

**Verfahren zur Bestimmung der
mittleren Aktivitätskonzentration
von Tritium
in der Fortluft kerntechnischer Anlagen**

J-H-3-ALUFT-01

Bearbeiter:

K. Vogl
P. Gesewsky[†]

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

Verfahren zur Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentration von Tritium in der Fortluft kerntechnischer Anlagen

1 Anwendbarkeit

Das nachfolgend beschriebene Verfahren eignet sich zur Bestimmung der mittleren Aktivitätskonzentration des Radionuklides Tritium (H-3) in der Fortluft von kerntechnischen Anlagen. Die Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Tritium als Wasserdampf erfolgt durch Messung kontinuierlich genommener Proben der Fortluft. Tritium in Form anderer gasförmiger Wasserstoffverbindungen, wie z. B. Wasserstoffgas (HT) oder Methan, können mit dem hier beschriebenen Verfahren ebenfalls bestimmt werden.

2 Probeentnahme

Tritium im Wasserdampf der Fortluft wird kontinuierlich aus einem Teilluftstrom von einem festen oder flüssigen Sorptionsmittel aufgenommen oder kondensiert.

Drei Verfahren werden üblicherweise eingesetzt:

- Absorption in festen Absorptionsmitteln (z. B. Molekularsieben);
- Absorption in Wasser, Natronlauge oder Ethylenglykol;
- Kondensation.

Die praktischen Erfahrungen haben gezeigt, dass der Probeentnahme mittels Absorption an Molekularsieben wegen der möglichen längeren Sammelzeiträumen und der einfacheren Handhabung gegenüber den anderen Verfahren der Vorzug zu geben ist. Zur Vervollständigung dieser Messanleitung werden die übrigen Verfahren im Folgenden ebenfalls erläutert.

Der Teilluftstrom der Fortluft soll mit Probeentnahmesonden, vorzugsweise isokinetisch, entnommen werden (1, 2, 3). Die Leitungen der Probeentnahmeeinrichtung müssen aus einem Material, wie z. B. Edelstahl, Polytetrafluorethen o. ä., bestehen, das mit Wasserdampf chemisch nicht reagiert. Die Leitungen müssen auf einer Temperatur oberhalb des Taupunktes gehalten und in der Regel beheizt werden, damit der Wasserdampf nicht an den Wänden kondensiert. Der Luftdurchsatz wird mit einem geeigneten Gerät, z. B. mit einer kalibrierten Gasuhr in Trockenbauweise, gemessen. Bei Verwendung einer Hubpumpe mit bekanntem Hubvolumen wird der Luftdurchsatz aus der aufgezeichneten Hubzahl berechnet. Detaillierte Angaben über die Auslegung der Probeentnahmeeinrichtung sind dem Verfahren J- γ -SPEKT-ALUFT-03 und der Literatur (2) zu entnehmen.

Aerosolpartikelgetragene Radionuklide, die die Messung der Aktivität des Tritiums stören könnten, werden durch ein Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad über 0,995 (z. B. Typ H12 nach DIN EN 1822 Teil 1) in der Zuleitung zur Wasserdampfsammeleinrichtung entfernt (4). Störungen durch aerosolpartikelgetragene Radionuklide können auch durch Entnahme des Teilluftstromes nach dem Schwebstofffilter des Bilanzierungssammlers vermieden werden (5, 6).

Gasförmige Verbindungen der radioaktiven Iodisotope, aber auch von C-14, P-32, S-35 und Tc-99, die bei der Messung der spezifischen Aktivität von Tritium stören, können teilweise zusammen mit dem Wasserdampf absorbiert werden. Eventuell störende Iodisotope müssen vor der Messung radiochemisch abgetrennt werden. Die anderen oben angeführten gasförmigen Radionuklide stören die Messung aufgrund ihrer wesentlich geringeren Aktivitätskonzentrationen bzw. der geringen Absorption im Allgemeinen nicht.

2.1 Probeentnahme mittels Absorption in einem festen Absorptionsmittel

Wasserdampf wird kontinuierlich aus einem Teilluftstrom der Fortluft entnommen und mit festen Absorptionsmitteln gesammelt. Als Absorptionsmittel werden vorzugsweise Molekularsiebe mit einem mittleren Porendurchmesser von 0,3 nm eingesetzt, die zuvor bei 450 °C vier Stunden unter Stickstoffspülung aktiviert wurden (1, 5, 6, 7, 8). Das Absorptionsmittel befindet sich in einer Absorberpatrone mit einem Durchmesser von etwa 5 cm und einem Volumen von einigen hundert Millilitern. Der Luftdurchsatz darf nur wenige Kubikmeter betragen, da andernfalls die Wasseraufnahmekapazität des Molekularsiebes, die etwa 0,2 Massenanteile beträgt, überschritten wird (5).

Die Absorberpatrone muss mit selbstabschließenden Schnellverbindungen versehen sein, damit eine Abgabe oder Aufnahme von tritiumhaltigem Wasserdampf und eine Beeinflussung des Absorptionsmittels außerhalb der Beaufschlagungszeit ausgeschlossen ist. In den Abbildungen 1 und 2 sind Sammeleinrichtungen schematisch dargestellt.

Sammeleinrichtungen mittels Absorption im Molekularsiebbett sind kommerziell erhältlich. Bei einem Luftdurchsatz von weniger als 2 m³ können die gleichen Absorberpatronen und Absorptionsmittel verwendet werden, die für die C-14-Probeentnahme (siehe Verfahren J-C-14-ALUFT-01 und Abbildung 1) eingesetzt werden (siehe auch Abbildung 2)(6, 8).

Bei einer Probeentnahme gemäß den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 ist die Absorberpatrone nach jeweils einem Quartal auszuwechseln (9). Der Volumenstrom des Teilluftstromes beträgt ca. 0,14 l·s⁻¹.

Für die Probeentnahme und Sammlung von anderen gasförmigen, wasserstoffhaltigen Verbindungen als Wasser, wie z. B. Methan, können die Methode und die Sammeleinrichtung nach dem Verfahren J-C-14-ALUFT-01 (Abschnitt 2.1 und Abbildung 2) verwendet werden. Die tritiumhaltigen Verbindungen werden dabei durch Katalysatoren (z. B. Platin bei 450 °C oder Kupferoxid bei 800 °C) in Wasserdampf umgewandelt und im Molekularsiebbett absorbiert. Alternativ kann der Platinkatalysator auch mit dem Molekularsieb vermengt werden (7). Das Wasser wird, wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, aus dem Molekularsieb ausgetrieben.

Das Verfahren der Absorption von Wasserdampf im Molekularsiebbett hat gegenüber den anderen Methoden den Vorteil, dass die Probeentnahme über einen längeren Zeitraum mit geringeren Abgabeverlusten erfolgt und dass das Absorptionsmittel bei der Probeentnahme und beim Versand leicht zu handhaben ist.

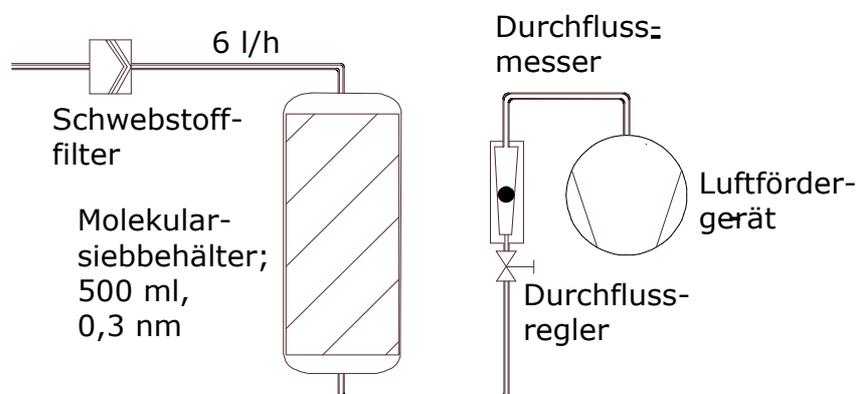


Abb. 1: Schematische Darstellung einer Sammeleinrichtung mit Molekularsiebbett

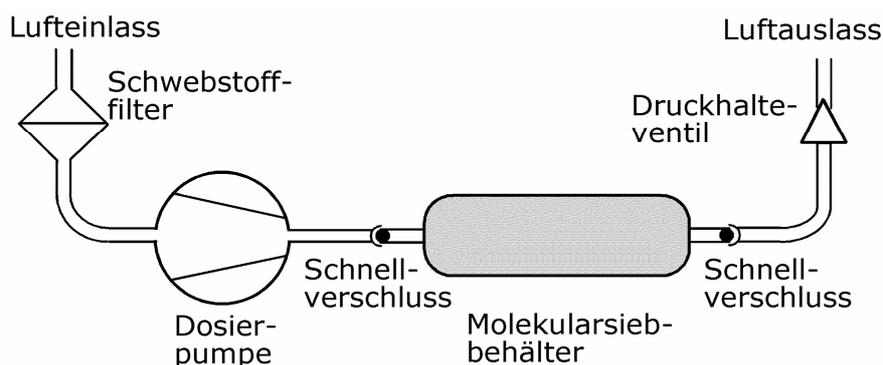


Abb. 2: Schematische Darstellung einer Sammeleinrichtung mit Molekularsiebbett und Dosiereinrichtung

2.2 Probeentnahme durch Absorption in Wasser, Natronlauge oder Ethylenglykol

Ein gefilterter Teilluftstrom der Fortluft mit einem Volumenstrom von einigen Litern pro Stunde wird durch zwei hintereinander angeordnete Gaswaschflaschen, die mit einer feinen Fritte versehen und mit ca. 100 ml Wasser gefüllt sind, geleitet. Dabei wird der Wasserdampf vom Wasser in der Waschflasche aufgenommen; zudem findet ein Isotopenaustausch des Tritiums mit den Wasserstoffatomen der Lösung statt (10). Anstelle von Wasser kann auch Ethylenglykol eingesetzt werden. Natronlauge ($1 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$ bis $2 \text{ mol} \cdot \text{l}^{-1}$) als Waschlösung anstelle von Wasser wird nur verwendet, wenn zugleich auch die Aktivitätskonzentration von C-14 bestimmt werden soll. Zwei hintereinander angeordnete Gaswaschflaschen sind insbesondere bei langer Probeentnahmedauer erforderlich, da bei Verwendung von nur einer Gaswaschflasche ein Teil der wässrigen Lösung verdunstet und damit gesammeltes Tritium wieder verloren geht.

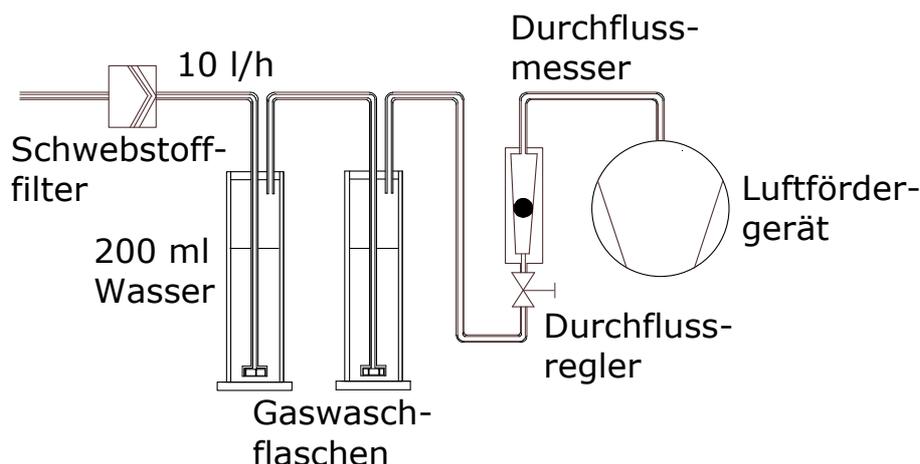


Abb. 3: Schematische Darstellung einer Sammeleinrichtung mit Gaswaschflaschen

2.3 Probeentnahme durch Kondensation

Ein gefilterter Teilluftstrom der Fortluft wird mit einem Volumenstrom von ca. $1 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ durch einen Kugelkühler geleitet und der tritiierte Wasserdampf dort kondensiert (11). Die Kühlflüssigkeit, die aus Wasser mit Frostschutzmittel besteht, wird mit Hilfe eines Kryostaten auf einer Temperatur von ca. $+ 2 \text{ }^\circ\text{C}$, jedoch nicht unter $0 \text{ }^\circ\text{C}$, gehalten und das Kondensat in einem Kolben am unteren Teil des Kühlers aufgefangen.

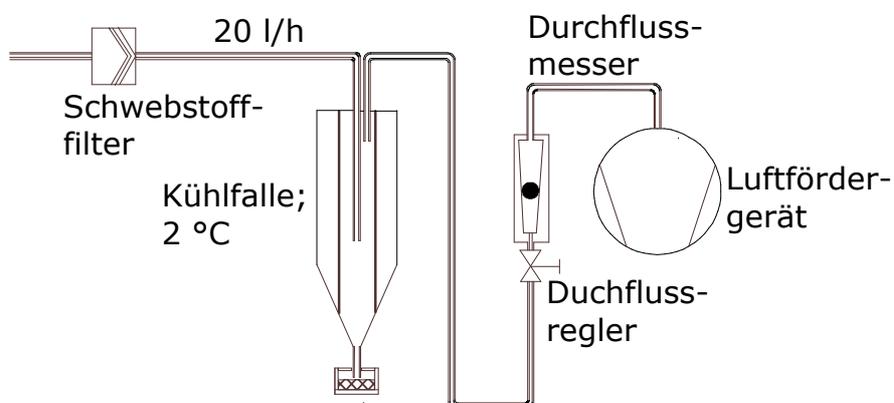


Abb. 4: Schematische Darstellung einer Sammeleinrichtung durch Auskondensieren

Anmerkung:

Obgleich bei den Probeentnahmeverfahren nach den Abschnitten 2.1 und 2.3 die absolute Luftfeuchte aus der Gewichtsänderung der Probeentnahmemedien vor und nach der Probeentnahme und aus dem Luftdurchsatz bestimmt werden kann, sollte die absolute und relative Luftfeuchte und die Lufttemperatur mit anderen gebräuchlichen Verfahren ermittelt werden.

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Bei der Sammlung durch Absorption im Molekularsiebbett nach Abschnitt 2.1 wird das Wasser aus den Molekularsieben mit heißem Stickstoffgasstrom ausgetrieben und kondensiert. Alternativ kann das tritiumhaltige Wasser durch Einbringen des Molekularsiebs in Wasser in dieses überführt werden. Das bei allen Probeentnahmeverfahren erhaltene Wasser wird nach Zugabe von Rückhalteträgern durch Destillation von störenden Beimengungen und Radionukliden gereinigt. Wegen der relativ hohen Aktivitätskonzentration von Tritium in der Fortluft kerntechnischer Anlagen ist eine Anreicherung des Tritiums nicht erforderlich. Einige Milliliter des Destillates werden mit einer Szintillatorlösung mit einer hohen Wasseraufnahmefähigkeit gemischt und die spezifische Aktivität von Tritium im Flüssigkeitsszintillationsspektrometer gemessen.

3.2 Probenvorbereitung

3.2.1 Probenvorbereitung bei Absorption im Molekularsiebbett

Die Apparatur zur Gewinnung des im Molekularsiebbett (siehe Abschnitt 2.1) absorbierten Wassers ist schematisch in Abbildung 5 dargestellt.

Das Molekularsieb wird aus der Absorberpatrone in einen 1 l-Glaskolben mit durch Ventilen verschließbaren Einlass- und Auslassstutzen und einem Septum umgefüllt. Mit einer Spritze wird durch das Septum über mehrere Minuten tritiumarmes Wasser zugegeben (Wärmeentwicklung). Die Masse des im Molekularsieb absorbierten Wassers, die durch Wägung der Absorberpatrone vor und nach dem Sammeln bestimmt wird, und die Masse des zugeführten Wassers sollen zusammen etwa 10 g pro 100 g des Molekularsiebes betragen.

Das absorbierte Wasser wird mit Stickstoffgas bei einem Volumenstrom von etwa $0,14 \text{ l}\cdot\text{s}^{-1}$ aus dem auf $350 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $370 \text{ }^\circ\text{C}$ erhitzten Molekularsieb als Wasserdampf vier Stunden ausgetrieben, in einem kleinen Kugelkühler kondensiert und das Kondensat in einem Zweihalskolben am unteren Ende des Kugelkühlers gesammelt. Die Masse des Kondensates wird bestimmt.

Alternativ zu diesem Verfahren können die Molekularsiebe in ein Becherglas mit etwa dem dreifachen Volumen an deionisiertem und gekühltem Wasser, das eine sehr geringe und bekannte Aktivitätskonzentration von Tritium aufweist, gegeben werden. Unter Rühren geht das im Molekularsieb gebundene tritiumhaltige Wasser in die wässrige Phase über (1, 5). Frühestens nach einer halben Stunde werden 20 ml bis 50 ml Wasser entnommen und über ein Filter mit einer Porenweite von $0,5 \mu\text{m}$ gegeben.

Bei beiden Verfahren werden flüchtige Verbindungen von Kohlenstoff-, Phosphor-, Schwefel- und Iodisotopen ebenfalls ausgetrieben, von denen das Tritium durch Destillation abgetrennt wird. Dazu werden etwa 50 ml des Kondensats bzw. der wässrigen Lösung mit 10 ml Rückhalteträgerlösung, zwei Natriumhydroxidplättchen und einigen Siedesteinchen versetzt und mit einer Füllkörperkolonne (Raschigringe) in der Destillationsapparatur bis zur Trockne destilliert. Ein Aliquot des Destillats wird direkt zur Messung verwendet.

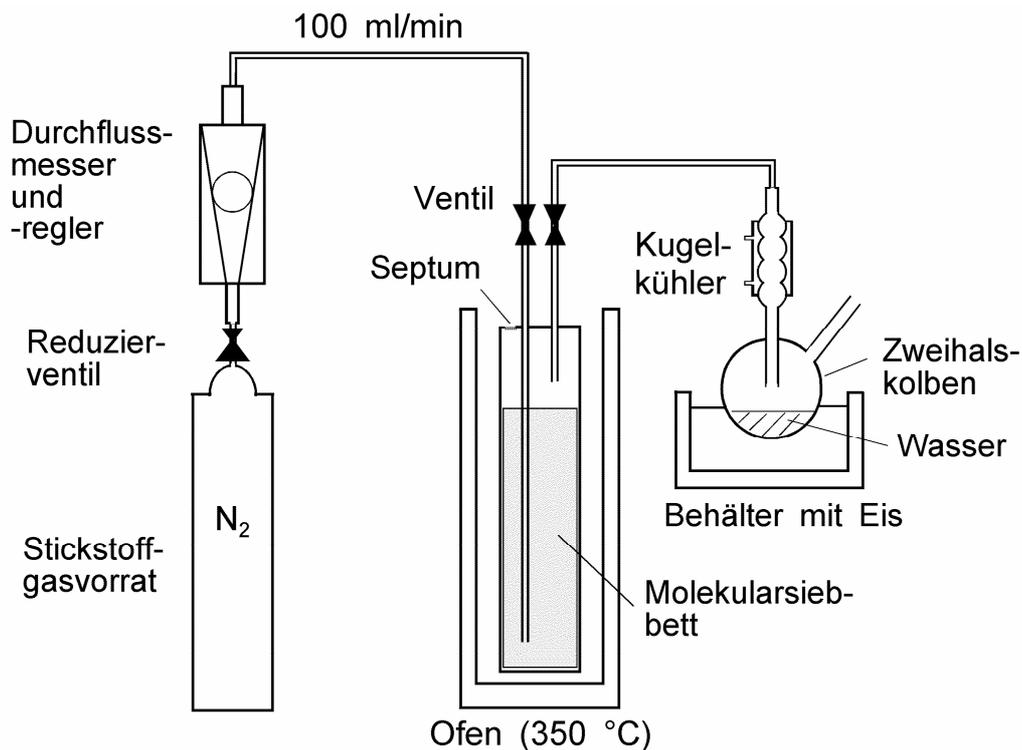


Abb. 5: Aufbau der Apparatur zur Austreibung von Wasser aus dem Molekularsieb

3.2.2 Probenvorbereitung der wässrigen oder alkalischen Lösung

Die nach Abschnitt 2.2 erhaltene wässrige oder alkalische Lösung wird, wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, destilliert, und ein Teil des Destillates direkt zur Messung verwendet.

3.2.3 Probenvorbereitung nach Kondensation

Das nach Abschnitt 2.3 erhaltene Kondensat wird, wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, destilliert, und ein Teil des Destillates direkt zur Messung verwendet.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

9 ml des Destillates werden in ein Zählfläschchen (20 ml Volumen) aus kaliumarmem Glas oder bei vermuteter geringer Tritium-Aktivitätskonzentration aus Polyethylen pipettiert bzw. eingewogen, 11 ml Szintillatorlösung zugegeben und beides durch Schütteln gemischt. Die spezifische Aktivität von Tritium im Messpräparat wird nach fünfständigem Abklingen der Chemolumineszenz im Kühlen und Dunkeln (z. B. im Probenraum der Messeinrichtung) mit einem Flüssigkeitsszintillationsspektrometer mehrmals 100 Minuten gemessen. Durch diese mehrfache Messung wird die Messunsicherheit verringert und es kann festgestellt werden, ob noch Chemolumineszenz vorliegt. Bei einigen Flüssigkeitsszintillationsspektrometern ist für diesen Zweck ein Lumineszenzmonitor vorhanden. Für die Messung wird der Energiebereich von ca. 1 keV bis 13 keV gewählt. Die genaue Einstellung hängt vom verwendeten Flüssigkeitsszintillationsspektrometer ab und kann durch Bestimmen des Qualitätsfaktors (siehe Kapitel IV.3 dieser Messanleitungen) bei unterschiedlichen Einstellungen optimiert werden. Abbildung 6 zeigt beispielhaft ein Impulshöhenspektrum des Flüssigkeitsszintillationsspektrometers.

Zur Kontrolle der Messungen und zur Überprüfung und Kalibrierung der Messanordnung werden bei jedem Messdurchlauf ein Kalibrierpräparat, hergestellt aus 9 ml tritiumhaltigem Wasser mit bekannter Aktivität (Aktivität kleiner als 10^4 Bq) und 11 ml Szintillatorlösung, und eine frisch hergestellte Nulleffektprobe (9 ml tritiumarmes Wasser und 11 ml Szintillatorlösung) mit gemessen.

Das Nachweisvermögen ε lässt sich als Funktion des Quenchparameters, der mittels verschieden "gequenchter", mit Tritiumlösungen bekannter spezifischer Aktivität unter gleichem Verfahren wie oben hergestellter Messpräparaten bestimmt wurde (siehe Verfahren H-H-3-AWASS-01), darstellen. Zur Überprüfung der Güte der Messung wird der Quenchparameter bestimmt, um Abweichungen vom üblichen Wert feststellen und die Messergebnisse gegebenenfalls korrigieren zu können. Der Quenchparameter und das Nachweisvermögen ε wiesen bei den Messungen erfahrungsgemäß nahezu konstante Werte auf. Für die Bestimmung der spezifischen Aktivität von Tritium in den Messpräparaten wird bei ähnlichen Werten des Quenchparameters von Messpräparat und Kalibrierpräparat das aus der Nettozählrate und der spezifischen Aktivität des mit gemessenen Kalibrierpräparates berechnete Nachweisvermögen ε oder der Kalibrierfaktor φ_A verwendet.

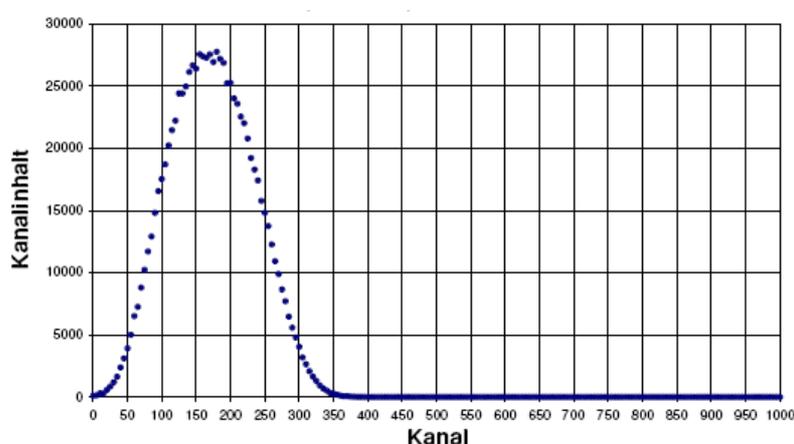


Abb. 6: Impulshöhenspektrum bei der Messung der spezifischen Aktivität von Tritium mit einem Flüssigkeitsszintillationsspektrometer

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die spezifische Aktivität a der Wasserprobe wird für die Verfahren nach Abschnitt 2.1 und 2.2 nach Gleichung (1) berechnet:

$$a = \frac{\varphi_A \cdot f_H}{m} \cdot (R_b - R_0) \quad (1)$$

Durch Multiplikation der spezifischen Aktivität a der Wasserprobe mit der ebenfalls gemessenen absoluten Luftfeuchte ρ_W erhält man die Aktivitätskonzentration c in der Luft nach Gleichung (2):

$$c = a \cdot \rho_W \quad (2)$$

Das beim Probeentnahme- und Sammelverfahren nach Abschnitt 2.1 eingesetzte Molekularsieb enthält je nach Typ einen gewissen Anteil an Kristallwasser, mit dem das aus der Luftfeuchte gesammelte tritiierte Wasser verdünnt wird. Diese Reduzierung der spezifischen Tritium-Aktivität muss durch einen Verdünnungsfaktor f_H korrigiert werden. Der Verdünnungsfaktor wird als Funktion der gesammelten Wassermenge für einzelne Molekularsiebtypen bestimmt, indem eine bekannte Wassermasse mit definierter spezifischer Aktivität auf eine bekannte Masse des Molekularsiebes einige Stunden aufgegeben, das Wasser anschließend ausgetrieben und die spezifische Aktivität bestimmt wird. Der Wert des Verdünnungsfaktors f_H beträgt je nach Typ des Molekularsiebes und der gesammelten Wassermenge 1 bis 1,5. Zur Verbesserung des Wiederfindungsgrades wird weiterhin tritiumarmes Wasser zugegeben, was ebenfalls durch den Verdünnungsfaktor berücksichtigt werden muss.

Bei dem in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Alternativverfahren zur Probenvorbereitung bei Absorption im Molekularsiebbett wird die spezifische Aktivität von Tritium verringert, was mit einem von der Wassermenge abhängigen Verdünnungsfaktor f_H korrigiert wird. Der Verdünnungsfaktor f_H wird nach Gleichung (3) berechnet:

$$f_H = \frac{m_M + m_V}{m_M} \quad (3)$$

Die Auswertung bei Absorption in wässriger oder alkalischer Lösung nach Abschnitt 2.3 ist aufwendiger und kann der Literaturstelle (9) entnommen werden. Dieses Verfahren wird aber kaum noch angewandt, so dass hier auf eine nähere Darstellung verzichtet wird.

Die relativen Standardmessunsicherheiten der spezifischen Aktivität und der Aktivitätskonzentration werden nach den Gleichungen (4) und (5) berechnet:

$$\frac{s(a)}{a} = \sqrt{\frac{\frac{R_b}{t_m} + \frac{R_0}{t_0}}{(R_b - R_0)^2}} \quad (4)$$

$$\frac{s(c)}{c} = \sqrt{\frac{\frac{R_b}{t_m} + \frac{R_0}{t_0}}{(R_b - R_0)^2} + \left(\frac{s(\rho_W)}{\rho_W}\right)^2} \quad (5)$$

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

- a* spezifische Aktivität der Wasserprobe in $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$;
- c* Aktivitätskonzentration in der Luft in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
- R_b Bruttozählrate in s^{-1} ;
- R_0 Nulleffektzählrate in s^{-1} ;
- t_m Messdauer in s;
- t_0 Messdauer des Nulleffekts in s;
- m* Masse des Messpräparates (hier: Kondensat oder Destillat) in kg;
- m_V Volumen des Wassers im Becherglas in g;
- m_M Volumen des Wassers im Molekularsieb in g;
- f_H Verdünnungsfaktor;
- φ_A Kalibrierfaktor (in Abhängigkeit vom Quenchparameter) in $\text{Bq}\cdot\text{s}$;
- ρ_W absolute Luftfeuchte in $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$;
- $s(a)$ Standardmessunsicherheit der spezifischen Aktivität in $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$;
- $s(c)$ Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
- $s(\rho_W)$ Standardmessunsicherheit der absoluten Luftfeuchte in $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$.

5.2 Rechenbeispiel

Aus der Fortluft eines Kernkraftwerkes wurde der Wasserdampf aus einem Luftvolumen von 2 m^3 im Molekularsiebbett absorbiert. Beim anschließenden Austreiben des Wassers wurden 20 ml Kondensat erhalten. Die Probe wurde durch Destillation gereinigt. 9 ml des Destillates wurden mit 11 ml Szintillatorlösung im Zählfläschchen vermischt und zusammen mit einem Kalibrierpräparat und einer Nulleffektprobe mehrmals 6000 Sekunden gemessen. Nach Ende der Messung liegen für die Berechnung der spezifischen Aktivität und der Aktivitätskonzentration folgende Daten vor:

$$\begin{aligned} R_b &= 25 \text{ s}^{-1}; & R_0 &= 0,2 \text{ s}^{-1}; \\ t_m &= 6000 \text{ s}; & t_0 &= 6000 \text{ s}; \\ \varphi_A &= 6,67 \text{ Bq}\cdot\text{s}; & \rho_w &= 0,015 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}; \\ m &= 0,009 \text{ kg}; & f_H &= 1,2. \end{aligned}$$

Der Wert der spezifischen Aktivität von Tritium in der Wasserprobe beträgt:

$$a = \frac{6,67 \cdot 1,2}{0,009} \cdot (25 - 0,2) \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} = 889 \cdot 24,8 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} = 22056 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration von Tritium in der Luft beträgt damit:

$$c = 22056 \cdot 0,015 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3} = 331 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$$

Für obiges Beispiel gilt bei einer typischen relativen Standardmessunsicherheit der Luftfeuchte von 10% :

$$\frac{s(a)}{a} = \frac{\sqrt{\frac{25}{6000} + \frac{0,2}{6000}}}{(25 - 0,2)} = 0,0026$$

$$\frac{s(c)}{c} = \sqrt{0,0026^2 + 0,1^2} = 0,1$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration c von Tritium in der Luft beträgt demnach:

$$c = (331 \pm 33) \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Hauptbeiträge zur kombinierten Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration sind die zählstatistische Standardmessunsicherheit und die Standardmessunsicherheit der Luftfeuchte. Die kombinierte Standardmessunsicherheit des Verfahrens beträgt in der Regel 10% bis 20% .

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze g der Aktivitätskonzentration wird in Anlehnung an Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen nach Gleichung (6) mit den Quantilen $k_{1-\alpha}$ und $k_{1-\beta}$ berechnet:

$$g = \frac{\varphi_A \cdot \rho_W \cdot f_H}{m} \cdot \left[(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right)} + \frac{(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2}{4} \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right) \right] \quad (6)$$

6.2 Rechenbeispiel

Der Wert der Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration beträgt für das Beispiel in Abschnitt 5.1 mit den folgenden Werten für die Quantile $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$\begin{aligned} g &= \frac{6,67 \cdot 0,015 \cdot 1,2}{0,009} \cdot \left[4,645 \cdot \sqrt{0,2 \cdot \left(\frac{1}{6000} + \frac{1}{6000} \right)} + \frac{21,6}{4} \cdot \left(\frac{1}{6000} + \frac{1}{6000} \right) \right] \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \\ &= 13,34 \cdot [4,645 \cdot 0,0082 + 5,4 \cdot 0,0003] \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 13,34 \cdot 0,040 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 0,53 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \end{aligned}$$

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Die verwendeten Chemikalien sollten analysenrein sein.

- Molekularsieb: Porendurchmesser 0,3 nm bis 1 nm, vorzugsweise 0,3 nm und in Stäbchenform;
- Natriumhydroxid, NaOH: in Plätzchenform;
- Rückhalteträgerlösung: je 10 mg Natriumiodid (NaI), Natriumcarbonat (Na_2CO_3) und Natriumthiosulfat ($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$) pro ml Wasser, im Dunkeln aufbewahren;
- Szintillatorlösung: mit hohem Wasseraufnahmevermögen, z. B. QuickSzint 700;
- Tritiumarmes Wasser: z. B. altes Grundwasser oder durch Verbrennung von fossilem Gas hergestelltes Wasser.

7.2 Geräte

- Probeentnahmeeinrichtung;
- Sammeleinrichtung, z. B. Fa. Bonnenberg und Drescher, Aalen;
- Destillationsapparatur;
- Zählfläschchen, 20 ml Volumen aus kaliumarmem Glas oder Polyethylen;
- Flüssigkeitsszintillationsspektrometer, vorzugsweise eine Low-level-Ausführung.

Literatur

- (1) Norm DIN 25423 Teil 3 Probenahme bei der Radioaktivitätsüberwachung der Luft: Probenahmeverfahren. 1987-03
Hinweis: Diese Norm wird voraussichtlich durch die Norm DIN ISO 2889 ersetzt.
- (2) Vogl, K.: Rechnerische Abschätzung der Aerosolpartikelverluste in Probeentnahmesystemen bei kerntechnischen Anlagen: Physikalische Modelle, Vorgehensweise, Ergebnisse und weitere Ausblicke. Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz, 1992, ST 2-32/1992
- (3) Eickhoff, W., Quecke, C., Putz, W., Neumann, H.: Die Notwendigkeit der isokinetischen Probenahme von dampf- und gasförmigen Emissionen. Staub-Reinhaltung Luft, 1980, Vol 40, Nr. 3, S. 105
- (4) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (5) Weber, H.W., Schüttelkopf, H.: Einfaches Verfahren zur Bestimmung der Tritiumkonzentration in der Luftfeuchte der Fortluft kerntechnischer Anlagen oder in der Umgebungsluft. Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1983, KfK 3480
- (6) Gesewsky, P.: Verfahren zur Abtrennung von Kohlenstoff-14 aus der Abluft kerntechnischer Anlagen. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1980, ISH-82
- (7) Tschurlovits, M., Tesch, R., Rajer, V.: Bestimmung der Aktivitätskonzentration von HT und HTO in Luft. 1993
- (8) Winkelmann, I., Gesewsky, P., Vogl, K., Schwibach, J.: Bericht über die Emission von ^{14}C mit der Abluft aus Kernkraftwerken und Forschungsreaktoren in der Bundesrepublik Deutschland in den Jahren 1978 bis 1981. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1982, ISH-10
- (9) Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 Messung und Überwachung der Ableitung gasförmiger und aerosolgebundener radioaktiver Stoffe; Messung und Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminabluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb. Köln: Carl Heymanns Verlag. 2002-06
- (10) Rudolph, J.: Ein einfaches empfindliches Verfahren zur kontinuierlichen Überwachung von Kohlenstoff-14 und Tritium in der Luft. Institut für Umweltphysik, 1976, Heidelberg, Diplomarbeit
- (11) Riedel, H., Kistner, G.: Tritiummessungen in der Kaminabluft von Kernkraftwerken mit leichtwassergekühltem Reaktor. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1975, STH-5/75