

**Verfahren zur
gammaspectrometrischen Bestimmung der
mittleren Aktivitätskonzentrationen von
aerosolpartikelgetragenen Radionukliden
in der Fortluft kerntechnischer Anlagen**

J- γ -SPEKT-ALUFT-03

Bearbeiter:

K. Vogl

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

Verfahren zur gammaskpektrometrischen Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentrationen von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden in der Fortluft kerntechnischer Anlagen

1 Anwendbarkeit

Das Verfahren eignet sich zur nuklidspezifischen Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen von aerosolpartikelgetragenen gammastrahlenden Radionukliden in der Fortluft von kerntechnischen Anlagen. In Tabelle 1 sind die Radionuklide zusammengestellt, deren Aktivitätskonzentrationen gemäß den Anforderungen der Sicherheitstechnischen Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 zu berücksichtigen sind (1).

2 Probeentnahme

2.1 Allgemeines zur Probeentnahme von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden bei kerntechnischen Anlagen

Die aerosolpartikelgetragenen gammastrahlenden Radionuklide werden aus einem Teilluftstrom der Abluft oder Fortluft auf einem Schwebstofffilter abgeschieden (1, 2). Bei Probeentnahme nach den Anforderungen der Sicherheitstechnischen Regel KTA 1503.1 sind die Schwebstofffilter wöchentlich zu wechseln (1). Die einzelnen Proben können für die Messung der mittleren Aktivitätskonzentration zu Quartalsproben zusammengefasst werden.

Die Abluft aus Anlagenteilen oder die Fortluft aus kerntechnischen Anlagen wird in rechteckigen oder runden Kanälen mit Durchmessern von einigen 10 cm bis zu etwa 4 m bei Strömungsgeschwindigkeiten von $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ bis $20 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ geführt (3). Wegen der gerichteten Strömung und der großen Strömungsgeschwindigkeit soll der Teilluftstrom aus diesen Kanälen, im Gegensatz zur Probeentnahme aus der Raumluft oder der Umgebungsluft, nach Möglichkeit mit Hilfe von Probeentnahmesonden isokinetisch entnommen werden. Isokinetisch bedeutet, dass die Eintrittsgeschwindigkeit der Luft in die Probeentnahmesonde mit der Geschwindigkeit der Abluft oder Fortluft an dieser Stelle übereinstimmt.

2.2 Verteilung der Aktivität über dem Aerosolpartikeldurchmesser

Die Verteilung der Aktivität einzelner aerosolpartikelgetragener Radionuklide über dem Aerosolpartikeldurchmesser in der Fortluft von Kernkraftwerken, aber auch von anderen kerntechnischen Anlagen, wurde von einigen Autoren bestimmt (3 bis 7). Die Abbildungen 1 und 2 zeigen beispielhaft einige gemessene Aktivitätsverteilungen. Diese Aktivitätsverteilungen hängen vom Entstehungsort und -mechanismus der Aerosolpartikeln ab und sind daher auch für die einzelnen Radionuklide unterschiedlich. Gasförmige oder flüchtige radioaktive Stoffe, wie z. B. gasförmige Iodverbindungen, aber auch Radionuklide in elementarer Form, wie z. B. Be-7, Ba-140, La-140 und Radonfolgeprodukte, lagern sich bevorzugt an die Oberfläche von kleinen Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser (AED) von etwa 0,1 μm bis 0,8 μm an. Die Verteilung der Aktivität über dem aerodynamischen Aerosolpartikeldurchmesser entspricht in diesem Fall einer unimodalen logarithmischen Normalverteilung. Die Verteilung der Aktivität von Radionukliden, die durch Aktivierung entstehen, wie z. B. Mn-54 und Co-60, und als größere Teilchen, z. B. durch Abrieb, freigesetzt werden, kann dagegen im Allgemeinen gut durch eine bimodale Verteilung als Superposition zweier logarithmischer Normalverteilungen mit einem ersten geometrischen Mittelwert bei etwa 0,5 μm und einem zweiten geometrischen Mittelwert zwischen 2 μm und 5 μm und mit geometrischen Standardabweichungen zwischen 2 und 4 beschrieben werden.

In der Raumluft und Abluft von Betrieben, die Kernbrennstoff verarbeiten, und bei Revisionen in Kernkraftwerken liegen die Medianwerte der Aktivitätsverteilung über dem Aerosolpartikeldurchmesser zwischen 1 μm und 20 μm (8). Infolge von Filterung dieser Luftströme beträgt der Medianwert der Aktivitätsverteilung über dem Aerosolpartikeldurchmesser in der Fortluft nur einige μm .

Die Aktivitätsverteilungen unterscheiden sich bei den einzelnen kerntechnischen Anlagen, aber auch für verschiedene Zeitpunkte bei einer einzelnen Anlage. Trotz dieser Variationen folgt aus den bisher durchgeführten Messungen der Aktivitätsverteilung über dem Aerosolpartikeldurchmesser, dass die Aktivität beim bestimmungsgemäßen Betrieb überwiegend an Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser von 0,1 μm bis 20 μm gebunden ist. Theoretische Betrachtungen und Laborexperimente lassen erwarten, dass sich die Verteilung der Aktivität über dem Aerosolpartikeldurchmesser auch bei Störfällen nur unwesentlich nach größeren Aerosolpartikeln verschiebt (9). Für die repräsentative Probeentnahme der aerosolpartikelgetragenen Radionuklide in der Fortluft sind daher in erster Linie Aerosolpartikeln mit einem Durchmesser zwischen 0,1 μm und 20 μm von Bedeutung.

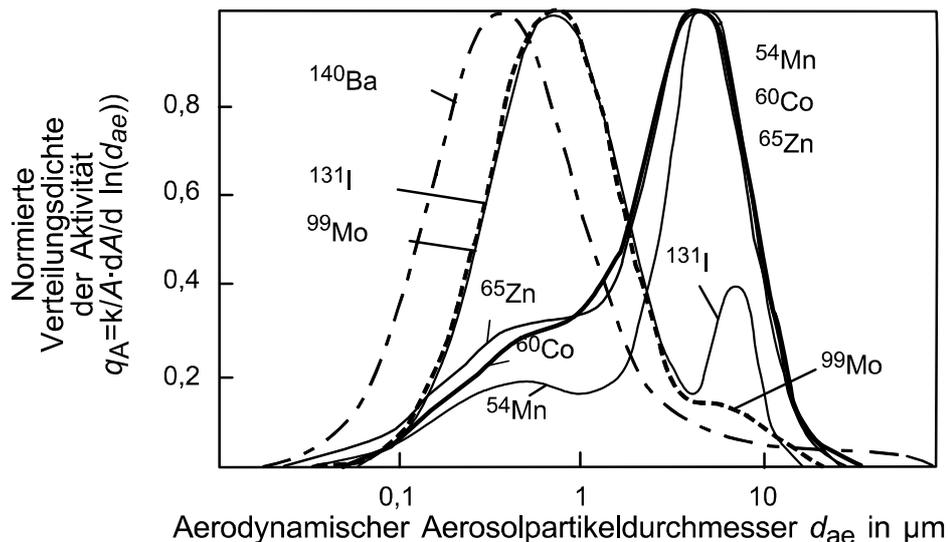


Abb. 1: Gemessene Verteilung der Aktivität einiger Radionuklide über dem Aerosolpartikeldurchmesser, nach (5)

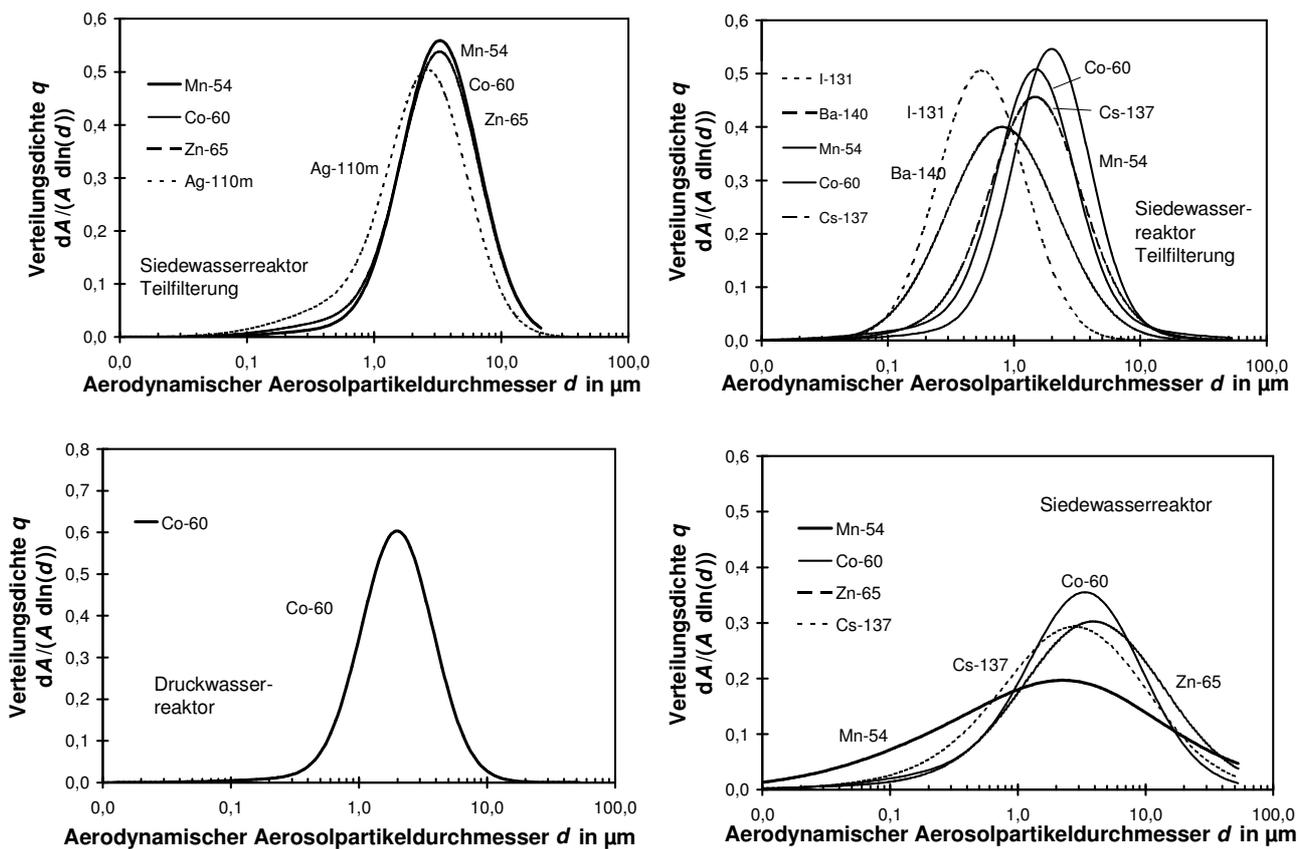


Abb. 2: Gemessene Verteilung der Aktivität einiger Radionuklide über dem Aerosolpartikeldurchmesser, nach (3, 7)

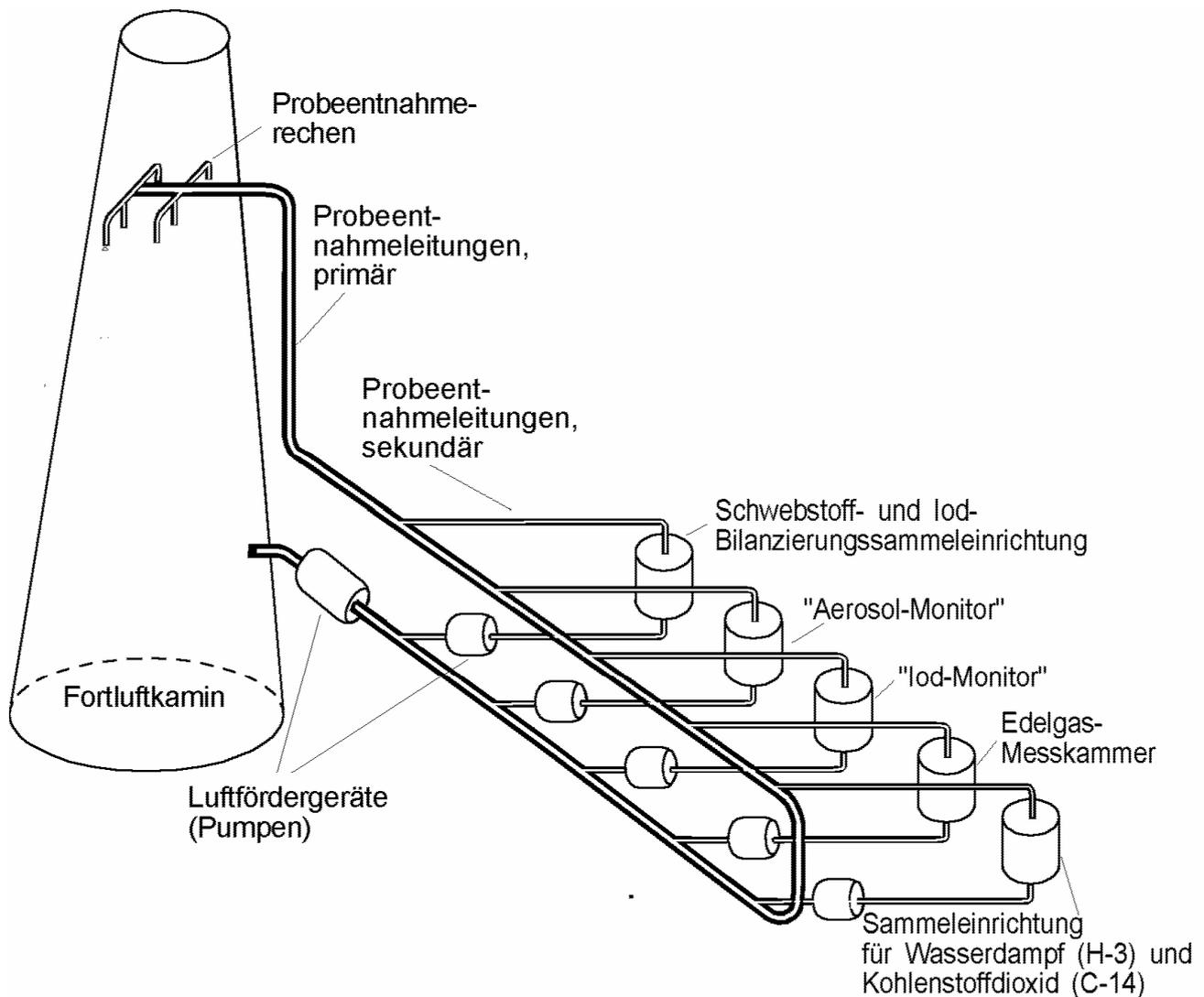
2.3 Verfahren der Probeentnahme und Auslegung von Probentahmemeinrichtungen

Aus dem Abluft- bzw. Fortluftkanal wird ein Teilluftstrom mit einem Volumenstrom von ca. $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ bis $150 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ mittels einer oder mehrerer Probeentnahmesonden, die zu einem Probeentnahmerechen zusammengefasst sind, entnommen (2, 3, 10). Der Probeentnahmeort muss so gewählt werden, dass die Probeentnahme möglichst repräsentativ für die mittlere Aktivitätskonzentration in der Abluft oder Fortluft ist. Geeignet sind insbesondere Orte, an denen die Verteilung der Strömungsgeschwindigkeit und der Aktivitätskonzentrationen über den Kanalquerschnitt relativ gleichförmig sind.

Die Entnahme sollte nach Möglichkeit annähernd isokinetisch erfolgen, um bei der Probeentnahme von aerosolpartikelgetragenen Radionukliden eine unterschiedliche Entnahme von großen und kleinen Aerosolpartikeln und damit eine Veränderung der Partikelgrößen- und Aktivitätsverteilung zu vermeiden. Wenn die Verteilung der Aktivitätskonzentration und der Strömungsgeschwindigkeit über dem Kanalquerschnitt am Probeentnahmeort nicht homogen ist und deshalb die Massenflüsse an den einzelnen Probeentnahmestellen (Probeentnahmesonden) unterschiedlich sind, ist nicht nur bei aerosolpartikelgetragenen, sondern auch bei gasförmigen radioaktiven Stoffen eine annähernd isokinetische Probeentnahme angebracht (11).

Der Teilluftstrom wird zu den meist mehrere Meter entfernten Sammeleinrichtungen und Monitoren geleitet. Üblicherweise wird eine Primär-Sekundär-Probeentnahmeeinrichtung benutzt, bei dem aus der primären Probeentnahmeleitung, die einen Innendurchmesser von 40 mm bis 100 mm aufweist, mittels sekundärer Probeentnahmesonden kleinere, den Sammeleinrichtungen und Monitoren angepasste Teilluftströme mit Volumenströmen von $1 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ bis $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ isokinetisch entnommen und über sekundäre Probeentnahmeleitungen mit einem Innendurchmesser von 20 mm bis 35 mm den Sammeleinrichtungen und Monitoren zugeführt werden. Abbildung 3 zeigt ein Schema einer solchen Anordnung.

Einzelheiten zur Ausführung einer Probeentnahmeeinrichtung können der Literatur (2, 3, 10) entnommen werden. Nach diesen Empfehlungen sollten die Leitungen der Probeentnahmeeinrichtung einen Innendurchmesser von mindestens 20 mm besitzen und möglichst kurz sein. Zudem sollten sie nur wenige Krümmungen mit einem Krümmungsradius von mindestens dem dreifachen Rohrdurchmesser aufweisen. Die horizontale Anordnung von Rohren oder Durchmesseränderungen sollten ebenso wie Änderungen der Strömungsgeschwindigkeit vermieden werden. Notwendige Änderungen des Rohrdurchmessers sollten allmählich unter einem Winkel von 3° bis 5° erfolgen. Am besten geeignet sind Rohrleitungen aus poliertem Edelstahl. Kunststoffe sollen wegen möglicher elektrostatischer Abscheidung von kleinen Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser (AED) unter $1 \mu\text{m}$ nicht verwendet werden. Die Rohrleitungen müssen innen glatt sein und dürfen keine Kanten aufweisen. Schweißnähte bei Verbindungen von Rohrteilen müssen geglättet sein. Verbindungen können auch mit Flanschen (z. B. Kleinflansche) oder Verbindern, bei denen die Rohrteile stumpf aufeinanderstoßen, hergestellt werden. Die Rohrleitungen sollten üblicherweise auf etwa 50°C bis 100°C aufheizbar sein, um eine Kondensation von Wasserdampf und damit einhergehende Abscheidung von Aerosolpartikeln zu verhindern.

Abb. 3: Schematische Darstellung einer Probeentnahmeeinrichtung der Fortluft

kerntechnischer Anlagen

Als Luftfördereinrichtungen sind vor allem im primären Teil der Probeentnahmeeinrichtung wartungsfreie und langlebige Seitenkanalverdichter geeignet. Für das sekundäre Probeentnahmesystem können auch Drehschieberpumpen oder Wälzkolbenpumpen verwendet werden. Die Volumenströme in den primären und sekundären Probeentnahmeleitungen und durch die Sammeleinrichtungen und Monitoren werden konstant gehalten. Dies erfolgt üblicherweise durch Regelung der Motorleistung der Luftfördergeräte, durch unterschiedliche Fremdluftzufuhr oder durch Einsatz einer kritischen Düse.

Für die Berechnung der Aktivitätskonzentration muss der Luftdurchsatz durch das Schwebstofffilter der Sammeleinrichtungen oder Monitoren bekannt sein. Um verschiedene Messungen vergleichen zu können, sollte der Luftdurchsatz auf Normalbedingungen umgerechnet werden. Neben dem Luftdurchsatz müssen zur Bilanzierung der Abgabe von luftgetragenen radioaktiven Stoffen auch die Volumenströme der Abluft oder Fortluft und für die isokinetische Probeentnahme die Volumenströme in den Rohrleitungen und Probeentnahmesonden bekannt sein. Der Volumenstrom oder der Luftdurchsatz durch den Schwebstofffilter wird üblicherweise hinter diesem bestimmt. Der Volumenstrom im Abluft- oder Fortluftkanal wird meist mit Flügelradanemometern, Venturidurchflussmessern oder Staudruckmessern ermittelt. Zur Messung der Volumenströme in den Probeentnahmeleitungen werden meist Turbinen-, Venturi- oder Blendendurchflussmesser, seltener Hitzedrahtanemometer oder Massendurchflussmesser, bei der sekundären Probeentnahmeleitung bisweilen auch Schwebekörperdurchflussmesser oder Gasuhren in Trockenbauweise (Balgengasuhren) zur Bestimmung des Luftdurchsatzes benutzt.

Die Radionuklide tragenden Aerosolpartikeln werden in den Sammeleinrichtungen auf Schwebstofffiltern mit einem Abscheidegrad über 0,995 für Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser von 0,3 μm , z. B. HEPA-Filtern H12 gemäß der Norm DIN EN 1822, abgeschieden (12). Als Schwebstofffiltertyp kommen prinzipiell Tiefenfilter wie Faserfilter (z. B. Glasfaserfilter) mit und ohne organische Bindemittel oder Oberflächenfilter wie Membranfilter aus Cellulosenitrat oder Celluloseacetat oder Teflonmembranfilter mit Nylonstützgewebe, das die mechanische Festigkeit verbessert, in Frage (13). Der Porendurchmesser der Membranfilter sollte 4 μm bis 8 μm betragen (13). Für die Sammeleinrichtung von Aerosolpartikeln ist ein geringer und konstanter Strömungswiderstand von Vorteil, wie er bei Faserfiltern gegeben ist. Sollen auch die Aktivitätskonzentrationen von alphastrahlenden Radionukliden gemessen werden, ist den Membranfiltern wegen der geringeren Absorption der Alphastrahlen infolge der Sammlung an der Schwebstofffilteroberfläche der Vorzug vor den Faserfiltern zu geben. Bei hohen Aktivitätskonzentrationen an gasförmigen Iodverbindungen und Edelgasen sollten Schwebstofffilter benutzt werden, die diese Stoffe wenig adsorbieren. Geeignet sind hierfür Glasfaserfilter ohne organische Bindemittel oder Teflonmembranfilter.

Bei den üblichen Volumenströmen von einigen $\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ sind Schwebstofffilter mit Durchmessern von 40 mm bis 150 mm geeignet.

Der Schwebstofffilterhalter muss aus einem korrosionsfesten und dekontaminierbaren Material, wie z. B. Edelstahl, bestehen und sollte einen kreisförmigen Querschnitt aufweisen. Die Unterlage des Schwebstofffilters sollte möglichst fest, glatt sowie frei von Kanten und Graten sein, die den Schwebstofffilter beschädigen könnten. Eine Metall- oder Kunststoffritze mit einem Porendurchmesser von ca. 200 μm bis 400 μm ist besser geeignet als ein Drahtgitter. Der Rand des Schwebstofffilters wird mit einer Schraub- oder besser Hebelvorrichtung, die für einen leichten und schonenden Wechsel des Schwebstofffilters besser geeignet ist, fest und gleichmäßig an den Rand des Filterhalters gepresst und dort durch plan geschliffene, glatte Metallflächen des Filterhalters oder gegebenenfalls durch Gummi- oder Teflonringe abgedichtet. Die Dichtheit der Anordnung sollte regelmäßig, z. B. in jedem Quartal, überprüft werden; der Leckluftstrom darf dabei nur wenige Prozent des Teilluftstromes betragen.

2.4 Probleme bei der Probeentnahme

Bei der Probeentnahme werden die aktivitätstragenden Aerosolpartikeln in der Regel nicht repräsentativ erfasst; zudem werden Aerosolpartikeln und damit Aktivität an den Wänden der Probeentnahmesonden und -leitungen abgeschieden. Daher stimmt die Aktivitätskonzentration, die aus der auf dem Schwebstofffilter abgeschiedenen Aktivität und dem Luftdurchsatz berechnet wird, mit der tatsächlichen Aktivitätskonzentration in der Abluft oder Fortluft nicht überein und ist zu korrigieren. Der Korrektionsfaktor wird als Gesamtverlustfaktor bezeichnet und ist das Verhältnis der mittleren Aktivitätskonzentration in der Abluft oder Fortluft und der Aktivitätskonzentration beim Schwebstofffilter (1). Das Verhältnis der Aktivitätskonzentration in den Öffnungen der Probeentnahmesonden und der Aktivitätskonzentration am Ende der Probeentnahmeleitungen vor der Sammeleinrichtung oder dem Monitor wird als Rohrfaktor bezeichnet (1, 3).

Veränderungen der Aktivitätskonzentration und Aerosolpartikelgrößenverteilung oder Aktivitätsverluste entstehen durch Effekte, die im Folgenden beschrieben sind (3). Zusätzlich wird dargelegt, wie diese Effekte reduziert werden können.

2.4.1 Nichtrepräsentative Probeentnahme

Die Werte von Strömungsgeschwindigkeit und Aktivitätskonzentration können über den Querschnitt des Kanals unter Umständen sehr variieren. Für eine repräsentive Probeentnahme ist es günstig, die Abweichungen dieser Größen von Mittelwerten möglichst gering zu halten. Um dies zu erreichen wird empfohlen, die Probeentnahme erst in hinreichend großer Entfernung von Krümmungen oder Einmündungen vorzunehmen (2, 3, 10). Ist dies nicht möglich, sollten möglichst gleichförmige Verteilungen von Strömungsgeschwindigkeit und Aktivitätskonzentrationen über dem Probeentnahmequerschnitt durch zusätzliche Einbauten wie Mischer, Verwirbler und Strömungsleitbleche erzielt werden.

Üblicherweise sind mehrere Probeentnahmesonden, die über den Probeentnahmequerschnitt des Kanals verteilt sind, einzusetzen (2, 3, 10). Aufgrund der Erfahrungen des Autors (3) wird jedoch entgegen den Aussagen in der Literatur (2) geraten, auch bei runden Kanälen die Probeentnahmesonden nicht nur auf einer Linie, sondern zumindest auf zwei senkrecht zueinander verlaufenden Linien anzuordnen.

10 bis 20 über den Probeentnahmequerschnitt verteilte Probeentnahmesonden sind für eine hinreichend repräsentative Probeentnahme ausreichend. Bei der Auslegung der Probeentnahmesonden ist darauf zu achten, dass die Eintrittsöffnungen der Probeentnahmesonden zur Vermeidung von Abscheideverlusten nicht kleiner als 3 mm sein sollten (3).

2.4.2 Anisokinetische Probeentnahme

Ist die Eintrittsgeschwindigkeit in die Probeentnahmesonde nach Betrag und Richtung von der Strömungsgeschwindigkeit in der Umgebung der Probeentnahmesonde verschieden, werden Aerosolpartikeln mit einem Durchmesser (AED) über 1 μm gegenüber kleineren Aerosolpartikeln bevorzugt oder benachteiligt aus dem Hauptluftstrom entnommen (3). Dieser Sachverhalt ist schematisch in Abbildung 4 dargestellt.

Für den gemäß Abschnitt 2.2 interessanten Bereich des Aerosolpartikeldurchmessers ist die Unsicherheit bei der Bestimmung mit einigen Prozent jedoch gering und vernachlässigbar, sofern die Eintrittsgeschwindigkeit in die Probeentnahmesonde bis zu 50 % mehr oder weniger als die Strömungsgeschwindigkeit in der Umgebung der Probeentnahmesonde beträgt (Abbildung 5) (3). Eine etwas geringere Eintrittsgeschwindigkeit und unter-isokinetische Probeentnahme ist unter Umständen vorzuziehen (3).

2.4.3 Abscheideverluste von Aerosolpartikeln an den Wänden der Probeentnahmeleitungen

Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Durchmesser über 1 μm werden durch Sedimentation in waagerechten Probeentnahmeleitungen, durch Impaktion in Krümmungen der Probeentnahmeleitungen und durch Trägheitsabscheidung aus turbulenter Strömung insbesondere in dünnen Probeentnahmeleitungen und bei Strömungsgeschwindigkeiten über 5 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ an die Rohrwand transportiert und können dort abgeschieden werden (Abbildung 6). Abscheideverluste von kleinen Aerosolpartikeln mit einem Durchmesser unter 0,1 μm infolge von Diffusion aus laminarer oder turbulenter Strömung sind dagegen üblicherweise vernachlässigbar. Werden für die Probeentnahmeleitungen nichtleitende Materialien, wie z. B. PVC oder Polyethylen, verwendet, können möglicherweise Aerosolpartikeln mit einem Durchmesser unter 1 μm durch elektrostatische Kräfte abgeschieden werden.

Theoretische Betrachtungen und Modelle werden in der Literatur (3, 14, 15) beschrieben. Abbildung 7 zeigt berechnete Abscheidegrade von Aerosolpartikeln in Rohrleitungen infolge von Impaktion, Sedimentation und turbulenter Abscheidung (3). Abbildung 8 zeigt beispielhaft den rechnerisch abgeschätzten und experimentell bestimmten Abscheidegrad von Aerosolpartikeln bei der Probeentnahme-einrichtung der Fortluftüberwachung eines Kernkraftwerkes (7, 16, 17).

Rechnerische Abschätzungen und Experimente zeigten, dass die geringsten Abscheideverluste von Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Aerosolpartikeldurchmesser bis 10 μm bei polierten Edelstahlleitungen mit einem Innendurchmesser von 35 mm bis 100 mm und Strömungsgeschwindigkeiten von 3 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ bis 5 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ auftreten (3, 7, 16, 17). Zur Probeentnahme von radioaktiven Stoffen, die nur auf Aerosolpartikeln mit einem aerodynamischen Aerosolpartikeldurchmesser über 20 μm vorliegen, sind höhere Strömungsgeschwindigkeiten bis zu 20 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ und Probeentnahmeleitungen, die hauptsächlich aus vertikalen Rohrteilen bestehen, geeignet (3).

2.4.4 Abscheideverluste von Aerosolpartikeln in Sammelgeräten und Monitoren

Außer in den Probeentnahmeleitungen können Aerosolpartikeln auch in den Sammel-einrichtungen und Monitoren an anderen Stellen als dem Schwebstofffilter abgeschieden werden. Diese Verluste lassen sich nur experimentell bestimmen. Mögliche Inhomogenitäten in der Beladung der Schwebstofffilter spielen keine wesentliche Rolle, solange die ganzen Schwebstofffilter zur Messung der Aktivität der Radionuklide herangezogen werden. Sie können jedoch einen Beitrag zur Messunsicherheit liefern, wenn nur Teile der Schwebstofffilter, z. B. bei Messungen nach (18), verwendet werden.

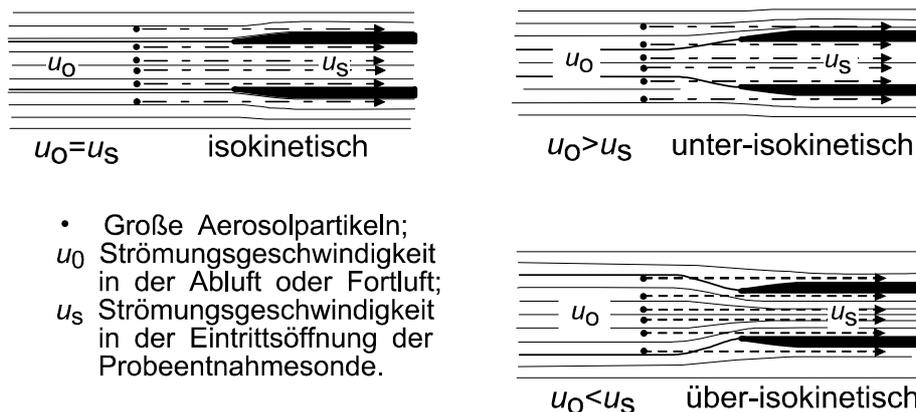


Abb. 4: Schematische Darstellung der isokinetischen und anisokinetischen Probeentnahme

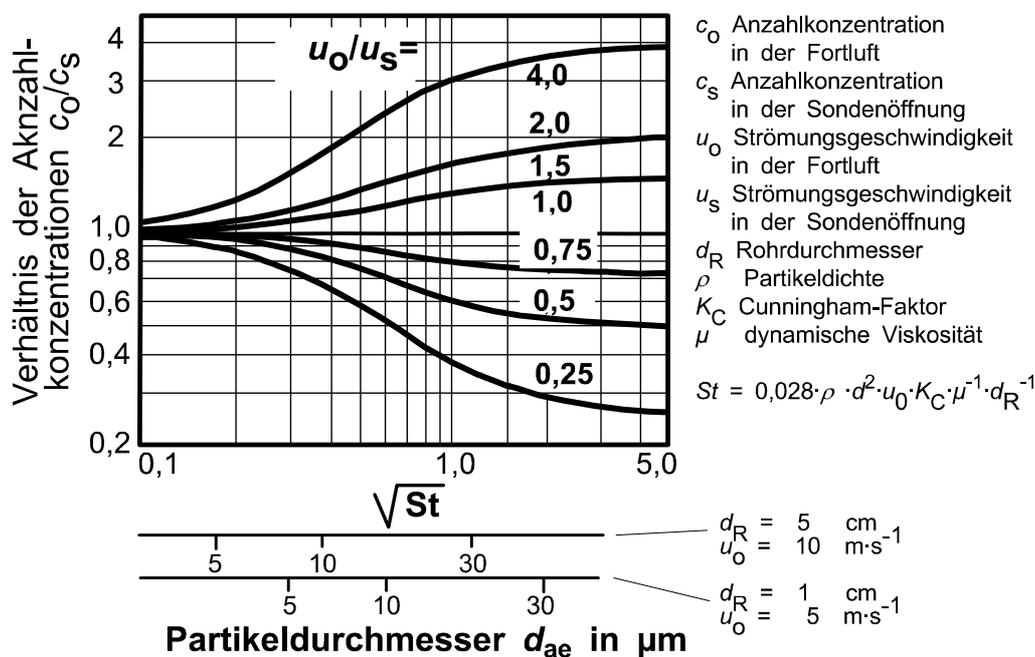


Abb. 5: Veränderung der Konzentrationen großer Aerosolpartikeln bei anisokinetischer Probeentnahme

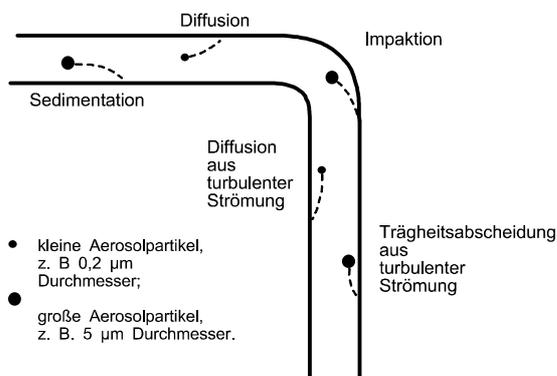
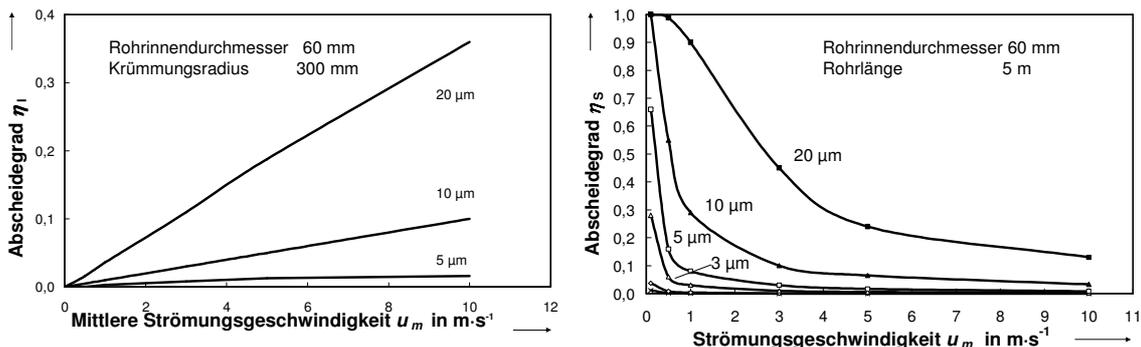
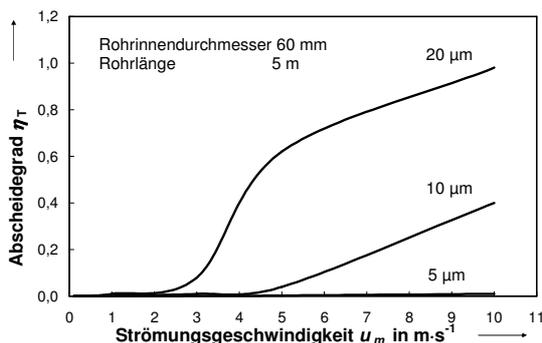


Abb. 6: Schematische Darstellung der Transport- und Abscheidemechanismen



Abschleideverluste durch Impaktion

Abschleideverluste durch Sedimentation



Abschleideverlust durch turbulente Abschleideung

Abb. 7: Beispiele für Abschleidegrade von Aerosolpartikeln in Rohrleitungen durch unterschiedliche Mechanismen, nach (3)

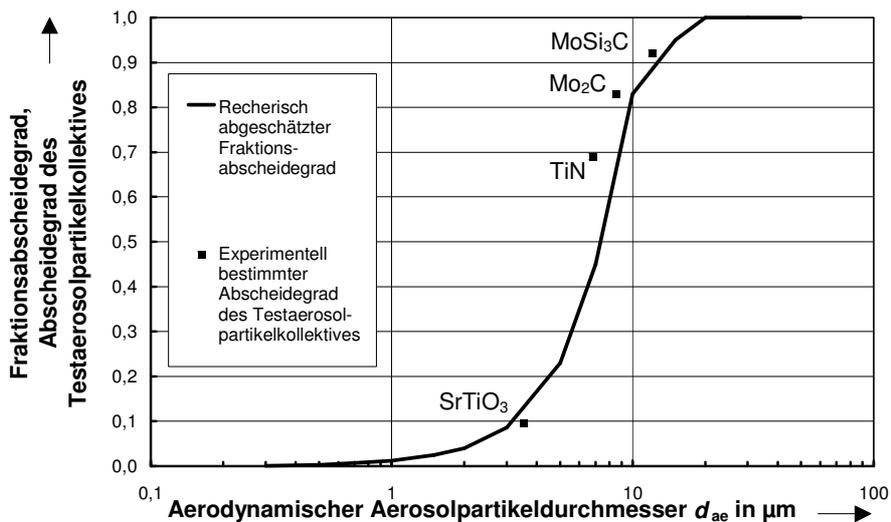


Abb. 8: Beispiel für rechnerisch abgeschätzte und experimentell bestimmte Abschleidegrade von Aerosolpartikeln in einer Probeentnahmeeinrichtung eines Kernkraftwerkes, nach (7, 16)

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Die Aktivitäten der Radionuklide auf den beaufschlagten Schwebstofffiltern werden ohne weitere Vorbereitung direkt mit einem großvolumigen Halbleiterdetektor (Reinstgermanium-Detektor) gammaspektrometrisch nuklidspezifisch gemessen.

3.2 Probenvorbereitung

Eine Probenvorbereitung entfällt.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Messverfahren

Über den Aufbau einer Gammaskpektrometrie-Messeinrichtung und die Durchführung und Auswertung der Messungen finden sich Hinweise und Anleitungen in den Kapiteln IV.1 bis IV.3 dieser Messanleitungen. Wegen der meist geringen Aktivität der Radionuklide auf den Schwebstofffiltern werden vorzugsweise Reinstgermanium-Detektoren verwendet, deren relative Ansprechwahrscheinlichkeiten bezogen auf einen 3" x 3" NaI(Tl)-Kristall zwischen 20 % und 60 % liegen und deren Halbwertsbreiten kleiner als 2,0 keV bezogen auf die 1332 keV-Gammalinie des Co-60 sind. Für diese Messaufgabe eignen sich auch p-type-Detektoren mit dünnen Frontkontakten, die insbesondere für Messpräparate bei kompakter Geometrie, wie z. B. Schwebstofffilter, eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit bei niedrigen Photonenenergien aufweisen. Damit können innerhalb praktikabler Messzeiten von 10 bis 20 Stunden die nach KTA 1503.1 geforderten Erkennungsgrenzen erreicht werden (1).

Um die Nulleffektzählrate zu reduzieren, müssen die Detektoren gegen die Höhen- und Umgebungsstrahlung abgeschirmt sein. So befindet sich beispielsweise bei den Messeinrichtungen des Fachbereiches Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz der Detektor im Inneren einer zylindrischen und oben geschlossenen Bleiabschirmung mit einem Durchmesser von etwa 50 cm und einer Wandstärke von 10 cm. Die innere Wand der Bleiabschirmung ist mit einem 1 mm dicken Kupferblech ausgekleidet. Auf der Vorderseite ist ein Spalt von ca. 20 cm ausgespart, der durch eine Schiebetüre aus Blei mit einer Wandstärke von 10 cm verschlossen wird.

Der Schwebstofffilter wird auf einen dünnen Halter aus Kunststoff gelegt, der z. B. aus einem Marinelli-Becher hergestellt sein kann (Abbildung 9). In die Oberseite des Halters sind konzentrische Kreise eingraviert, so dass Schwebstofffilter mit unterschiedlichen Durchmessern axial angeordnet und genau zentriert werden können. Auf den Schwebstofffilter wird eine Kunststoffscheibe mit einer Dicke von ca. 3 mm gelegt, um zu verhindern, dass sich der Schwebstofffilter verformt und

die Messgeometrie dadurch verändert wird. Zur Vermeidung einer Kontamination des Messplatzes sollte der Schwebstofffilter zwischen zwei dünne Kunststofffolien oder in eine Kunststofftüte gelegt werden.

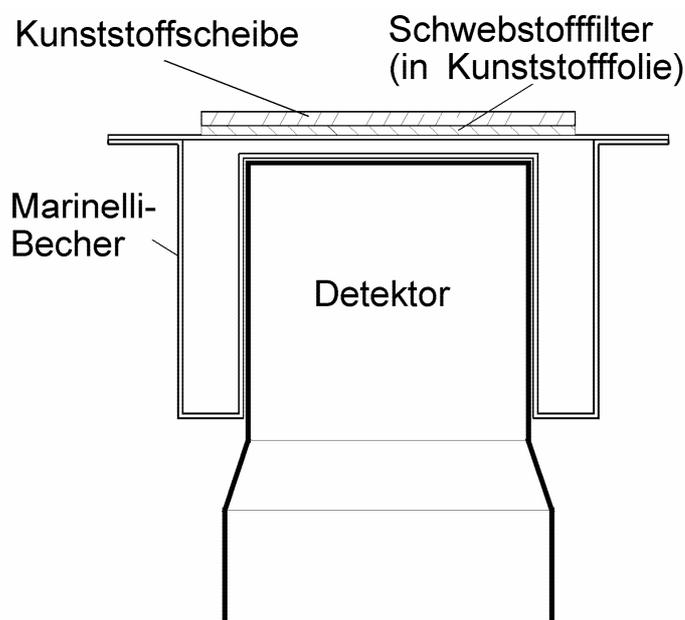


Abb. 9: Schematische Darstellung einer Messanordnung

4.2 Kalibrierung

Für die Kalibrierung der Messeinrichtung werden Schwebstofffilter möglichst desselben Typs und mit demselben Filterdurchmesser wie die zur Abscheidung der Aerosolpartikeln benutzten Schwebstofffilter verwendet, auf die gammastrahlende Radionuklide mit bekannter Aktivität und einen weiten Energiebereich überdeckender Gammastrahlungsenergien aufgebracht sind. Für einige Schwebstofffilterdurchmesser und Messgeometrien sind kalibrierte Messstandards, z. B. von der PTB, erhältlich. Andere speziell an das Messproblem angepasste Schwebstofffilter bekannter Aktivität lassen sich folgendermaßen herstellen: Schwebstofffilter, die möglichst vom selben Typ und Durchmesser wie die zur Probeentnahme verwendeten sind, werden auf eine Kunststoffolie gelegt. Auf die Schwebstofffilter werden in gleichen Abständen möglichst homogen über die bestaubte Fläche verteilt bekannte Aktivitäten von gammastrahlenden Radionukliden aufgegeben. Dazu werden zertifizierte Lösungen von gammastrahlenden Radionukliden auf Aktivitätskonzentrationen von einigen $100 \text{ Bq} \cdot \text{ml}^{-1}$ verdünnt. Auf den Schwebstofffilter werden 20 bis 60 Punkte gleichmäßig über die Fläche verteilt als hexagonales oder quadratisches Netz aufgezeichnet. Auf jeden Punkt wird aus einer μl -Pipette jeweils ein Tropfen gleichen Volumens der Lösungen aufgegeben. Der so präparierte Schwebstofffilter wird in derselben Messgeometrie wie die Messproben gemessen. Wie im Kapitel IV.1, Abschnitt 4.2.2, dieser Messanleitungen beschrieben wird die energieabhängige Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Dabei ist auf mögliche Summationseffekte zu achten.

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Aus dem aufgenommenen Spektrum werden die Lagen und Inhalte der Linien, wie in Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen beschrieben, mit Hilfe eines Rechners ermittelt. Die Linien werden mittels einer Radionukliddatei einzelnen Radionukliden zugeordnet und mit deren Radionuklidaten und den Daten über Probeentnahmedauer, Luftdurchsatz und Messdauer die Aktivitätskonzentration dieser Radionuklide gemäß den Gleichungen (1) bis (4) berechnet. Sind die Halbwertszeiten der Radionuklide kleiner als etwa einige Monate, muss der Messwert bezüglich der Probeentnahmedauer, des Abklingzeitraumes und der Messdauer korrigiert werden. Bei hohen Nachweiswahrscheinlichkeiten infolge eines großen Detektorvolumens und eines geringen Abstandes von Messpräparat und Detektor sind auch Summationskorrekturen vorzunehmen (siehe Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen).

$$c_r = \frac{N_{n,r} \cdot q}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot p_{\gamma,r} \cdot t_m \cdot V} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot f_4 \quad (1)$$

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

$$f_3 = e^{\lambda_r \cdot t_A} \quad (3)$$

$$f_4 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{(1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m})} \quad (4)$$

Die relative Standardmessunsicherheit $s(c) \cdot c^{-1}$ der Aktivitätskonzentration beträgt nach Gleichung (5):

$$\frac{s(c_r)}{c_r} = \sqrt{\left(\frac{s(N_{n,r})}{N_{n,r}}\right)^2 + \left(\frac{s(\varepsilon(E_\gamma))}{\varepsilon(E_\gamma)}\right)^2} \quad (5)$$

Bei den Gleichungen (1) bis (5) bedeuten:

c_r	Aktivitätskonzentration des Radionuklides r in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
$N_{n,r}$	Nettoimpulsanzahl des Radionuklides r ;
$p_{\gamma,r}$	Emissionswahrscheinlichkeit des Radionuklides r ;
f_1	Korrektionsfaktor für Summationseffekt (siehe Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen);
f_2	Korrektionsfaktor für das Abklingen der Aktivität während der Probeentnahme;
f_3	Korrektionsfaktor für das Abklingen der Aktivität zwischen Ende der Probeentnahme und Messbeginn;
f_4	Korrektionsfaktor für das Abklingen der Aktivität während des Messens;
q	Gesamtverlustfaktor;
t_s	Probeentnahmedauer in s;
t_A	Abklingzeitraum von Ende der Probeentnahme bis zum Messbeginn in s;
t_m	Messdauer in s;
$\varepsilon(E_\gamma)$	Nachweiswahrscheinlichkeit für Gammastrahlung der Energie E_γ in $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$;
λ_r	Zerfallskonstante des Nuklides r in s^{-1} ;
V	Luftdurchsatz in m^3 ;
$s(c_r)$	Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
$s(N_{n,r})$	Standardmessunsicherheit der Nettoimpulsanzahl;
$s(\varepsilon(E_\gamma))$	Standardmessunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit in $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$.

5.2 Rechenbeispiel

Als Beispiel wird die Aktivitätskonzentration von Cs-137 berechnet. Aus der Fortluft eines Kernkraftwerkes wurde ein Teilluftstrom mit einem Durchsatz von 200 m^3 durch einen Schwebstofffilter über einen Zeitraum von einer Woche geleitet. Die Aktivität von Cs-137 auf dem Schwebstofffilter wurde fünfzig Tage nach Ende der Probeentnahme gemessen.

Nach der Messung liegen daher für die Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Cs-137 folgende Daten vor:

$N_{n,\text{Cs-137}}$	= 1250;	$\varepsilon(E_\gamma)$	= $8\cdot 10^{-3} \text{ Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$;
t_s	= 691200 s;	t_A	= 4320000 s;
t_m	= 60000 s;		
$p_{\text{Cs-137}}$	= 0,851;	$\lambda_{\text{Cs-137}}$	= $7,2\cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$;
V	= 200 m^3 ;	q	= 1,2.

Mit den oben genannten Werten liefern die Gleichungen (1) bis (4) folgende Resultate:

$$f_1 = 1 \qquad f_2 = 1,0002$$

$$f_3 = 1,0031 \qquad f_4 = 1$$

$$c_{\text{Cs-137}} = \frac{1250 \cdot 1,2}{0,008 \cdot 0,851 \cdot 60000 \cdot 200} \cdot 1 \cdot 1,0002 \cdot 1,0031 \cdot 1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} =$$

$$= 1,84 \cdot 10^{-2} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 18,4 \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Im obigen Beispiel beträgt der Wert der relativen Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration bei einer relativen Standardmessunsicherheit der Nettoimpulsanzahl von 3 % und der relativen Standardunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit von 5 %:

$$\frac{s(c_{\text{Cs-137}})}{c_{\text{Cs-137}}} = \sqrt{0,03^2 + 0,05^2} = \sqrt{0,0034} = 0,058$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration von Cs-137 in der Fortluft ist demnach:

$$c_{\text{Cs-137}} = (18,4 \pm 1,1) \text{ mBq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration rührt hauptsächlich von der zählstatistischen Standardmessunsicherheit der Nettoimpulsanzahl und von der Standardmessunsicherheit bei der Bestimmung der energieabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeit her. Die anderen Beiträge zur Standardmessunsicherheit können demgegenüber vernachlässigt werden.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Zum Ermitteln der Nachweisgrenze wird die Gleichung 2.13 des Kapitels IV.5, Abschnitt 2.2, dieser Messanleitungen herangezogen. Die Nachweisgrenze g der Aktivitätskonzentration c wird nach Gleichung (6) berechnet:

$$g_r = \frac{f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot f_4 \cdot q}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot p_{\gamma,r} \cdot V} \cdot \frac{(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})}{2 \cdot t_m} \cdot \left(k_{1-\alpha} + \sqrt{k_{1-\alpha}^2 + 4 \cdot b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma) \cdot t_m \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right)} \right) \quad (6)$$

In Gleichung (6) bedeuten:

- $\bar{R}_0(E_\gamma)$ mittlere Nulleffektzählrate der Linie pro Kanal;
- b Fußbreite einer Gammalinie (Peakfußbreite) in Anzahl der Kanäle;
- L Anzahl der zur Untergrundbestimmung verwendeten Kanäle auf einer Seite der Linie;
- $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$ Quantile.

6.2 Rechenbeispiel

Für das obige Beispiel beträgt die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration gemäß Gleichung (6) bei einer Linienfußbreite von fünf Kanälen, einer Kanalbreite für die Untergrundbestimmung von zwei Kanälen, einer mittleren Nulleffektzählrate pro Kanal von $0,0001 \text{ s}^{-1}$ und einer Messdauer von 60000 s mit den Werten für die Quantile $k_{1-\alpha} = 3, k_{1-\beta} = 1,645$:

$$\begin{aligned} g_{\text{Cs-137}} &= \frac{1 \cdot 1,0002 \cdot 1,0031 \cdot 1 \cdot 1,2}{0,008 \cdot 0,851 \cdot 200} \cdot \frac{4,645}{2 \cdot 60000} \cdot \left(3 + \sqrt{3^2 + 4 \cdot 5 \cdot 0,0001 \cdot 60000 \cdot \left(1 + \frac{5}{2 \cdot 2}\right)} \right) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \\ &= 0,884 \cdot 0,0000387 \cdot (3 + \sqrt{279}) = 6,7 \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \end{aligned}$$

In Tabelle 1 sind die Nachweisgrenzen für die nach der Sicherheitstechnischen Regel KTA 1503.1 (1) zu berücksichtigenden Radionuklide bei unterschiedlicher Messdauer aufgeführt.

Tab. 1: Nachweisgrenzen der nach KTA 1503.1 zu bilanzierenden aerosolpartikelgetragenen gammastrahlenden Radionuklide, abhängig von der Messdauer

Radionuklid	Halbwertszeit in Tagen	Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration in $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$	
		Messdauer 3 Stunden	Messdauer 10 Tage
Cr-51	27,71	3000	500
Mn-54	312,30	280	50
Fe-59	44,53	800	100
Co-57	271,79	160	30
Co-58	70,86	300	50
Co-60	1925,50	310	50
Zn-65	244,26	610	100
Zr-95	64,09	510	100
Nb-95	34,98	410	70
Ru-103	39,27	310	60
Ru-106	372,60	2800	440
Ag-110m	249,79	380	70
Sb-124	60,20	740	120
I-131	8,02	780	170
Cs-134	754,28	300	50
Cs-137	11020	290	50
Ba-140	12,75	230	380
La-140	1,68	560	120
Ce-141	32,50	400	80
Ce-144	284,89	1300	230

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

- Lösungen von gammastrahlenden Radionukliden, rückführbar auf Aktivitätsnormale der PTB.

7.2 Geräte

- Schwebstofffilter mit Abscheidegrad größer als 0,995
z. B. Membranfilter mit mittleren Porendurchmessern zwischen 4 μm und 8 μm oder Glasfaserfilter;
- Halter für Schwebstofffilter;
- Kunststoffdeckel;
- Probeentnahmeeinrichtung mit Probeentnahmesonden, Probeentnahmerechen, Probeentnahmeleitungen, Sammeleinrichtung, Luftfördergeräten, Luftdurchsatz- und Volumenstrommessern;
- Gammaskpektrometrie-Messeinrichtung mit Halbleiterdetektor (Reinstgermanium-Detektor), Elektronik, Vielkanalanalysator und Auswerteeinheit.

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) Morawietz, G., Schless, D.: Messung von Aerosolemissionen aus Kernkraftwerken. Fraunhofer-Institut für Toxikologie und Aerosolforschung, 1979
- (5) Becker, K. H., Reineking, A., Scheibel, H. G., Porstendörfer, J.: Measurements of Activity Size Distributions of Radioactive Aerosols from a Nuclear Power Plant. 6. Int. Congress of IRPA, Berlin, 1984
- (6) Ström, L.: The Measurement of Power Reactor Stack Releases under Accidental Conditions. Studsvik Report (NS-89)18, 1989

- (7) Vogl, K.: Aerosol Particle Losses in the Sampling Tubes of Nuclear Facilities: Assessment and Experimental Determination. J. Aerosol Sci. , 1994, Vol. 25, Suppl. 1, S. S265-S266
- (8) Dorrian, M.-D., Bailey, M. R.: Particle Size Distributions of Radioactive Aerosols measured in Workplaces. Radiation Protection Dosimetry, 1995, Vol. 60, Nr. 2, S. 119-133
- (9) Langhans, J.: Twodimensional Analysis of the Thermohydraulic and Aerosol Behaviour in the PHEBUS-FPTO Containment Vessel. J. Aerosol Sci. , 1994, Vol. 25, Suppl. 1, S. S89-S90
- (10) VDI 2066 Staubmessungen in strömenden Gasen; Gravimetrische Bestimmung der Staubbelastung. In: Verein deutscher Ingenieure (Hrsg.), VDI-Handbuch: Reinhaltung der Luft. Berlin: Beuth Verlag GmbH, 1975
- (11) Eickhoff, W., Quecke, C., Putz, W., Neumann, H.: Die Notwendigkeit der isokinetischen Probeentnahme von dampf- und gasförmigen Emissionen. Staub – Reinhaltung der Luft, 1980, Vol. 40, Nr. 3, S. 105
- (12) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (13) Gesewsky, P.: Die Eignung von Membranfiltern zur Aerosolüberwachung in kerntechnischen Anlagen in Gegenüberstellung zu Glasfaserfiltern. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1985, ABE-139
- (14) Wright, A. L.: Literature Survey of Aerosol and Iodine-Vapor Deposition Models relevant to TVA Radiation Monitor Sampling Line Conditions. ORNL-6461, 1998
- (15) Charuau, J.: Etude du depot des particules dans les conduits: Optimization des tubes de prelevement des aerosols radioactif. CEA-R-5158, 1982
- (16) Vogl, K.: Experimentelle Bestimmung der Abscheideverluste von Aerosolpartikeln und des Rohrfaktors bei kerntechnischen Anlagen. Bericht des Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz, 1992, ST 2-31/1992
- (17) Vogl, K.: Rechnerische und experimentelle Bestimmung der Aerosolpartikelverluste und des Rohrfaktors bei kerntechnischen Anlagen in der Bundesrepublik Deutschland. In: 9. Fachgespräch „Überwachung der Umweltradioaktivität“, Institut für Strahlenhygiene des Bundesamtes für Strahlenschutz, Oberschleißheim, 25. bis 27. April 1995
- (18) Richtlinie zur Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken. GMBI 1996, 9/10 , S. 247