

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

J- α -SPEKT-ALUFT-01

Bearbeiter:

K. Vogl
A. Heckel

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

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

1 Anwendbarkeit

Das Verfahren eignet sich zur nuklidspezifischen Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen von aerosolpartikelgetragenen alphastrahlenden Radionukliden in der Fortluft von kerntechnischen Anlagen, z. B. gemäß der Sicherheitstechnischen Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 (1).

2 Probeentnahme

Aus der Fortluft der kerntechnischen Anlage wird mittels einer Probeentnahme-einrichtung ein repräsentativer Teilluftstrom entnommen (1). Die aerosolpartikelgetragenen alphastrahlenden Radionuklide werden kontinuierlich auf einem Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ H12 nach DIN EN 1822 Teil 1, abgeschieden (1, 2). Der Volumenstrom durch den Schwebstofffilter beträgt einige Kubikmeter pro Stunde.

Als Schwebstofffilter werden sowohl Glasfaserfilter als auch Membranfilter mit einem Porendurchmesser von 4 μm bis 8 μm eingesetzt (3, 4, 5). Glasfaserfilter weisen einen geringen Strömungswiderstand auf. Die Eindringtiefe der Aerosolpartikel in das Fasermaterial ist jedoch relativ groß, so dass die Alphateilchen zum großen Teil im Fasermaterial absorbiert oder abgebremst werden. Daher sind bei direkter Messung der Schwebstofffilterproben die Linien der Alphastrahlung im Impulshöhenspektrum stark verbreitert, weisen großes Tailing auf und überlappen sich gegenseitig, wie aus Abbildung 1 ersichtlich ist (5). Besser geeignet für die Messung der Aktivitäten auf dem Schwebstofffilter sind Cellulose- oder Teflonmembranfilter. Bei diesen dringen aufgrund der kleineren Poren die Aerosolpartikel weniger tief in das Filtermaterial ein, so dass die Alphastrahlen weniger geschwächt werden und die Linien im Spektrum besser voneinander getrennt sind (siehe Abbildung 1).

Angaben zur Halterung des Schwebstofffilters und zum Aufbau der Probeentnahme-einrichtung sind in (6) und J- γ -SPEKT-ALUFT-03 zu finden.

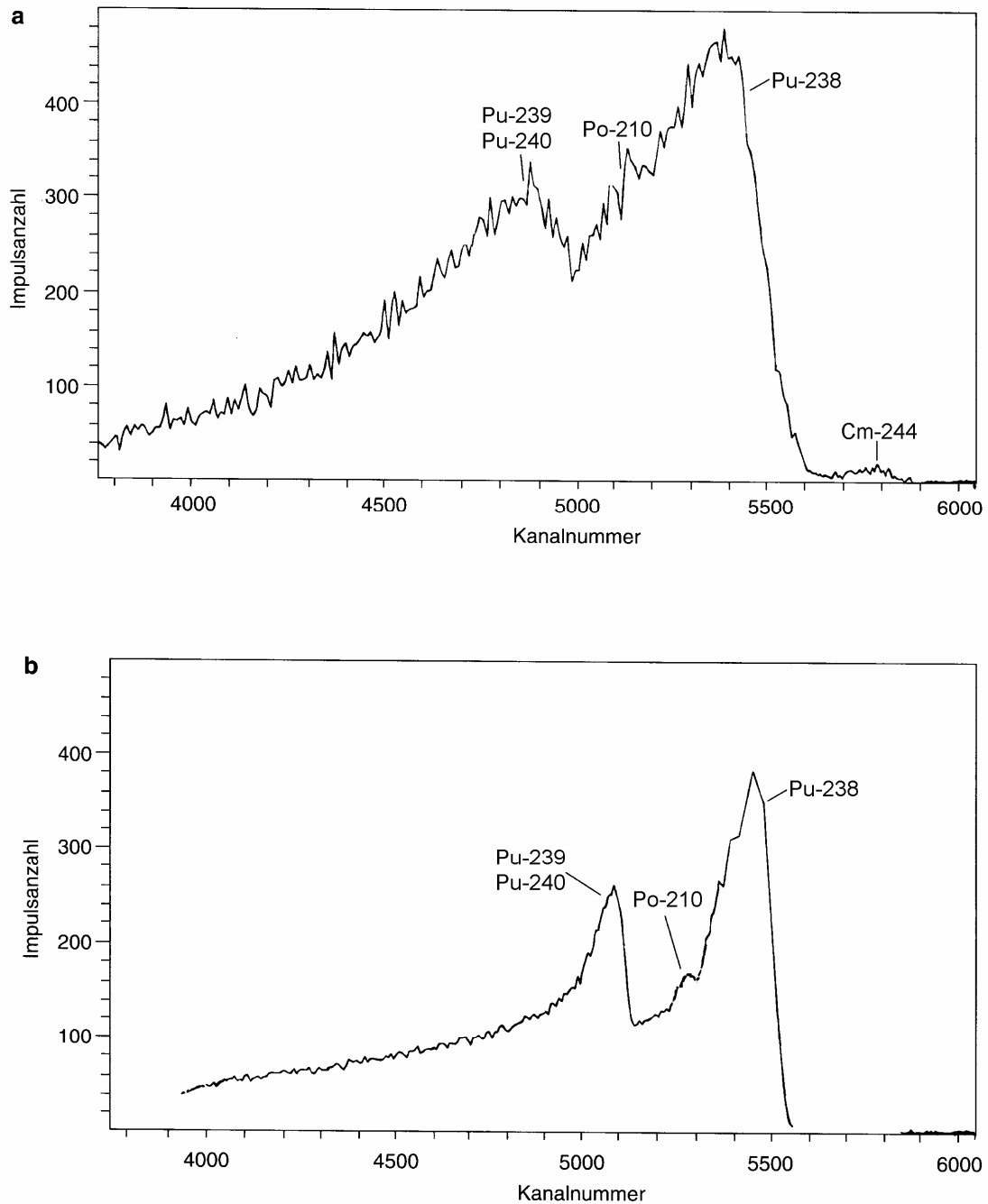


Abb. 1: Impulshöhenspektrum bei direkter Messung der Schwebstofffilter in einer Gitterionisationskammer

- a) bei einem Glasfaserfilter
- b) bei einem Membranfilter

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Die bestaubten Schwebstofffilter oder Teile davon werden mit oder ohne Vorbehandlung in eine Gitterionisationskammer (GIK) gegeben und die Aktivitäten der einzelnen alphastrahlenden Radionuklide auf dem Schwebstofffilter nuklidspezifisch mittels Alphaspektrometrie gemessen (7, 8, 9, 10).

3.2 Probenvorbereitung

Bei geringer Staubbelegung ist eine Vorbehandlung der Schwebstofffilter nicht erforderlich. Bei höherer Staubbelegung werden Alphastrahlen hingegen durch die Staubpartikel teilweise absorbiert, so dass zum Erzielen von geringen Linienbreiten, und damit einer guten Trennung der Linien, die organischen Bestandteile des abgelagerten Staubes durch Veraschen möglichst entfernt werden sollten. Die Beseitigung der Matrix des Schwebstofffilters trägt ebenfalls zur Reduzierung der Linienbreite und Erhöhung der Nachweiswahrscheinlichkeit bei.

Cellulosemembranfilter werden in Quarzschalen gegeben und durch vorsichtige Zugabe von Aceton gelöst.

Steht eine Plasmaveraschungsanlage zur Verfügung, werden sowohl Glasfaserfilter, Teflonmembranfilter als auch der Rückstand der Cellulosemembranfilter in Stahl- bzw. Quarzschalen im Sauerstoffstrom vier Stunden kalt verascht. Bei den handelsüblichen Plasmaveraschungsgeräten sollte ein Regulierventil in die Zuleitung zur Pumpe eingebracht werden, um ein zu schnelles Belüften der evakuierten Kammer nach Ende der Veraschung zu vermeiden, da hierdurch Teile der Schwebstofffilter in der Kammer umhergewirbelt werden und zu einer Kontamination der Kammer führen können. Die geeignete Hochfrequenzleistung des Gerätes muss für die einzelnen Schwebstofffiltersorten experimentell ermittelt werden, um eine zu schnelle Veraschung oder eine mögliche Verpuffung, insbesondere von Cellulosenitrat-Membranfiltern, mit Verteilung von Aktivität in der Plasmaveraschungsanlage zu vermeiden.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

Die Aktivitäten der einzelnen partikelgetragenen alphastrahlenden Radionuklide auf den unbehandelten bzw. vorbehandelten Schwebstofffilterproben werden in einer Gitterionisationskammer gemessen. In einer großen Edelstahlschale mit einem Durchmesser von 20 cm können dabei mehrere Schwebstofffilterproben, z. B. sieben Schwebstofffilterproben in Stahlschalen mit 50 mm Durchmesser, gleichzeitig in die Gitterionisationskammer gegeben werden. Die Messdauer beträgt wegen der meist geringen Aktivitäten üblicherweise etwa 20 Stunden. Ein typisches Impulshöhenspektrum der Gitterionisationskammer ist in Abbildung 2 dargestellt.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit ε , die in der Regel einen Wert von ca. 0,45 aufweist, ist nahezu über die ganze Fläche der Edelstahlschale gleich; lediglich zum Rand hin nimmt sie etwas ab. Daher sollten die Schwebstofffilterproben nicht direkt am Rand, sondern möglichst in der Mitte der Schale positioniert werden.

Sowohl das Einschleusen als auch die Entnahme der Schwebstofffilterproben müssen vorsichtig vonstatten gehen, damit das Probenmaterial nicht suspendiert und die Gitterionisationskammer nicht kontaminiert wird.

Es ist darauf zu achten, dass die Gitterionisationskammer auf etwa 100 Pa evakuiert, mit reinem Zählgas (Argon mit 10 % Methan) auf ca. 10^5 Pa gefüllt, wieder evakuiert und wieder gefüllt wird. Schon geringe Reste an Sauerstoff oder anderen elektronegativen Gasen mit Gehalten von wenigen $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ führen zu einer Verbreiterung der Linien und zu einer Reduzierung der Nachweiswahrscheinlichkeit.

Eine undichte Kammer sowie Reste von Luft können auch leicht dazu führen, dass durch das oft vorhandene Radionuklid Bi-212 aus der Zerfallsreihe des Rn-220 eine Linie im Spektrum entsteht, die von Ungeübten mit der Cm-242-Linie verwechselt werden kann.

Bei frischen Schwebstofffilterproben sind im Spektrum starke Linien der Rn-220-Folgeprodukte Bi-212 und Po-212 zu erkennen (siehe Abbildung 2), deren Intensität aber nach wenigen Tagen wesentlich abnimmt. Bei älteren Schwebstofffilterproben ist meist, wie auch aus Abbildung 2 ersichtlich ist, die Linie von Po-210 zu sehen. Zwischen den einzelnen Messungen sollten Nulleffektmessungen mit einer Messdauer von 20 Stunden bis 40 Stunden durchgeführt werden, da das Untergrundspektrum sich je nach Umgebungsstrahlung, Radonkonzentration in der Luft und möglichen Kontaminationen in der Kammer ändert. Diese Messungen erfolgen mit nicht beaufschlagten Schwebstofffiltern gleichen Typs und Anzahl.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit ε der Gitterionisationskammer ist von der Energie der Alphastrahlung hinreichend unabhängig und wird durch Kalibrierpräparaten, die durch tropfenweises Aufbringen einer auf ein Normal rucktuhrbaren Standardlösung eines alphastrahlenden Radionuklides mit einer geeigneten Menge an Träger und Tetraethylenglykol in eine Quarzschale und Eindampfen selbst hergestellt werden, bestimmt (siehe Kapitel IV.2 dieser Messanleitungen). Insbesondere bei Faserfiltern kann es erforderlich sein, das Kalibrierpräparat durch Beaufschlagen eines Faserfilters mit Aerosolpartikeln bekannter Aktivität herzustellen. Bei der Herstellung des Kalibrierpräparates ist darauf zu achten, dass die Geometrie und Flächenbelegung der Kalibrierpräparate denen der Messpräparate entsprechen. Auch die Linienform in den Impulshöhenspektren beim Kalibrierpräparat und den Messpräparaten sollte ähnlich sein, d. h. die Schwächung der Alphastrahlen sollte bei beiden möglichst gleich sein.

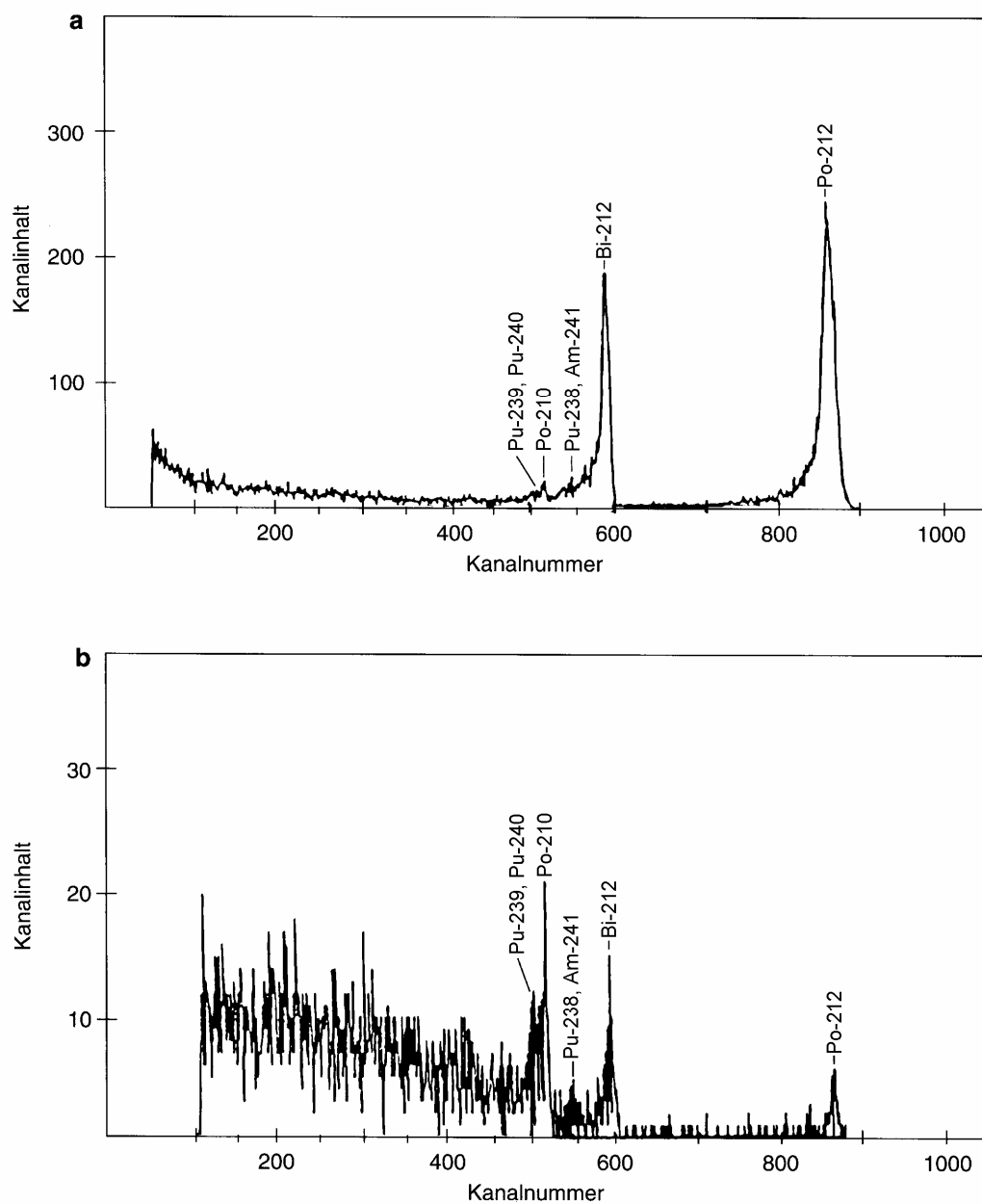


Abb. 2: Impulshöhenspektrum eines Schwebstofffilters (Glasfaserfilter) nach Kaltveraschung, aufgenommen mit einer Gitterionisationskammer

- a) zwei Tage nach der Probeentnahme
- b) fünf Tage nach der Probeentnahme

5 Berechnung der Analyseergebnisse

Vom aufgenommenen Impulshöhenspektrum des Messpräparates wird das jüngst bestimmte, auf die Messdauer normierte Nulleffektimpulshöhenspektrum abgezogen. Sind die verbleibenden Linien schmal und voneinander getrennt, lässt sich die Nettoimpulsanzahl einer Linie durch Summation der Kanalhalte innerhalb der Liniengrenzen ermitteln (siehe Kapitel IV.2 dieser Messanleitungen). Im Allgemeinen jedoch sind die Linien infolge eines ausgeprägten Tailings verbreitert und überlappen sich (9, 10). Kommerziell erhältliche Computerprogramme, die die Linienform durch Funktionen annähern, lassen sich wegen der geringen Impulsanzahlen von wenigen zehn bis hundert Impulsen in den einzelnen Linien bei den üblichen Proben nur mit mäßigem Erfolg einsetzen. Geeignet sind Programme, die einen interaktiven Dialog und eine graphische Darstellung der gerechneten und gemessenen Linien erlauben.

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration c_r des Radionuklides r zum Zeitpunkt der Probeentnahme erfolgt nach Gleichung (1):

$$c_r = \frac{1}{\varepsilon \cdot p_{\alpha,r} \cdot V} \cdot (R_{b,r} - R_{0,r}) \cdot e^{\lambda_r \cdot t_A} \quad (1)$$

mit

$$R_{b,r} = \frac{N_{b,r}}{t_m} \quad \text{und} \quad R_{0,r} = \frac{N_{0,r}}{t_0}$$

Bei einer Messung nach KTA 1503.1 muss für die zu messenden Radionuklide (siehe Tabelle 1), mit Ausnahme des Radionuklides Cm-242, keine Korrektur bezüglich der Abklingzeit t_A durchgeführt werden (1).

Die relative kombinierte Standardmessunsicherheit $s(c_r) \cdot c_r^{-1}$ der Aktivitätskonzentration c_r wird nach Gleichung (2) berechnet:

$$\frac{s(c_r)}{c_r} = \frac{\sqrt{\frac{R_{b,r}}{t_m} + \frac{R_{0,r}}{t_0}}}{R_{b,r} - R_{0,r}} \quad (2)$$

Bei den Gleichungen (1) und (2) bedeuten:

- c_r Aktivitätskonzentration des Radionuklides r in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $N_{b,r}$ Bruttoimpulsanzahl in der Linie des Radionuklides r ;
- $N_{0,r}$ Nulleffektimpulsanzahl in der Linie des Radionuklides r ;
- $R_{b,r}$ Bruttozählrate in der Linie des Radionuklides r in s^{-1} ;
- $R_{0,r}$ Nulleffektzählrate in der Linie des Radionuklides r in s^{-1} ;
- ε Nachweiswahrscheinlichkeit in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;
- $p_{\alpha,r}$ Emissionswahrscheinlichkeit für Alphastrahlung des Radionuklides r ;

- λ_r Zerfallskonstante des Radionuklids r in s^{-1} ;
 V durchgesetztes Volumen in m^3 ;
 t_A Zeitdauer von Ende der Probeentnahme bis zum Messbeginn in s;
 t_m Messdauer der Probe in s;
 t_0 Messdauer des Nulleffektes in s;
 $s(c_r)$ kombinierte Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration des Radionuklides r in $Bq \cdot m^{-3}$.

5.2 Rechenbeispiel

Vier während eines Quartals gesammelte Schwebstofffilterproben wurden in einer Gitterionisationskammer zwei Monate nach der Probeentnahme gemessen. Nach der Messung liegen für die Berechnung der Aktivitätskonzentration von Pu-238 folgende Daten vor:

$$\begin{array}{ll}
 N_{b, \text{Pu-238}} = 1860 ; & N_{0, \text{Pu-238}} = 2000 ; \\
 t_m = 60000 \text{ s} ; & t_0 = 200000 \text{ s} ; \\
 t_A = 6,5 \cdot 10^6 \text{ s} ; & V = 4000 \text{ m}^3 ; \\
 \rho_{\alpha, \text{Pu-238}} = 0,98 ; & \lambda_{\text{Pu-238}} = 2,5 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1} ; \\
 \varepsilon = 0,45 \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} .
 \end{array}$$

Für obiges Beispiel ergeben sich nach den Gleichungen (1) und (2) folgende Werte für die Aktivitätskonzentration $c_{\text{Pu-238}}$ und die relative Standardmessunsicherheit $s(c_{\text{Pu-238}}) \cdot c_{\text{Pu-238}}^{-1}$:

$$\begin{array}{ll}
 R_{b, \text{Pu-238}} = 0,031 \text{ s}^{-1} & R_{0, \text{Pu-238}} = 0,01 \text{ s}^{-1} \\
 c_{\text{Pu-238}} = \frac{1}{0,45 \cdot 0,98 \cdot 4000} \cdot (0,031 - 0,01) \cdot e^{2,5 \cdot 10^{-10} \cdot 6,5 \cdot 10^6} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 12 \text{ } \mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}
 \end{array}$$

$$\frac{s(c_{\text{Pu-238}})}{c_{\text{Pu-238}}} = \frac{\sqrt{\frac{0,031}{60000} + \frac{0,01}{200000}}}{0,031 - 0,01} = \frac{0,000753}{0,021} = 0,036$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration $c_{\text{Pu-238}}$ zum Zeitpunkt der Probeentnahme beträgt also:

$$c_{\text{Pu-238}} = (12 \pm 0,4) \text{ } \mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Unsicherheit der Aktivitätskonzentration rührt hauptsächlich von den zählstatistischen Unsicherheiten her. Die Unsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit und des Volumens kann in der Regel vernachlässigt werden, sofern die Absorption der Alphastrahlen in Kalibrierpräparat und Messpräparat vergleichbar ist.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration wird gemäß Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen nach Gleichung (3) berechnet:

$$g_r = \frac{1}{\varepsilon \cdot p_{\alpha,r} \cdot V} \cdot \left[(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{R_{0,r} \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right)} + \frac{(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2}{4} \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right) \right] \quad (3)$$

Dabei bedeuten:

g Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
 $k_{1-\alpha}$ $k_{1-\beta}$ Quantile der Normalverteilung.

6.2 Rechenbeispiel

Der Wert der Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration beträgt für das obige Beispiel mit den Quantilenwerten $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$g_r = \frac{1}{0,45 \cdot 0,98 \cdot 4000} \cdot \left[4,645 \cdot \sqrt{0,01 \cdot \left(\frac{1}{200000} + \frac{1}{60000} \right)} + \frac{21,6}{4} \cdot \left(\frac{1}{200000} + \frac{1}{60000} \right) \right] \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} =$$

$$= 0,00057 \cdot (4,645 \cdot 0,00047 + 5,4 \cdot 0,00022) \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,3 \cdot 10^{-6} \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,3 \mu\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Die verwendeten Chemikalien sollten analysenrein sein.

- Aceton;
- Tetraethylglykol.

7.2 Geräte

- Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ nach DIN EN 1822, vorzugsweise Membranfilter;
- Halter für Schwebstofffilter;
- Probeentnahmeeinrichtung mit Probeentnahmesonde, Probeentnahmelleitungen, Luftfördergerät und Luftdurchsatzmessgerät (z. B. Gasuhr);

- Quarzschalen;
- Edelstahlschalen;
- Gitterionisationskammer mit Spannungsversorgung und Verstärker;
- Vielkanalanalysator und Rechner;
- eventuell Plasmaveraschungsanlage.

Literatur

- (1) Sicherheitstechnische Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffe gebundener radioaktiver Stoffe; Überwachung der Ableitung radioaktiver Stoffe mit der Kaminabluft bei bestimmungsgemäßem Betrieb. Köln: Carl Heymanns Verlag, 2002-06
- (2) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (3) 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.
- (4) 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
- (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) 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
- (7) Hoetzel, H., Rosner, G., Winkler, R.: Untersuchungen über den Nachweis von Alphastrahlern in Proben aus dem Abwasser, dem Primärkreislauf und der Abluft von Kernkraftwerken der BRD aus den Jahren 1973-1975. GSF-Bericht, 1976, S 412
- (8) Hoetzel, H., Winkler, R.: Eine Großflächen-Gitterionisationskammer mit hohem Auflösungsvermögen zur Messung von Alphastrahlern in Proben mit niedriger spezifischer Aktivität. GSF-Bericht, 1978, S 474
- (9) Wutz, J., Winkelmann, I., Faleschini, J.: Einzelnuklidanalysen von Filterproben aus der Abluftüberwachung von kernbrennstoffverarbeitenden Betrieben. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1981, ABE-14
- (10) Vogl, K., Albrich, S., Spachmann, M.: Nuklidspezifische Messungen von Alphastrahlern in Filterproben aus der Emissions- und Immissionsüberwachung kerntechnischer Anlagen. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1984, ABE-128