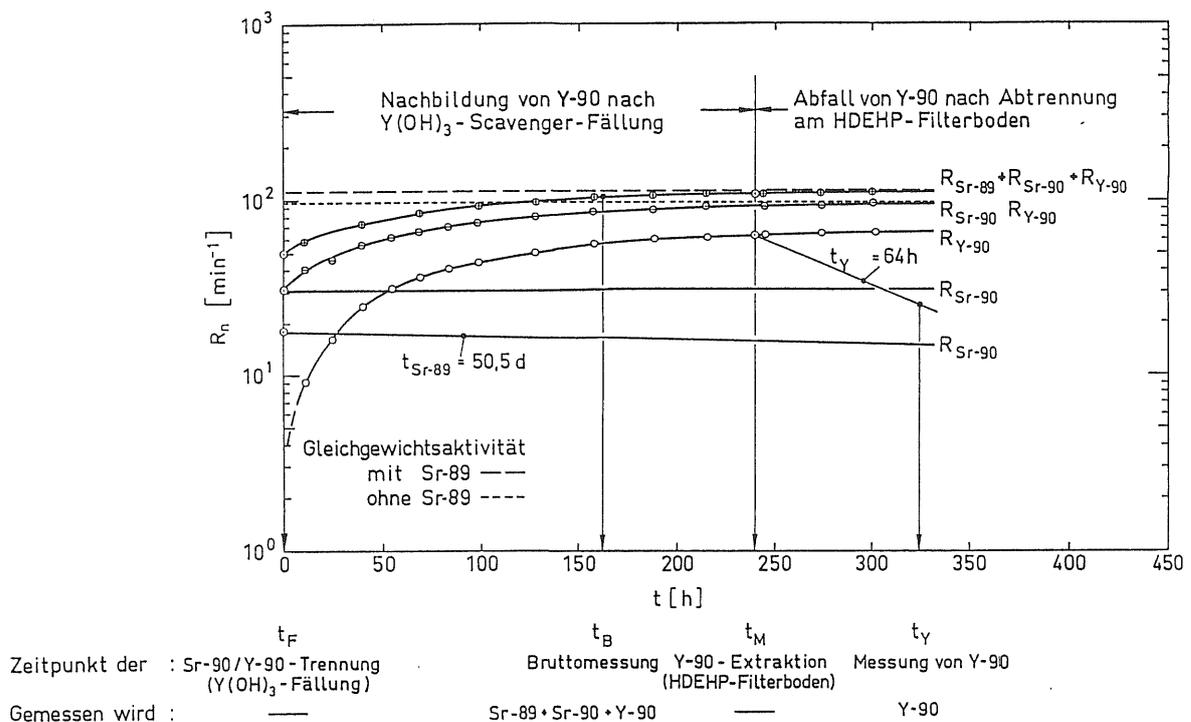
Bei einer Sr-90-Bestimmung können Verfälschungen dann auftreten, wenn Y-90 nach der Abtrennung nur über eine einzige Messung bei  $t_Y$  bestimmt wird und so der Untergrund eines langlebigen Störstrahlers unerkant bleibt. Zur Vermeidung dieser möglichen Störungen empfiehlt es sich, den Abfall von Y-90 über mindestens zwei Halbwertszeiten (ca. 5 Tage) auszumessen (siehe Abb. 4).

Werden die Fällungen von Strontiumnitrat bei Temperaturen oberhalb von  $0^\circ\text{C}$  ausgeführt, muß mit merklichen Verlusten, damit mit niedrigeren chemischen Ausbeuten  $\eta_{\text{Sr}}$  sowie mit kleineren Trennfaktoren gerechnet werden.

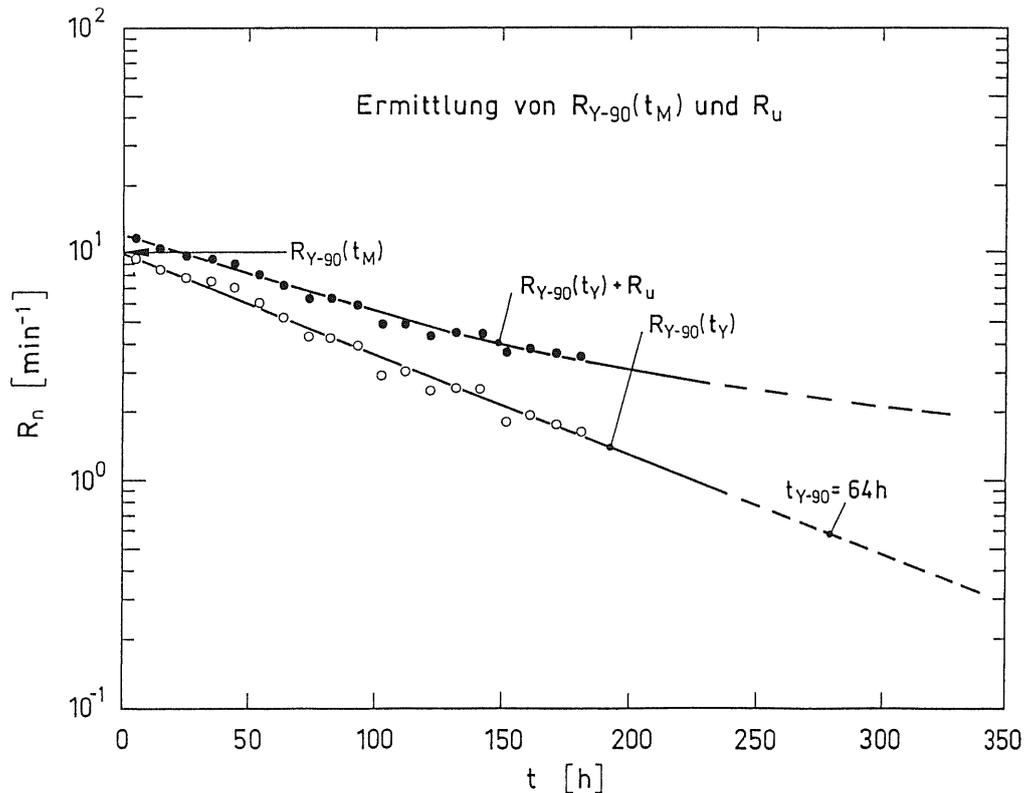
## 5 Berechnung der Analyseergebnisse

Die Abtrennung und Bestimmung der beiden Strontiumisotope Sr-89 und Sr-90 in großvolumigen Wasserproben erfolgen in mehreren Schritten, bei denen verschiedene Messungen und Berechnungen ausgeführt werden müssen: Nach der Anreicherung von Sr-89 und Sr-90 aus 50 Litern Flußwasser nach der Bentonitmethode, Reinigung der Erdalkalifraktion über eine wiederholte Fällung der Nitrats («Nitrat-Methode») wird evtl. vorhandenes Ba-140 über eine Bariumchromatfällung abgetrennt. Anschließend werden Sr-89 und Sr-90 als Strontiumcarbonat ausgefällt. Das Tochternuklid Y-90 läßt man bis zum annähernden radioaktiven Gleichgewicht nachwachsen. Zur indirekten Bestimmung von Sr-89 wird zum Zeitpunkt  $t_{\text{B}}$  eine Messung der Bruttoaktivität  $R_{\text{b}}$  vorgenommen (Abb. 3).

Nach der Messung von  $R_{\text{b}}$  wird der Niederschlag mit Sr-90, Y-90, Sr-89 und ggfs. Sr-85 in Lösung gebracht und hieraus Y-90 zum Zeitpunkt  $t_{\text{M}}$  an einem HDEHP-Filterboden abgetrennt, aufbereitet und fortlaufend bei  $t_{\text{Y}1}, t_{\text{Y}2} \dots t_{\text{Y}}^{\text{max}}$  gemessen. Aus der zum Zeitpunkt  $t_{\text{Y}i}$  gemessenen Y-90-Aktivität  $R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}i})$  kann die zum Zeitpunkt  $t_{\text{M}}$  aus Sr-90 nachgebildete Y-90-Aktivität ermittelt und, unter Berücksichtigung der  $\beta$ -Zählausbeuten der einzelnen Nuklide, die äquivalente Zählrate  $R_{\text{Sr-90}}$  erhalten werden. Aus der Differenz der zum Zeitpunkt  $t_{\text{B}}$  gemessenen Bruttoaktivität  $R_{\text{b}}$  und der Zählraten von Sr-90 und Y-90 erhält man den Anteil von Sr-89 und evtl. Sr-85. Die einzelnen Zählraten



**Abb. 3:** Beispiel für den Verlauf der Zählraten von Sr-90, Sr-89 und Y-90 nach der Yttriumhydroxid-Scavenger-Fällung zum Zeitpunkt  $t_{\text{F}}$ , Extraktion von Y-90 an einem HDEHP-Filterboden zum Zeitpunkt  $t_{\text{M}}$  und einer Bruttomessung zum Zeitpunkt  $t_{\text{B}}$ . Bezugszeitpunkt:  $t_{\text{F}} = 0$



**Abb. 4:** Ermittlung der auf den Zeitpunkt der Abtrennung  $t_M$  extrapolierten Zählrate  $R_{Y-90}(t_M)$  und Abzug einer konstanten Untergrundzählrate  $R_U$  längerlebiger Störstrahler

werden unter Zugrundelegung der jeweiligen Zählausbeuten  $\varepsilon$  und unter Beachtung der Gleichgewichtseinstellung zwischen Sr-90/Y-90 sowie der entsprechenden chemischen Ausbeuten  $\eta$  in die jeweiligen Werte der Aktivitätskonzentration  $c_r$  umgerechnet. Die Nuklidgehalte  $c_r$  sind stets auf den Zeitpunkt der Probeentnahme  $t_p$  zu beziehen.

Hierbei wird im einzelnen wie folgt vorgegangen:

**5.0.1** Nach Abtrennung von Y-90 an einem HDEHP-Filterboden und Fällung als Yttriumoxalat wird die Meßprobe über einen Zeitraum von mind. 5 Tagen bei Meßzeiten von jeweils  $t_m = 100$  Minuten fortlaufend gemessen (Abb. 4). Die mit Zeitmarken fortlaufend ausgegebenen Meßwerte  $R_{Y-90}(t_Y)$  werden entweder auf graphischem Wege oder aber rechnergestützt mit Hilfe eines geeigneten Least-Squares-Fit-Programmes ausgewertet: Abzug eines etwaigen Untergrundes  $R_U$  und Extrapolation der Zählrate auf den Zeitpunkt der Abtrennung am HDEHP-Filterboden. Hierbei gilt:

$$R_{Y-90}(t_M) = R_{Y-90}(t_Y) \cdot e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_Y - t_M)} \quad \text{s}^{-1} \quad (7)$$

mit:

$$\lambda_{Y-90} = 0,0108 \text{ h}^{-1} \text{ und } (t_Y - t_M) \text{ in Stunden}$$

**5.0.2** Der Grad der Gleichgewichtseinstellung zwischen Sr-90/Y-90 zum Zeitpunkt  $t_M$  kann aus dem auf den Zeitpunkt  $t_F$  bezogenen Aufbaufaktor  $f_1$  ermittelt und somit die mit Sr-90 insgesamt in Gleichgewicht stehende Y-90-Aktivität  $R_{Y-90}(t_\infty)$  angegeben werden:

$$R_{Y-90}(t_\infty) = \frac{R_{Y-90}(t_M)}{\eta_Y \cdot [1 - e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_F - t_M)}]} \quad \text{s}^{-1} \quad (8)$$

$$= \frac{R_{Y-90}(t_M)}{\eta_Y \cdot f_1} \quad (8a)$$

mit:

$$f_1 = 1 - e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_F - t_M)}$$

**5.0.3** Aus der mit Sr-90 insgesamt im radioaktiven Gleichgewicht stehenden Zählrate  $R_{Y-90}(t_\infty)$  kann, in Verbindung mit der chemischen Ausbeute der Strontium-Abtrennung  $\eta_{Sr}$ , der Zählausbeute  $\varepsilon_{Y-90}$ , dem Selbstabsorptionsfaktor  $f_S$ , die Aktivitätskonzentration  $c_{Sr-90}$  ( $Bq \cdot l^{-1}$ ) der Probe vom Volumen  $V$  (l) erhalten werden:

$$c_{Sr-90} = \frac{R_{Y-90}(t_\infty)}{\varepsilon_{Y-90} \cdot \eta_{Sr} \cdot f_S \cdot V} \quad Bq \cdot l^{-1} \quad (9)$$

**5.0.4** Die zum Zeitpunkt  $t_F$  vorliegende Zählrate  $R_{Sr-89}(t_F)$  kann aus der zum Zeitpunkt  $t_B$  durchgeführten Messung der Summenaktivität  $R_b(t_B)$  wie folgt berechnet werden:

$$R_{Sr-89}(t_F) = \frac{R_b(t_B) - R_0 - R_{Y-90}(t_B) - R_{Sr-90}}{e^{\lambda_{Sr-89} \cdot (t_F - t_B)}} \quad s^{-1} \quad (10)$$

$R_{Y-90}(t_B)$  errechnet sich wie folgt:

$$R_{Y-90}(t_B) = R_{Y-90}(t_\infty) \cdot [1 - e^{\lambda_{Y-90}(t_F - t_B)}] \quad s^{-1} \quad (11)$$

$$= R_{Y-90}(t_\infty) \cdot f_2 \quad (11a)$$

mit:

$$f_2 = 1 - e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_F - t_B)}$$

$R_{Y-90}(t_\infty)$  erhält man aus Gl. 7 und 8 zu:

$$R_{Y-90}(t_\infty) = R_{Y-90}(t_Y) \frac{e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_Y - t_M)}}{\eta_Y \cdot [1 - e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_F - t_M)}]} \quad s^{-1} \quad (12)$$

$$= R_{Y-90}(t_Y) \cdot f_3 \quad (12a)$$

mit

$$f_3 = \frac{e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_Y - t_M)}}{\eta_Y \cdot [1 - e^{\lambda_{Y-90} \cdot (t_F - t_M)}]}$$

und somit

$$R_{Y-90}(t_B) = R_{Y-90}(t_Y) \cdot f_2 \cdot f_3 \quad s^{-1} \quad (12b)$$

$R_{Sr-90}$  kann wie folgt berechnet werden:

$$R_{Sr-90} = R_{Y-90}(t_\infty) \cdot \frac{\varepsilon_{Sr-90}}{\varepsilon_{Y-90}} \quad s^{-1} \quad (13)$$

$$= R_{Y-90}(t_Y) \cdot f_3 \cdot \frac{\varepsilon_{Sr-90}}{\varepsilon_{Y-90}} = R_{Y-90}(t_Y) \cdot f_3 \cdot f_4 \quad s^{-1} \quad (13a)$$

mit:

$$f_4 = \frac{\varepsilon_{Sr-90}}{\varepsilon_{Y-90}}$$

Hieraus erhält man nun Gl. 10 zu:

$$R_{\text{Sr-90}}(t_F) = \frac{R_b(t_B) - R_o - R_{\text{Y-90}}(t_Y) \cdot (f_2 \cdot f_3 + f_3 \cdot f_4)}{e^{\lambda_{\text{Sr-89}}(t_F - t_B)}} \text{ s}^{-1} \quad (13b)$$

**5.0.5** Die auf den Zeitpunkt  $t_F$  bezogene Aktivitätskonzentration  $c_{\text{Sr-89}}(t_F)$  erhält man zu:

$$c_{\text{Sr-89}}(t_F) = \frac{R_{\text{Sr-89}}(t_F)}{\epsilon_{\text{Sr-89}} \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot f_S \cdot V} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (14)$$

und für den Zeitpunkt der Probeentnahme  $t_P$ :

$$c_{\text{Sr-89}}(t_P) = c_{\text{Sr-89}}(t_F) \cdot e^{\lambda_{\text{Sr-89}}(t_F - t_P)} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (15)$$

Der zählstatistische Fehler bei der Sr-90-Bestimmung wird vor allem durch die bei der Messung von Y-90 auftretende Standardabweichung  $s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)]$  bestimmt. Im Falle einer Einzelnuklidmessung ergibt sich der zählstatistische Fehler von  $R_{\text{Y-90}}(t_Y)$  zu:

$$s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)] = \sqrt{\frac{R_{\text{Y-90}}(t_Y) + R_o \cdot (1 + t_m/t_o)}{t_m}} \text{ s}^{-1} \quad (16)$$

Hieraus erhält man die relative Standardabweichung  $s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)]/R_{\text{Y-90}}(t_Y)$  (Variationskoeffizient) zu:

$$\frac{s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)]}{R_{\text{Y-90}}(t_Y)} = \frac{s(c_{\text{Sr-90}})}{c_{\text{Sr-90}}} = \frac{\sqrt{\frac{R_{\text{Y-90}}(t_Y) + R_o \cdot (1 + t_m/t_o)}{t_m}}}{R_{\text{Y-90}}(t_Y)} \quad (17)$$

Zur Erhöhung der Selektivität der Sr-90-Bestimmung sollte der Y-90-Abfall jedoch über mindestens 5 Tage fortlaufend gemessen werden (Abb. 4). Hierdurch kann der zählstatistische Fehler weiter abgesenkt werden. So kann aus den zwischen  $t_M$  und  $t_Y^{\text{max}}$  bei einer Meßzeit von  $t_m$  durchgeführten Messungen und der graphisch oder auch rechnergestützt erhaltenen Zählrate  $R_{\text{Y-90}}(t_M)$  zum Zeitpunkt  $t_M$  die relative Standardabweichung zu:

$$\frac{s[\overline{R_{\text{Y-90}}(t_Y)}]}{\overline{R_{\text{Y-90}}(t_Y)}} = \frac{s(c_{\text{Sr-90}})}{c_{\text{Sr-90}}} = \frac{\sqrt{\frac{R_{\text{Y-90}}(t_Y) + R_o \cdot (1 + n \cdot t_m/t_o)}{n \cdot t_m}}}{\overline{R_{\text{Y-90}}(t_Y)}} \quad (18)$$

mit:

$$\overline{R_{\text{Y-90}}(t_Y)} = \frac{R_{\text{Y-90}}(t_M)}{(t_Y^{\text{max}} - t_M) \cdot \lambda_{\text{Y-90}}} \cdot [1 - e^{\lambda_{\text{Y-90}}(t_M - t_Y^{\text{max}})}] \quad (19)$$

erhalten werden. Bei bekannter Zählrate  $R_{\text{Y-90}}(t_M)$  und der über den Zeitraum  $(t_Y^{\text{max}} - t_M)$  gemittelten Zählrate  $[\overline{R_{\text{Y-90}}(t_Y)}]$  kann der zugehörige mittlere Zeitpunkt  $\overline{t_Y}$  unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls von Y-90 auf einfache Weise berechnet werden.

Zum zählstatistischen Fehler der Sr-89-Bestimmung tragen verschiedene Fehlereinflüsse bei, die nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz wie folgt zusammengefaßt werden können:

$$s(R_{\text{Sr-89}}) = \sqrt{\{s[R_b(t_B)]\}^2 + [s(R_o)]^2 + \{s[R_{\text{Y-90}}(t_B)]\}^2 + [s(R_{\text{Sr-90}})]^2} s^{-1} \quad (20)$$

Mit Gleichung 12b und 13a erhält man nun G.. 20 in der folgenden Form:

$$s(R_{\text{Sr-89}}) = \sqrt{\frac{R_b + R_o \cdot (1 + t_b/t_o)}{t_b} + \{s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)]\}^2 \cdot (f_2^2 \cdot f_3^2 + f_3^2 \cdot f_4^2)} s^{-1} \quad (21)$$

Die Bestimmung von Y-90 kann sowohl über eine Einzelmessung als auch über n fortlaufende Messungen durchgeführt werden. Die hierbei auftretenden zählstatistischen Fehler  $s[R_{\text{Y-90}}(t_Y)]$  bzw.  $s[\overline{R_{\text{Y-90}}}(t_Y)]$  können nach Gl. 17 und 18 ermittelt und in Gl. 21 eingesetzt werden. Hiernach erhält man:

$$s(R_{\text{Sr-89}}) = \sqrt{\frac{R_b + R_o \cdot (1 + t_b/t_o)}{t_b} + \frac{R_{\text{Y-90}}(t_Y) + R_o \cdot (1 + t_m/t_o)}{t_m} \cdot (f_2^2 \cdot f_3^2 + f_3^2 \cdot f_4^2)} s^{-1} \quad (22)$$

und

$$s(R_{\text{Sr-89}}) = \sqrt{\frac{R_b + R_o \cdot (1 + t_b/t_o)}{t_b} + \frac{\overline{R_{\text{Y-90}}}(t_Y) + R_o \cdot (1 + n \cdot t_m/t_o)}{n \cdot t_m} \cdot (f_2^2 \cdot f_3^2 + f_3^2 \cdot f_4^2)} s^{-1} \quad (22a)$$

Hieraus kann wiederum auf einfache Weise die relative Standardabweichung  $s(R_{\text{Sr-89}})/R_{\text{Sr-89}}$  ermittelt und somit die der Sr-89-Bestimmung erhalten werden:

$$\frac{s(R_{\text{Sr-89}})}{R_{\text{Sr-89}}} = \frac{s(c_{\text{Sr-89}})}{c_{\text{Sr-89}}} \quad (23)$$

Es muß jedoch betont werden, daß bei der Bestimmung von Sr-89 und Sr-90 in der Meßpraxis erfahrungsgemäß die analytischen Präparierfehler, die i. a. nur schwer abschätzbar sind, dominieren und die zählstatistischen Fehler in den Hintergrund treten.

## 5.1 Rechenbeispiel

Bestimmung der Aktivitätskonzentration  $c_{\text{Sr-89}}$  und  $c_{\text{Sr-90}}$  in Oberflächenwasser

Zeitpunkt der Probeentnahme	: $t_P$	= 1. 7. 1991/8 <sup>00</sup>
Zeitpunkt der Y(OH) <sub>3</sub> -Fällung	: $t_F$	= 15. 7. 1991/8 <sup>00</sup>
Zeitpunkt der Bruttomessung	: $t_B$	= 29. 7. 1991/8 <sup>00</sup>
Zeitpunkt der Y-90-Extraktion	: $t_M$	= 30. 7. 1991/8 <sup>00</sup>
Zeitpunkt der Y-90-Einzelmessung	: $t_Y$	= 30. 7. 1991/12 <sup>00</sup>
Zeitpunkt der letzten Y-90-Wiederholungsmessung	: $t_Y^{\text{max}}$	= 6. 8. 1991/20 <sup>00</sup>
Mittlerer Zeitpunkt bei den Y-90-Wiederholungsmessungen	: $\overline{t_Y}$	= 2. 8. 1991/12 <sup>00</sup>
Meßzeit bei der Bruttomessung	: $t_b$	= 6000 s
Meßzeit bei der Y-90-Messung	: $t_m$	= 6000 s
Anzahl der Wiederholungsmessungen	: n	= 19
Zählausbeute von Sr-90	: $\varepsilon_{\text{Sr-90}}$	= 0,20

Zählausbeute von Y-90	: $\varepsilon_{Y-90}$	= 0,40
Zählausbeute von Sr-89	: $\varepsilon_{Sr-89}$	= 0,30
Volumen der Wasserprobe	: $V$	= 501
Chemische Ausbeute von Strontium	: $\eta_{Sr}$	= 0,80
Chemische Ausbeute von Yttrium	: $\eta_Y$	= 0,90
Zerfallskonstante von Sr-89	: $\lambda_{Sr-89}$	= $0,000572 \text{ h}^{-1}$
Zerfallskonstante von Y-90	: $\lambda_{Y-90}$	= $0,0108 \text{ h}^{-1}$
Nulleffektzählrate	: $R_o$	= $0,017 \text{ s}^{-1}$
Meßzeit des Nulleffektes	: $t_o$	= 60 000 s
Zählrate von Y-90 bei $t_Y$	: $R_{Y-90}(t_Y)$	= $0,163 \text{ s}^{-1}$
Zählrate bei der Bruttomessung	: $R_b(t_B)$	= $1,80 \text{ s}^{-1}$
Selbstabsorptionsfaktor	: $f_s$	= 1,0

Aus der zum Zeitpunkt  $t_Y$  gemessenen Zählrate  $R_{Y-90}(t_Y)$  kann nach Gl. 7 die zum Zeitpunkt  $t_M$  vorgelegene Zählrate  $R_{Y-90}(t_M)$  wie folgt ermittelt werden:

$$R_{Y-90}(t_M) = 0,163 \cdot e^{0,0108 \cdot 4,0} = 0,170 \text{ s}^{-1}$$

Die mit dem Mutternuklid Sr-90 insgesamt im Gleichgewicht stehende Zählrate des Tochternuklids  $R_{Y-90}(t_\infty)$  kann unter Berücksichtigung der chemischen Ausbeute bei der Y-90-Extraktion nach Gl. 8 wie folgt berechnet werden:

$$R_{Y-90}(t_\infty) = \frac{0,170}{0,90 \cdot (1 - e^{-0,0108 \cdot 360})} = 0,193 \text{ s}^{-1}$$

Hieraus errechnet sich die in der Probe vorliegende Aktivitätskonzentration  $c_{Sr-90}$  nach Gl. 9 zu:

$$c_{Sr-90} = \frac{0,193}{0,40 \cdot 0,80 \cdot 1,0 \cdot 50} = 0,0121 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Die zum Zeitpunkt  $t_F$  zu erwartende Zählrate  $R_{Sr-89}(t_F)$  kann aus der zum Zeitpunkt  $t_B$  durchgeführten Messung der Bruttoaktivität  $R_b(t_B)$  nach den Gln. 11 bis 13 wie folgt erhalten werden:

$$R_{Sr-89}(t_F) = \frac{1,80 - 0,017 - 0,163 (0,974 \cdot 1,18 + 0,50 \cdot 1,18)}{e^{-0,000572 \cdot 336}} = 1,82 \text{ s}^{-1}$$

Hieraus erhält man die Aktivitätskonzentration  $c_{Sr-89}$  der Probe zum Zeitpunkt  $t_F$  nach Gl. 14 zu:

$$c_{Sr-89}(t_F) = \frac{1,82}{0,30 \cdot 0,80 \cdot 1,0 \cdot 50} = 0,152 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

und zum Zeitpunkt der Probeentnahme  $t_P$  nach Gl. 15 zu:

$$c_{Sr-89}(t_P) = 0,152 e^{0,000572 \cdot 336} = 0,184 \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1}$$

Der relative zählstatistische Fehler einer Sr-90-Messung kann im Falle einer Einzelmessung von Y-90 nach Gl. 17 wie folgt berechnet werden:

$$\frac{s[R_{Y-90}(t_Y)]}{R_{Sr-90}(t_Y)} = \frac{s(c_{Sr-90})}{c_{Sr-90}} = \frac{\sqrt{\frac{0,163 + 0,017 \cdot (1 + 0,10)}{6000}}}{0,163} = 0,034$$

Für den Fall, daß Y-90 durch n Wiederholungsmessungen ermittelt wurde (Abb. 4), erhält man den relativen zählstatistischen Fehler einer Sr-90-Messung nach den Gln. 18 und 19 zu:

$$\frac{s[\overline{R_{Y-90}(t_Y)}]}{\overline{R_{Y-90}(t_Y)}} = \frac{s(c_{Sr-90})}{c_{Sr-90}} = \frac{\sqrt{\frac{0,0749 + 0,017 \cdot (1 + 1,9)}{19 \cdot 6000}}}{0,0749} = 0,014 \text{ s}^{-1}$$

mit:

$$\overline{R_{Y-90}(t_Y)} = \frac{0,170}{0,0108 \cdot 180} \cdot (1 - e^{0,0108 \cdot 180}) = 0,0749 \text{ s}^{-1}$$

Der relative zählstatistische Fehler bei der Sr-89-Bestimmung kann entsprechend nach den Gln. 22 und 23 für den Fall, daß Y-90 über eine Einzelmessung bestimmt wurde, wie folgt berechnet werden.

$$\frac{s(c_{Sr-89})}{c_{Sr-89}} = \frac{\sqrt{\frac{1,80 + 0,017 \cdot (1 + 0,1)}{6000} + \frac{0,163 + 0,017 \cdot (1 + 0,1)}{6000}} \cdot 1,67}{1,80 - 0,017 - 0,187 - 0,096} = 0,012$$

mit

$$f_2^2 \cdot f_3^2 + f_3^2 \cdot f_4^2 = 1,67$$

und für den Fall, daß Y-90 über n Einzelmessungen ermittelt wurde:

$$\frac{s(c_{Sr-89})}{c_{Sr-89}} = \frac{\sqrt{\frac{1,80 + 0,017 \cdot (1 + 0,1)}{6000} + \frac{0,163 + 0,017 \cdot (1 + 1,9)}{19 \cdot 6000}} \cdot 1,67}{1,80 - 0,17 - 0,187 - 0,096} = 0,012$$

Das Ergebnis der Bestimmung der Aktivitätskonzentration der beiden Strontiumisotope Sr-89 und Sr-90 in Oberflächenwasser mit dem einfachen zählstatistischen Fehler zum Zeitpunkt der Probeentnahme  $t_p$  lautet somit:

**Sr-89:**  $c_{Sr-89}(t_p) = (184 \pm 2,2) \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$

$$c_{Sr-89}(t_p) = 184 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1} \pm 1,2 \%$$

**Sr-90:**  $c_{Sr-90}(t_p) = (12,1 \pm 0,41) \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$

(Einzelmessung)  $c_{Sr-90}(t_p) = 12,1 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1} \pm 3,4 \%$

**Sr-90:**  $c_{Sr-90}(t_p) = (12,1 \pm 0,17) \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$

(Wiederholungsmessungen)  $c_{Sr-90}(t_p) = 12,1 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1} \pm 1,4 \%$

## 6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

### 6.1 Erkennungsgrenzen

Die bei der Bestimmung von Sr-90 in Oberflächenwasser erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-90}}^*$  ist sowohl von analytischen Größen ( $\eta_{\text{Sr}}$ ,  $\eta_{\text{Y}}$ ,  $\varepsilon_{\text{Y-90}}$ ,  $V$  etc.) als auch von dem bei der Messung der Zählrate  $R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}})$  zum Zeitpunkt  $t_{\text{Y}}$  auftretenden zählstatistischen Fehler ( $s[R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}})]$ ) abhängig. Erfolgt die Bestimmung von Sr-90 über eine Einzelbestimmung des Y-90 bei einer Meßzeit  $t_{\text{m}}$ , so kann  $g_{\text{Sr-90}}^*$  in guter Näherung nach folgender Beziehung abgeschätzt werden:

$$g_{\text{Sr-90}}^* = \frac{k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\frac{R_o}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{t_m}{t_o}\right)}}{\varepsilon_{\text{Y-90}} \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{\text{Y}} \cdot f_{\text{S}} \cdot V \cdot [1 - e^{\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_{\text{F}} - t_{\text{M}})}] \cdot e^{\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_{\text{M}} - t_{\text{Y}})}} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (24)$$

Wird dagegen eine Bestimmung von Sr-90 aus mehreren aufeinanderfolgenden Y-90-Messungen und Ermittlung von  $R_{\text{Y-90}}(t_{\text{M}})$  nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate vorgenommen (Abb. 4), so kann  $g_{\text{Sr-90}}^*$  weiter abgesenkt werden. Bei der Ableitung der Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-90}}^*$  muß in diesem Fall jedoch die Standardabweichung  $s[\overline{R_{\text{Y-90}}}(t_{\text{Y}})]$  zugrundegelegt werden (siehe Abschnitt 5.0 dieser Meßanleitung). Für eine aus  $n$  Einzelmessungen  $R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}})$  durchgeführte Bestimmung von Sr-90 kann die erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-90}}^*$  nach folgender Beziehung abgeschätzt werden:

$$g_{\text{Sr-90}}^* = \frac{k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\frac{R_o}{n \cdot t_m} \cdot \left(1 + \frac{n \cdot t_m}{t_o}\right)}}{\varepsilon_{\text{Y-90}} \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot \eta_{\text{Y}} \cdot f_{\text{S}} \cdot V \cdot [1 - e^{\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_{\text{F}} - t_{\text{M}})}] \cdot e^{\lambda_{\text{Y-90}} \cdot (t_{\text{M}} - \bar{t}_{\text{Y}})}} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (25)$$

So beträgt die mit einer konventionellen Low-Level-Meßanordnung bei einer Einzelmessung mit  $t_{\text{m}} = 6000 \text{ s}$  und Standardbedingungen (siehe Abschnitt 5.1 dieser Meßanleitung) für einen Konfidenzkoeffizienten  $k_{1-\alpha} = 3$  und einem Probenvolumen von  $V = 501$  erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-90}}^* = 0,40 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$ . Für den Fall, daß eine Bestimmung von Sr-90 über  $n = 19$  Einzelmessungen von Y-90 vorgenommen wird, kann bei den ansonsten gleichen Bedingungen die Erkennungsgrenze auf  $g_{\text{Sr-90}}^* = 0,11 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  abgesenkt werden.

Die bei der Sr-89-Bestimmung erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-89}}^*$  wird vor allem durch die bei der Messung der Bruttozählrate  $R_{\text{b}}$  auftretende Standardabweichung  $s[R_{\text{Sr-89}}(t_{\text{B}})]$  bestimmt (Gl. 22 dieser Meßanleitung). So wirkt sich insbesondere der Anteil an Sr-90 und Y-90 auf die Empfindlichkeit der Messung von Sr-89 aus. Hierbei kann  $g_{\text{Sr-89}}^*$ , bezogen auf den Zeitpunkt  $t_{\text{B}}$ , nach folgender Beziehung abgeschätzt werden:

$$g_{\text{Sr-89}}^* = \frac{k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\frac{R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}}) \cdot (f_2 f_3 + f_3 f_4) + R_o(1 + t_{\text{b}}/t_o)}{t_{\text{b}}} + \frac{[R_{\text{Y-90}}(t_{\text{Y}}) + R_o(1 + t_{\text{m}}/t_o)] \cdot (f_2^2 f_3^2 + f_3^3 f_4^2)}{t_{\text{m}}}}}{\varepsilon_{\text{Sr-89}} \cdot \eta_{\text{Sr}} \cdot f_{\text{S}} \cdot V} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (26)$$

Zur Berechnung der Erkennungsgrenze für den Zeitpunkt der Probeentnahme  $t_{\text{p}}$  muß der radioaktive Zerfall von Sr-89 entsprechend korrigiert werden:

$$g_{\text{Sr-89}}^*(t_p) = \frac{g_{\text{Sr-89}}^*(t_B)}{e^{\lambda_{\text{Sr-89}}(t_p - t_B)}} \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (27)$$

Aus Gleichung 26 geht hervor, daß die bei der Sr-89-Bestimmung erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-89}}^*$  maßgeblich durch die in der Probe ebenfalls enthaltenen Anteile an Sr-90 und Y-90 bestimmt wird. So beträgt beispielsweise bei einem Sr-90-Gehalt von  $12 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  mit einer konventionellen Low-Level-Meßeinrichtung unter den üblichen Meßbedingungen (siehe Beispiel in Abschnitt 5.1 dieser Meßanleitung) die für einen Konfidenzkoeffizienten von  $k_{1-\alpha} = 3$  und einem Probenvolumen von  $V = 50 \text{ l}$  erreichbare Erkennungsgrenze  $g_{\text{Sr-89}}^*(t_B) = 1,5 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$ .

## 6.2 Nachweisgrenzen

Die Nachweisgrenzen  $g_{\text{Sr-89}}$  und  $g_{\text{Sr-90}}$  bei der Bestimmung von Sr-89 und Sr-90 nach dem angegebenen Verfahren können unter Einbeziehung des Konfidenzkoeffizienten  $k_{1-\beta}$  für den Fehler 2. Art aus den entsprechenden Erkennungsgrenzen  $g_{\text{Sr-89}}^*$  und  $g_{\text{Sr-90}}^*$  wie folgt berechnet werden (siehe Kapitel IV.5 dieser Meßleitungen):

$$g_{\text{Sr-89}} = \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{k_{1-\alpha}} \cdot g_{\text{Sr-89}}^* \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (28)$$

$$g_{\text{Sr-90}} = \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{k_{1-\alpha}} \cdot g_{\text{Sr-90}}^* \text{ Bq} \cdot \text{l}^{-1} \quad (28a)$$

So kann für einen Konfidenzkoeffizienten  $k_{1-\beta} = 1,645$  die Nachweisgrenze der Bestimmung von Sr-89 zu  $g_{\text{Sr-89}} = 3,9 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  und die von Sr-90 zu  $g_{\text{Sr-90}} = 0,62 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  (Einfachmessung) bzw.  $g_{\text{Sr-90}} = 0,17 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  (Mehrfachmessung) für die angegebenen Meßbedingungen (siehe Abschnitt 5.1 dieser Meßanleitung) berechnet werden. Auf die Besonderheiten der Meßbedingungen zur Limitierung der Irrtumswahrscheinlichkeit  $\beta$  (Fehler 2. Art) und Gewährleistung einer vorgegebenen statistischen Sicherheit  $1 - \beta$  wird nachdrücklich hingewiesen.

Es muß jedoch betont werden, daß die bei der Sr-89- und Sr-90-Bestimmung erreichbaren Erkennungs- und Nachweisgrenzen insbesondere von analytischen Parametern ( $\eta_{\text{Sr}}$ ,  $\eta_{\text{Y}}$ ,  $\epsilon_{\text{Sr-90}}$ ,  $\epsilon_{\text{Sr-89}}$  etc.) abhängig sind, die Schwankungen unterliegen, die i. a. mathematisch nur schwer darstellbar sind. Die vorangehend vorgenommene Berechnung von Erkennungs- und Nachweisgrenzen bei der Bestimmung der beiden Strontiumisotope Sr-89 und Sr-90 stellt daher eine Abschätzung dar, die über die Empfindlichkeit eines unter praxisnahen Meßbedingungen eingesetzten Verfahrens orientieren will. Hieraus kann jedenfalls entnommen werden, daß die im Routinemeßprogramm zum StrVG vorgegebenen Nachweisgrenzen von  $10 \text{ mBq} \cdot \text{l}^{-1}$  bei der Bestimmung von Sr-89 und Sr-90 in Oberflächenwasser nach dem angegebenen Verfahren leicht eingehalten werden können.

## 7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

### 7.1 Chemikalien

- Flygtol A-Lösung (20 g Flygtol A/l destilliertes Wasser: Hersteller: Fa. Erbslöh GmbH, 65366 Geisenheim)
- Kerafloc A 4005 (0,2 g Kerafloc A 4005/l destilliertes Wasser: Hersteller: Fa. Zschimmer & Schwarz GmbH & Co, Chemische Fabriken, Max-Schwarz-Straße 4–5, 56112 Lahnstein)
- Ammoniak-Lösung,  $\text{NH}_4\text{OH}$ , 2, 4, 10 und  $18 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Salzsäure,  $\text{HCl}$ , 1, 2, 4 und  $10 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Salpetersäure,  $\text{HNO}_3$ , 1, 4, 10 und  $24 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Essigsäure,  $\text{CH}_3\text{COOH}$ , 6 und  $17 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$
- Strontiumchlorid-Lösung,  $\text{SrCl}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ ,  $30,6 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in dest. Wasser
- Yttriumchlorid-Lösung,  $\text{YCl}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ,  $34,0 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in verdünnter Salzsäure ( $0,1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ )
- Bariumchlorid-Lösung,  $\text{BaCl}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ ,  $17,9 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in dest. Wasser
- Natriumcarbonat-Lösung,  $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$ , gesättigte Lösung von dest. Wasser
- Oxalsäure Lösung,  $(\text{COOH})_2$ , gesättigte Lösung von dest. Wasser
- Natriumchromat-Lösung,  $\text{Na}_2\text{CrO}_4$ ,  $48,6 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in dest. Wasser
- Ammoniumacetat-Lösung,  $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ ,  $460 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in dest. Wasser
- Ammoniumcarbonat-Lösung,  $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ,  $200 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$  in dest. Wasser
- Hydraziniumhydroxid,  $\text{N}_2\text{H}_5\text{OH}$ , 24%ige Lösung
- Bis-(2-ethylhexyl)-phosphat (HDEHP), frei von Anteilen an Monoester
- Ethanol/Wasser-Gemisch (1:1) (v/v)
- Voltalef 300 bzw. 302 (Lieferfirma: Fa. Lehmann & Voß, Alsterufer 13, 20354 Hamburg)
- Natriumcarbonat,  $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 10 \text{H}_2\text{O}$ , fest
- di-Natriumhydrogenphosphat,  $\text{Na}_2\text{HPO}_4 \cdot 12 \text{H}_2\text{O}$ , fest
- Standardlösungen (Aktivitätsnormale) von Sr-89, Sr-90 und Sr-85 (optional) der Phys.-Tech. Bundesanstalt, 38116 Braunschweig

### 7.2 Geräte

- Low-Level-Meßplatz mit Proportionalzähler und antikoinzident geschaltetem Schirmzähler für 50 bzw. 60 mm-Meßschalen und rechnergestützter Meßwertverarbeitung
- Rotationsverdampfer, 10 l (optional)
- Kühlzentrifuge mit 1000 ml-Behälter und 250 ml-Behälter (Teflon)
- Wasserstrahlpumpen
- Heizplatten mit Magnetrührer
- Kühlthermostat mit Kühlbadflüssigkeit auf der Basis von Perfluorkohlenwasserstoffen (z. B.: Badflüssigkeit FC-77 von 3M Deutschland GmbH, D-41453 Neuss)
- Hahn'sche Nutschen, G2, Durchmesser: 40 mm
- Tiegelofen
- Muffelofen
- 2 Kunststoffflaschen, 60 l mit seitlichem Ablaufhahn
- Blaubandfilter, Membranfilter ( $0,46 \mu\text{m}$ ), Glasfaserfilter (z. B. Glasfilter Nr. 8, Fa. Schleicher & Schüell, 37586 Dassel)

## Literatur

- (1) Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung: Jahresberichte des Bundesministers für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, 53048 Bonn, Postfach 12 06 29
- (2) Mundschenk, H.: Zur Anreicherung und Bestimmung geringer Gehalte von Sr-90/Y-90 in Wasserproben. Deutsche Gewässerkundl. Mittlgn. 23 (1979) S. 64–72
- (3) Harley, J.H. et al.: HASL Procedures Manual. US. Atomic Energy Commission, New York 1972 und 1976
- (4) Denig, R., Trautmann, N., Herrmann, G.: Schnelle Extraktion durch quasi-feste Extraktionsmittel. Z. Anal. Chem. 216 (1966) S. 41–50
- (5) Förstner, U., Wittmann, G.T.W.: Metal Pollution in the Aquatic Environment. Springer-Verlag, Berlin–Heidelberg–New York, 1979
- (6) Mundschenk, H.: Analysen- und Meßanleitungen zur Bestimmung der Radioaktivität in Oberflächenwasser-, Schwebstoff- und Sedimentproben. Bericht der Bundesanstalt für Gewässerkunde, Koblenz, Oktober 1980