

**Verfahren zur Überwachung
der Aktivitätsableitungen
von radioaktiven Edelgasen
aus kerntechnischen Anlagen
durch nuklidspezifische Messung**

J- γ -SPEKT-ALUFT-01

Bearbeiter:

K. Vogl

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

Verfahren zur Überwachung der Aktivitätsableitungen von radioaktiven Edelgasen aus kerntechnischen Anlagen durch nuklidspezifische Messung

1 Anwendbarkeit

Das beschriebene Verfahren ist geeignet, die nuklidspezifischen Aktivitätskonzentrationen der in der Fortluft von kerntechnischen Anlagen enthaltenen Edelgasradionuklide kontinuierlich zu bestimmen. In Tabelle 1 sind die gemäß der Sicherheitstechnischen Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 (1) zu bestimmenden Edelgasradionuklide aufgeführt.

Diese Messungen dienen in erster Linie der Bilanzierung der Aktivitätsableitungen von Edelgasradionukliden, sie werden aber auch für Überwachungsmessungen (Monitorfunktion) eingesetzt. Den Hauptanteil an der Edelgasradionuklidaktivität liefern die Radionuklide Xe-133, Xe-135, Kr-85 und je nach Reaktortyp auch Ar-41.

2 Probeentnahme

Aus der Fortluft wird mit Hilfe von Sonden ein Teilluftstrom kontinuierlich entnommen und durch eine Messkammer geleitet (Abbildungen 1 und 2). Empfehlungen zur Probeentnahme sind dem Verfahren J- γ -SPEKT-ALUFT-03 dieser Messanleitungen und der Literatur (2, 3) zu entnehmen. Der Volumenstrom des Teilluftstromes von einigen $\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ wird durch geeignete Maßnahmen konstant gehalten. Aerosolpartikelgebundene Radionuklide werden durch vor der Messkammer angeordnete Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ H12 nach DIN EN 1822 Teil 1, (4, 5), gasförmige Iodisotope durch Absorptionsfilter aus dem Teilluftstrom abgetrennt. Schwebstofffilter und Absorptionsfilter sollten Edelgase möglichst wenig zurückhalten. Als Schwebstofffilter sind Glasfaserfilter ohne organische Bindemittel und Teflonfilter mit Nylonstützgewebe und als Absorptionsfilter Silberzeolithschüttungen geeignet.

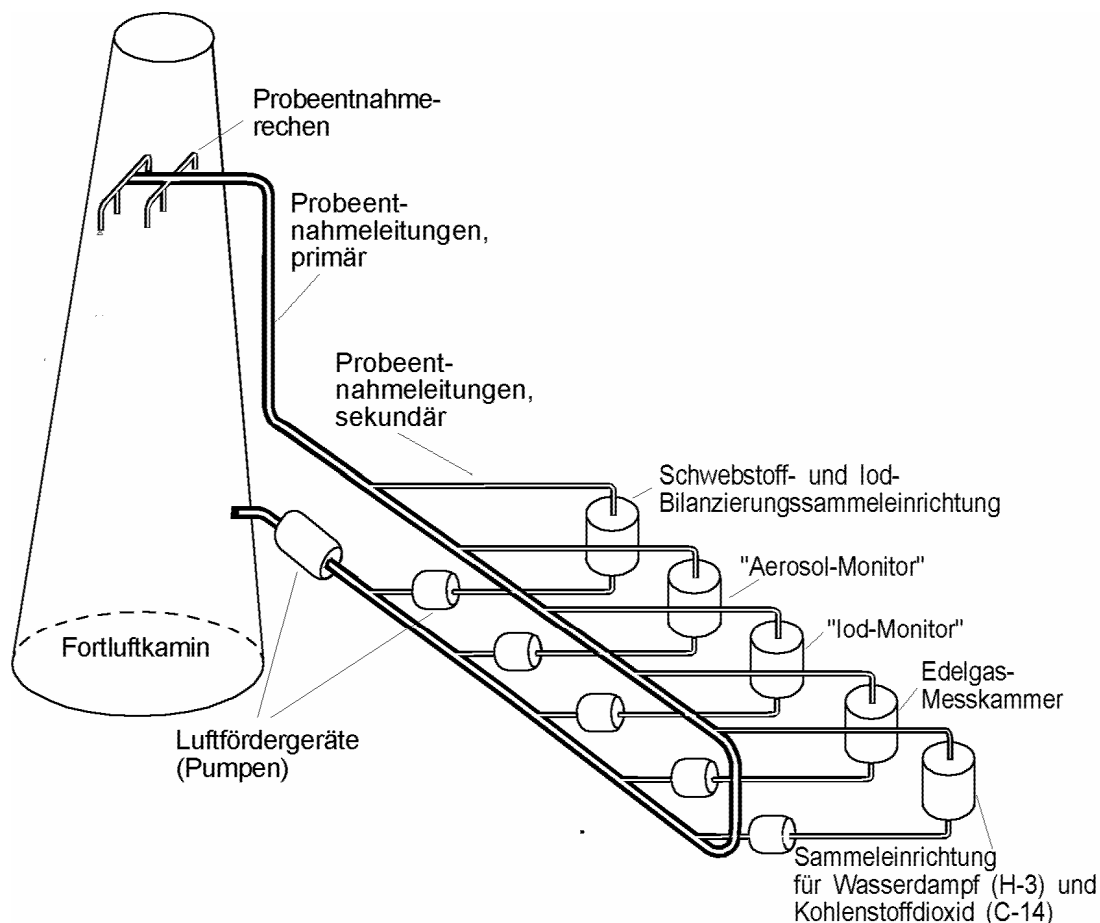


Abb. 1: Schematische Darstellung einer Probeentnahmeeinrichtung zur Messung von Edelgasradionukliden

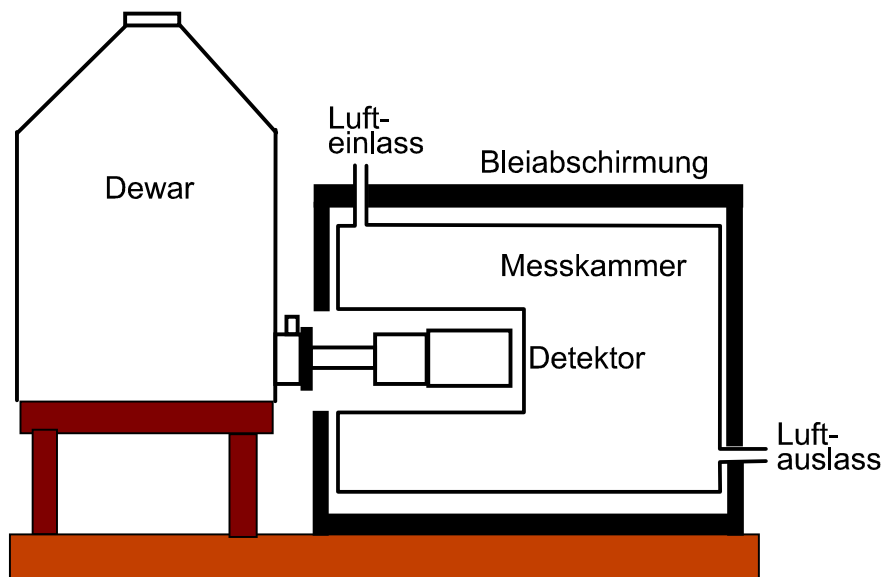


Abb. 2: Schematische Darstellung der Messapparatur zur nuklidspezifischen Messung von Edelgasradionukliden

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Die nuklidspezifischen Aktivitätskonzentrationen der Edelgasradionuklide werden gammaspektrometrisch mit einem Halbleiterdetektor gemessen.

3.2 Probenvorbereitung

Eine Probenvorbereitung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Anordnung der Messapparatur

Die Messeinrichtung besteht aus einer Messkammer mit einem Volumen von ca. 30 l bis 60 l, einem Halbleiterdetektor (Ge(Li)-Detektor oder Reinstgermaniumdetektor mit Vorverstärker, Verstärker und Hochspannungsversorgung und einem Vielkanalanalysator mit Auswerteeinheit. Weitere Hinweise liefern die Literatur (6, 7, 8, 9, 10) und das allgemeine Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen.

Zum Erzielen einer hohen Nachweiswahrscheinlichkeit sollte der Halbleiterdetektor ein großes Volumen aufweisen und tief in die Messkammer hineinragen. Die Messkammer ist mit 5 cm bis 10 cm dicken Bleiplatten umgeben, um die Nulleffektzählrate infolge der Umgebungsstrahlung zu reduzieren. Als Material für die Messkammer dient Aluminium oder Edelstahl. Zur Umkleidung des Halbleiterdetektors ist Aluminium besser geeignet als Edelstahl, da niederenergetische Gammastrahlung, z. B. von Xe-133, weniger geschwächt wird.

Nach den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 sind darüber hinaus der Volumenstrom und die Temperatur der Fortluft zu erfassen und aufzuzeichnen.

4.2 Kalibrierung

Zur Kalibrierung der Messeinrichtung wäre eine Probe mit gasförmigen Radionukliden bekannter Aktivität, deren Emissionslinien einen weiten Energiebereich überdecken, erforderlich. Üblicherweise stehen nur zwei gasförmige Radionuklide, Kr-85 mit einer Linie bei 514 keV und Xe-133 mit Linien bei 79,6 keV und bei 81,0 keV, zur Verfügung.

Deshalb wird die Kalibrierung der Messeinrichtung in zwei Schritten durchgeführt. Zuerst wird die Messeinrichtung mit den gasförmigen Edelgasen Kr-85 und Xe-133 bekannter Aktivitätskonzentrationen kalibriert. Diese Kalibrierung erfolgt wie im Verfahren J- β -GESAMT-ALUFT-01 beschrieben. In einem zweiten Schritt kann nach einem früher angewandten Verfahren mit mehreren punktförmigen Gammastrahlungsquellen bekannter Aktivität, z. B. Eu-152 und Am-241, die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors ermittelt werden. Um Summationseffekte zu vermeiden, werden dabei die punktförmigen Gammastrahlungsquellen in einem Abstand von mehr als 10 cm zum Detektormittelpunkt angeordnet.

Die so erhaltene Funktion der Nachweiswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Gammastrahlungsenergie wird mit einem Koeffizienten mit der Einheit m^3 derart multipliziert, dass sie möglichst durch die im ersten Schritt mittels der Edelgasradionuklide Kr-85 und Xe-133 erhaltenen Werte der verfahrensbezogenen Nachweiswahrscheinlichkeiten verläuft (Abbildung 3). Die Kalibrierung wird ausführlicher in der Literatur (6, 7, 8, 9) beschrieben.

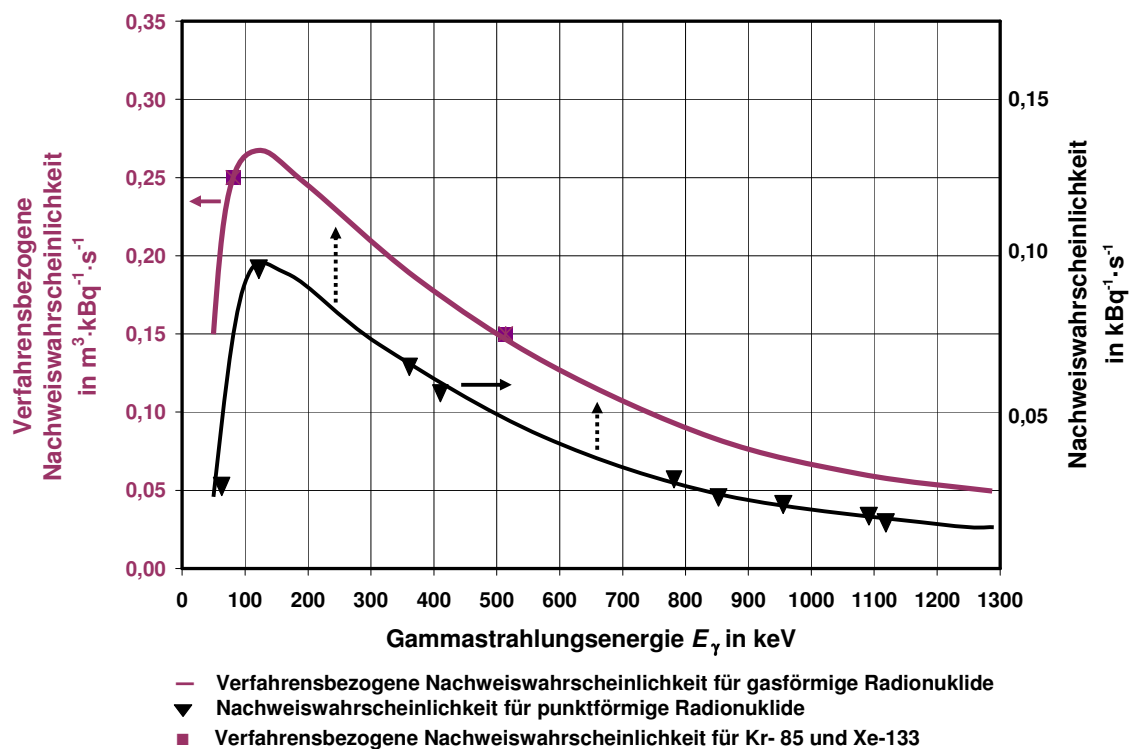


Abb. 3: Verfahrenstechnische Nachweiswahrscheinlichkeit bei gasförmigen Edelgasradionukliden und Nachweiswahrscheinlichkeit bei punktförmigen gammastrahlenden Radionukliden als Funktion der Gammastrahlungsenergie nach (7, 9)

Bei zylindrischen Messkammern kann mit einem neueren Verfahren die verfahrensbezogene Nachweiswahrscheinlichkeit auch durch eine Vielzahl von Einzelmessungen mit einer parallel zur Detektorachse angeordnete Linienquelle und einer scheibenförmigen Flächenquelle dieser Gammastrahler ermittelt werden. Der Halbleiterdetektor wird dabei mit einer Umhüllung, die der Einbuchtung in der Messkammer entspricht, versehen, die Linienquelle und ebenfalls die Flächenquelle in Zentimeterschritten von der Umhüllung entfernt und jeweils das Impulshöhenspektrum aufgenommen. Für jede dieser Einzelmessungen wird die Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Durch gewichtete Mittelwertbildung dieser Nachweiswahrscheinlichkeiten kann eine verfahrensbezogene Nachweiswahrscheinlichkeit ermittelt werden, die der wirklichen vor allem im Energiebereich zwischen 100 keV und 400 keV besser angenähert ist als mit punktförmigen Gammastrahlungsquellen. Alternativ können auch dafür entwickelte Rechenmodelle zur Abschätzung der verfahrensbezogenen Nachweiswahrscheinlichkeit eingesetzt werden.

Die Messkammer ist mit einer Vorrichtung zu versehen, die es erlaubt, zur wiederkehrenden Prüfung ein geeignetes gammastrahlendes Radionuklidpräparat (z. B. Eu-152) in eine reproduzierbare Position zum Halbleiterdetektor zu bringen. Vorteil-

haft kann auch durch die kontinuierliche Aufnahme der Linien von zwei gammastrahlenden Radionukliden im Spektrum, die die Messung der Edelgasradionuklide nicht stören, sowohl die Energiekalibrierung als auch die Nachweiswahrscheinlichkeit elektronisch stabil gehalten werden. Zu diesem Zweck kann z. B. die Gammastrahlung von Am-241 im niederenergetischen Bereich und im hochenergetischen Bereich die Gammastrahlung von Co-60 oder die immer vorhandene Gammastrahlung von K-40, letztere jedoch nur zur Energiekalibrierung, dienen.

4.3 Messung der Aktivität

Bei Messungen gemäß den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 (1) müssen die Messdauer jeweils eine Stunde betragen und die erhaltenen Werte der Aktivitätskonzentration zu Tageswerten aufsummiert werden. Die Werte der Aktivitätskonzentration und des Volumenstromes der Fortluft sind für die Bilanzierung aufzuzeichnen. Wird das Verfahren zur Überwachung der Aktivitätskonzentration (Monitorfunktion) verwendet, sollte die Messdauer 10 Minuten betragen.

Tab. 1: Kernphysikalische Daten der gemäß der KTA-Regel 1503.1 zu bestimmenden Edelgasradionuklide

Nuklid	Halbwertszeit in s	Gammaenergie in keV	Emissionswahrscheinlichkeit
Ar-41	$6,58 \cdot 10^{03}$	1293,6	0,99
Kr-85	$3,38 \cdot 10^{08}$	514,0	0,0044
Kr-85m	$1,61 \cdot 10^{04}$	151,2	0,75
		304,9	0,14
Kr-87	$4,58 \cdot 10^{03}$	402,6	0,50
Kr-88	$1,02 \cdot 10^{04}$	196,3	0,26
		834,8	0,13
		1529,8	0,11
		2195,8	0,13
		2392,1	0,35
Kr-89	$1,90 \cdot 10^{02}$	220,9	0,20
		586,0	0,17
Xe-131m	$1,03 \cdot 10^{06}$	163,9	0,02
Xe-133	$4,53 \cdot 10^{05}$	81,0	0,37
Xe-133m	$1,90 \cdot 10^{05}$	233,2	0,10
Xe-135	$3,29 \cdot 10^{04}$	249,8	0,90
Xe-135m	$9,18 \cdot 10^{02}$	526,6	0,81
Xe-137	$2,29 \cdot 10^{02}$	455,5	0,31
Xe-138	$8,45 \cdot 10^{02}$	258,3	0,32
		434,6	0,20
		1768,3	0,17
		2015,8	0,12

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Bei jeder Messung wird die Nettoimpulsanzahl in jeder Linie der einzelnen Edelgasradionuklide bestimmt. Die mittleren Aktivitätskonzentrationen der einzelnen Edelgasradionuklide während dieser Zeitspanne werden nach den Gleichungen (1) bis (3) berechnet:

$$c_r = \frac{f_1 \cdot f_2}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot p_{\gamma,r}} \cdot \frac{N_n}{t_m} \quad (1)$$

$$f_2 = \frac{\lambda_r \cdot t_v}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_v}} \quad (2)$$

$$t_v = \frac{V}{\dot{V}} \quad (3)$$

Üblicherweise brauchen weder Summationseffekte noch der radioaktive Zerfall während der Verweildauer in der Messkammer berücksichtigt werden, so dass die Korrekturfaktoren f_1 und f_2 den Wert 1 annehmen.

Die relative Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration c_r wird nach der Gleichung (4) berechnet:

$$\frac{s(c_r)}{c_r} = \sqrt{\frac{1}{N_{n,r}} + \frac{4 \cdot R_T \cdot t_m}{N_{n,r}^2} \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right) + \left(\frac{s(\varepsilon_r)}{\varepsilon_r}\right)^2} \quad (4)$$

Bei den Gleichungen (1) bis (4) bedeuten:

- c_r Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $s(c_r)$ Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $N_{n,r}$ Nettoimpulsanzahl;
- t_m Messdauer in s;
- $p_{\gamma,r}$ Emissionswahrscheinlichkeit des Radionuklides r;
- λ_r Zerfallskonstante des Radionuklides r in s^{-1} ;
- $\varepsilon(E_\gamma)$ verfahrensbezogene Nachweiswahrscheinlichkeit bei der Energie E_γ in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^3$;

Anmerkung:

Diese verfahrensbezogene Nachweisgrenze unterscheidet sich, auch hinsichtlich der Einheit, von der Nachweisgrenze nach Kapitel III.2 dieser Messanleitungen und ergibt sich aus der Kalibrierung mit vorgegebenen Aktivitätskonzentrationen der gasförmigen Edelgasradionuklide.

- f_1 Korrekturfaktor für Summationseffekte (siehe Kapitel IV.1);
- f_2 Korrekturfaktor für radioaktiven Zerfall beim Durchfluss durch die Messkammer;
- t_v Verweildauer in der Messkammer;
- V Volumen der Messkammer in m^3 ;

- \dot{V} Volumenstrom durch die Messkammer in $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$;
 R_T Trapezzählrate nach Kapitel IV.5, Gleichung (4.24), der Linie in s^{-1} ;
 b Linienfußbreite der Linie in Kanälen;
 L Breite des Bereiches zur Untergrundbestimmung in Kanälen.

5.2 Rechenbeispiel

Als Beispiel wird die Aktivitätskonzentration von Xe-133 berechnet. Für die Berechnung der Aktivitätskonzentration $c_{\text{Xe-133}}$ liegen folgende Daten vor:

$$\begin{array}{ll}
 N_n & = 5,2 \cdot 10^4; & t_m & = 3600 \text{ s}; \\
 p_\gamma & = 0,30;8 & \lambda & = 1,53 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}; \\
 \varepsilon(E_\gamma) & = 2 \cdot 10^{-3} \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^3; & R_T & = 4 \text{ s}^{-1}; \\
 b & = 4 \text{ Kanäle}; & L & = 4 \text{ Kanäle}; \\
 V & = 4 \cdot 10^{-2} \text{ m}^3; & \dot{V} & = 5,6 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}.
 \end{array}$$

$$t_v = \frac{4 \cdot 10^{-2}}{5,6 \cdot 10^{-3}} \text{ s} = 7,1 \text{ s}$$

$$f_1 = 1$$

$$f_2 = 1$$

$$\begin{aligned}
 c_{\text{Xe-133}} &= \frac{1 \cdot 1}{2 \cdot 10^{-3} \cdot 0,38} \cdot \frac{5,2 \cdot 10^4}{3600} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \\
 &= 1316 \cdot 14,44 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,90 \cdot 10^4 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}
 \end{aligned}$$

Im vorliegenden Fall ist die relative Unsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit 10 %. Die relative Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration $s(c_{\text{Xe-133}}) \cdot c_{\text{Xe-133}}^{-1}$ beträgt nach Gleichung (4):

$$\frac{s(c_{\text{Xe-133}})}{c_{\text{Xe-133}}} = \sqrt{\frac{1}{5,2 \cdot 10^4} + \frac{4 \cdot 3600}{(5,2 \cdot 10^4)^2} \cdot \left(1 + \frac{8}{2 \cdot 4}\right) + 0,1^2} = 0,1$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration von Xe-133 beträgt demnach:

$$c_{\text{Xe-133}} = (19 \pm 2) \text{ kBq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Messunsicherheiten entstehen hauptsächlich durch die zählstatistische Unsicherheit der Nettoimpulsanzahl und die Unsicherheit des Kalibrierungsverfahrens infolge der Unsicherheiten der Aktivitäten, der Volumina der Gasmäuse und des Gesamtvolumens und der unterschiedlichen Absorption der Gammastrahlung der Punkt-

quellen und der gasförmigen Radionuklide. Für die Berechnung der Unsicherheiten wird auf Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen verwiesen.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

Die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration wird nach den Gleichungen des Kapitels IV.5 dieser Messanleitungen berechnet. Die Nachweisgrenze der nuklid-spezifischen Aktivitätskonzentration beträgt nach Gleichung (5):

$$g_r = \frac{f_1 \cdot f_2}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot p_{\gamma,r}} \cdot \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{2 \cdot t_m} \cdot \left[k_{1-\alpha} + \sqrt{k_{1-\alpha}^2 + 4 \cdot b \cdot \bar{R}_0 \cdot t_m \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right)} \right] \quad (5)$$

Dabei bedeuten:

g_r Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;

$k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile der Normalverteilung;

\bar{R}_0 mittlere Nulleffektzählrate pro Kanal in der Linie in s.

In Tabelle 2 sind die Nachweisgrenzen einer praxisnahen Messung für einige Nuklide zusammengestellt (9, 10). Die Werte der einzelnen Einflussgrößen sind dabei denen im obigen Beispiel ähnlich.

Die Nachweisgrenze gemäß den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 (1) beträgt $5 \cdot 10^2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ für Xe-133, die erreichbare Nachweisgrenze für ein Tagesspektrum liegt bei etwa $10^2 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

Tab. 2: Beispiele für typische Nachweisgrenzen bei der nuklidspezifischen Edelgasmessung (nach 9, 10)

Radionuklid	Nachweisgrenze in Bq·m ⁻³			
	Kontinuierlich ¹			Diskontinuierlich ²
	Stunden-spektren	Tages-spektren	Gesamt-spektrum ³	Messdauer 1 h
Ar-41	91	13	2,9	7,0
Kr-85	9200	2400	510	1300
Kr-85m	55	11	2,2	9,2
Kr-87	95	20	4,0	16
Kr-88	160	34	6,6	25
Kr-89	310	74	14	*
Xe-131m	1900	440	85	290
Xe-133	140	31	5,7	36
Xe-133m	370	88	18	52
Xe-135	45	10	2,0	6,1
Xe-135m	62	13	2,7	44
Xe-137	170	33	6,7	*
Xe-138	140	29	5,7	130

¹ Reinstgermaniumdetektor mit 50 % Nachweiswahrscheinlichkeit bezogen auf einen 3'' x 3''-NaI(Tl)-Detektor in einer Aluminiumtasche der Messkammer bei einem Messkammervolumen von 60 Litern

² Druckflaschenmethode nach dem Verfahren J- γ -SPEKT-ALUFT-02; Aluminium-Atemluftdruckflasche und Reinstgermaniumhalbleiterdetektor mit 50 % Nachweiswahrscheinlichkeit bezogen auf einen 3'' x 3''-NaI(Tl)-Detektor

³ während einer Woche gesammeltes Spektrum

* Wegen der geringen Halbwertszeit dieser Radionuklide ist die Angabe der Nachweisgrenze bei der Druckflaschenmethode nicht sinnvoll.

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Für das hier beschriebene Verfahren sind keine Chemikalien erforderlich.

Gammastrahlende Radionuklide zur Kalibrierung:

- Umschlossene punktförmige gammastrahlende Radionuklide, z. B. Eu-152 und Am-241;
- Gasförmiges Kr-85 und Xe-133 bekannter Aktivität.

7.2 Geräte

- Probeentnahmesystem mit Sonden, Probeentnahmeleitungen, Luftfördergeräten (Pumpen) und Volumenstrommessgeräten;
- Messkammer aus Aluminium oder Edelstahl mit einigen zehn Litern Volumen und Tasche für Halbleiterdetektor sowie Bleiabschirmung, ca. 2 cm bis 10 cm dick;
- Halbleiterdetektor (vorzugsweise Reinstgermaniumdetektor), Hochspannungs- und Spannungsversorgung, Verstärker, Vielkanalanalysator, Rechner und Auswertesoftware;
- Kalibriervorrichtung entsprechend dem Verfahren J- β -GESAMT-ALUFT-01;
- Vorrichtung zur Einbringung eines gammastrahlenden Prüfstrahlers.

Literatur

- (1) Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 Messung und Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe; Messung und Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminabluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb. Köln: Carl Heymanns Verlag. 2002-06
- (2) Norm DIN 25423 Teil 3 Probenahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft: Probenahmeverfahren. 1987-03
Hinweis: Diese Norm wird voraussichtlich im Jahre 2009 durch die Norm DIN ISO 2889 ersetzt.
- (3) Vogl, K.: Rechnerische Abschätzung der Aerosolpartikelverluste in Probeentnahmesystemen bei kerntechnischen Anlagen: Physikalische Modelle, Vorgehensweise, Ergebnisse und weitere Ausblicke. Bericht der Fachbereiches Strahlenschutz des BfS, 1992, ST2-32/1992
- (4) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (5) Gesewsky, P.: Die Eignung von Membranfiltern zur Aerosolüberwachung in kerntechnischen Anlagen in Gegenüberstellung zu Glasfaserfiltern. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1985, ABE-139
- (6) Winkelmann, I.: Kalibrierung der Edelgas-Messstellen im Kernkraftwerk Isar. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1978
- (7) Gesewsky, P., Faleschini, J.: Kalibrierung der Edelgas-Messstellen im Kernkraftwerk Grafenrheinfeld. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1982, ABE-48
- (8) Gesewsky, P., Endrulat, H.-J.: Kalibrierung von Edelgas-Messstellen (Messkammer SB150, fahrbarer Monitor SEM 1000, Hochaktivitäts-Messstelle PIA, nuklidspezifische Messanlage) im Kernkraftwerk Isar 2. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1988, ABE-285
- (9) Deller, A.: Verfahren zur Messung von Emissionen und Immissionen künstlicher radioaktiver Edelgase aus kerntechnischen Anlagen. Diplomarbeit Fachhochschule München, 1992
- (10) Brummer, C., Deller, A., Mundigl, S.: Transportables Messsystem zur kontinuierlichen nuklidspezifischen Bestimmung von radioaktiven Edelgasen. Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz