

**Verfahren zur Überwachung
der Aktivitätsableitungen
von radioaktiven Edelgasen
aus kerntechnischen Anlagen
durch integrale Messung der
Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration**

J-β-GESAMT-ALUFT-01

Bearbeiter:

K. Vogl
A. Deller

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

Verfahren zur Überwachung der Emission von radioaktiven Edelgasen aus kerntechnischen Anlagen durch integrale Messung der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration

1 Anwendbarkeit

Das Verfahren eignet sich zur kontinuierlichen und integralen Messung der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration von radioaktiven Edelgasen in der Fortluft von Kernkraftwerken gemäß der Sicherheitstechnischen Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 (1) und zur Durchführung der Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken (2).

Mit dem Verfahren lässt sich die Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration eines Gemisches radioaktiver Edelgase in der Fortluft sowie ein kurzzeitiger Anstieg dieser Messgröße ermitteln (Monitorfunktion zur Überwachung der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration von radioaktiven Edelgasen in der Fortluft). Zur Definition der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration wird auf das Glossar der Messanleitungen verwiesen.

Zur Bilanzierung der Aktivitätsableitungen von radioaktiven Edelgasen mit der Fortluft kann das Verfahren angewandt werden, wenn die Gemischzusammensetzung der radioaktiven Edelgase bekannt ist. Dabei sind die in Tabelle 1 aufgeführten betastrahlenden Edelgasradionuklide zu erfassen. Voraussetzung für dieses Vorgehen sind gleichzeitig durchgeführte nuklidspezifische Messungen, z. B. nach dem Verfahren J-γ-SPEKT-ALUFT-01 dieser Messanleitungen. Alternativ kann die Gemischzusammensetzung nach dem Verfahren J-γ-SPEKT-ALUFT-02 (Druckflaschenmethode) dieser Messanleitungen ermittelt werden, bei dem die Messungen gemäß den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 wöchentlich durchgeführt werden. Dieses Vorgehen setzt voraus, dass die Zusammensetzung des Edelgasgemisches innerhalb der Zeitdauer zwischen den Messungen hinreichend konstant bleibt. Den Hauptanteil an der Edelgasaktivität liefern die Edelgasradionuklide Xe-133, Kr-85, Xe-135 und gegebenenfalls Ar-41.

Anzumerken ist, dass zur Bilanzierung der Aktivitätsableitungen von radioaktiven Edelgasen dem Verfahren J-γ-SPEKT-ALUFT-01 gegenüber dem hier beschriebenen Verfahren der Vorzug zu geben ist, weil sich die Zusammensetzung des Edelgasgemisches zeitlich ändern kann, und darüber hinaus das hier beschriebene Verfahren in der Praxis höhere Nachweisgrenzen aufweist.

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

Radionuklid	Halbwertszeit in s	Betaenergie in keV	Emissions- wahrschein- lichkeit	Gammaenergie in keV	Emissions- wahrschein- lichkeit
Ar-41	$6,58 \cdot 10^{03}$	1200	0,99	1293,6	0,99
		490	0,008		
Kr-85	$3,38 \cdot 10^{08}$	150	0,006	514,0	0,0044
		514	0,004		
		670	0,99		
Kr-85m	$1,61 \cdot 10^{04}$	820	0,77	151,1	0,75
				304,9	0,14
Kr-87	$4,58 \cdot 10^{03}$	1300	0,25	402,6	0,496
		3300	0,05		
		3800	0,70		
Kr-88	$1,02 \cdot 10^{04}$	520	0,68	196,3	0,26
		900	0,12	834,8	0,13
		2700	0,20	1529,8	0,11
				2195,8	0,13
Kr-89	$1,89 \cdot 10^{02}$	4000		2392,1	0,35
				220,9	0,20
				586,0	0,17
Xe-131m	$1,02 \cdot 10^{06}$			163,9	0,02
Xe-133	$4,52 \cdot 10^{05}$	346	0,99	81,0	0,37
Xe-133m	$1,89 \cdot 10^{05}$			233,2	0,10
Xe-135	$3,28 \cdot 10^{04}$	550	0,03	249,8	0,90
		910	0,97		
Xe-135m	$9,16 \cdot 10^{02}$			526,6	0,81
Xe-137	$2,30 \cdot 10^{02}$	3600	0,33	455,5	0,31
		4100	0,67		
Xe-138	$8,46 \cdot 10^{02}$	2270		258,3	0,32
		2460		434,5	0,20
				1768,3	0,17
				2015,8	0,12

Datenquelle: Nucléide Gamma and Alpha Library (<http://laraweb.free.fr>), Stand 12.01.2010

2 Probeentnahme

Aus der Kaminfortluft mit einem Volumenstrom von einigen $10^5 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ wird mit Hilfe einer Probeentnahmeeinrichtung mittels Probeentnahmesonden ein Teilluftstrom kontinuierlich und möglichst isokinetisch entnommen (siehe Abbildung 1). In den Verfahren J-γ-SPEKT-ALUFT-01 und J-γ-SPEKT-ALUFT-03 werden ausführliche Hinweise zur Probeentnahme gegeben. Der Probeentnahmeort wird so gewählt, dass die dort entnommenen Proben repräsentativ für die mittlere Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration der Edelgasradionuklide in der Fortluft sind. Ein Teilluftstrom mit einem Volumenstrom von einigen Kubikmetern pro Stunde, der durch geeignete Maßnahmen wie die Regelung der Luftfördergeräte oder eine kritische Düse konstant gehalten wird, wird durch eine Messkammer mit einem Volumen von 20 l bis 60 l, wie sie beispielhaft in Abbildung 2 dargestellt ist, geleitet. Zur Abtrennung der die Messung störenden aerosolpartikelgetragenen Radionuklide und der gasförmigen Radioiodverbindungen wird vor der Messkammer ein Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ H12 gemäß DIN EN 1822 Teil 1, und ein Iodfilter angeordnet (1, 3, 4, 5). Beide Filter dürfen Edelgase nur wenig absorbieren. Geeignete Schwebstofffilter sind Glasfaserfilter ohne organische Bindemittel oder Teflonmembranfilter mit Nylonstützgewebe. Zur Abtrennung von gasförmigen Radioiodverbindungen können Silberzeolithschüttungen eingesetzt werden (5).

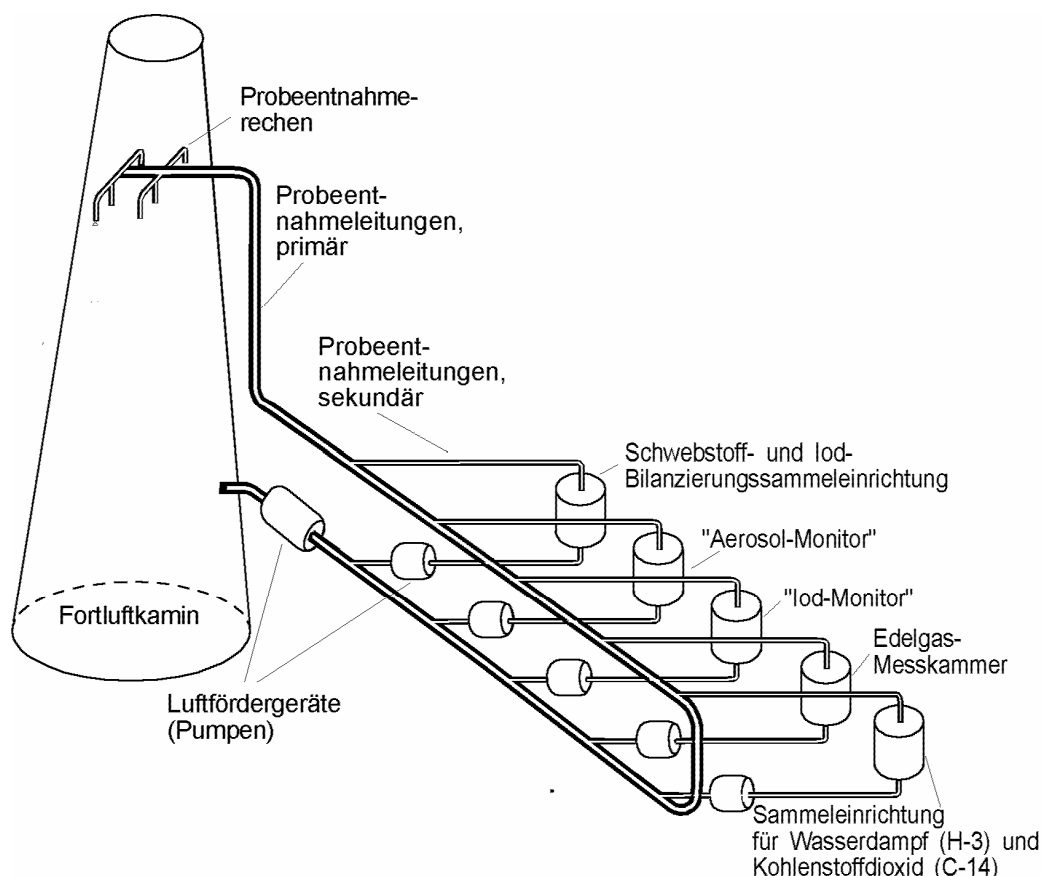


Abb. 1: Schematische Darstellung der Probeentnahmeeinrichtung zur Bestimmung der Edelgas-Aktivitätskonzentrationen

3 Analyse

Eine Probenvorbereitung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Aufbau der Messeinrichtung

Die Messeinrichtung besteht aus einer Messkammer aus Edelstahl oder Kunststoff, in die ein oder mehrere für Betastrahlung empfindliche Detektoren in der Weise hineinragen, dass die beta-empfindlichen Flächen vom Teilluftstrom umspült werden. Zur Messeinrichtung gehören darüber hinaus noch die erforderlichen Vorverstärker, Verstärker, Hochspannungs- und Spannungsversorgungen, Diskriminatoren und Zählratenanzeigen. Als Detektoren für Betastrahlung werden Großflächen-Proportionalzählrohre oder Plastiksintillatoren eingesetzt (6). Um einen von der Betastrahlungsenergie im Energiebereich von 100 keV bis 2000 keV wenig abhängigen verfahrensbezogenen Kalibrierfaktor zu erhalten, sollte die Höhe der Kammer nur etwa 6 cm bis 7 cm betragen (7, 8) (Abbildung 3).

4.1.1 Großflächen-Proportionalzählrohrdetektoren

Bei Verwendung von Großflächen-Proportionalzählrohren ragen zwei oder vier mit Xenongas gefüllte Proportionalzählrohre mit Fensterflächen von etwa 1000 cm² in das Innere der Messkammer (siehe Abbildung 4). Die Fenster dieser Proportionalzählrohre bestehen aus Titanfolie mit einer Schichtdicke von etwa 40 µm, welche etwa alle 2 cm durch Metallstege unterstützt ist. Diese Fenster widerstehen ohne weiteres Unter- oder Überdrücken bis zu 10000 Pa. Durch den Einsatz dieser mechanisch stabilen Großflächen-Proportionalzählrohre wird der Nachteil von früher verwendeten Großflächen-Durchflusszählrohren, deren Kunststofffenster bei Druckschwankungen leicht beschädigt wurden, vermieden. Trotz der relativ großen Schichtdicke der Titanfolie gelangt ein hinreichender Teil des höherenergetischen Anteils der Betastrahlung der Edelgasradionuklide in die Proportionalzählrohre. Gegenüber Plastiksintillationsdetektoren weisen die Großflächen-Proportionalzählrohrdetektoren den Vorteil eines um etwa den Faktor 40 höheren Nachweisvermögens und damit eines wesentlich niedrigeren Wertes der Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration auf (9).

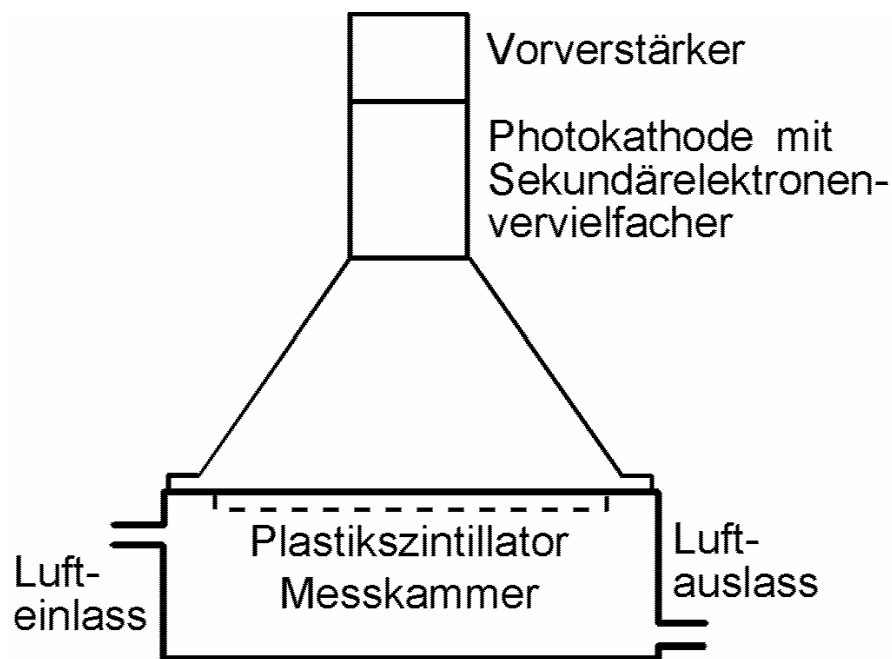


Abb. 2: Schematische Darstellung einer Messkammer mit Plastikszintillationsdetektor

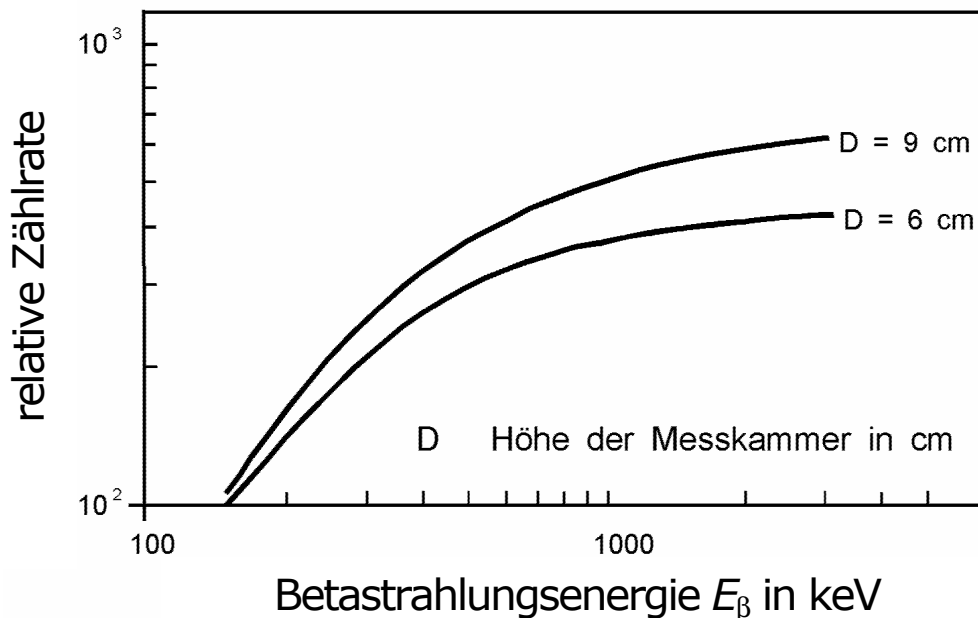


Abb. 3: Abhängigkeit der Zählrate einer Messkammer mit Plastikszintillationsdetektor von der Höhe der Messkammer und der Betastrahlungsenergie, nach (7)

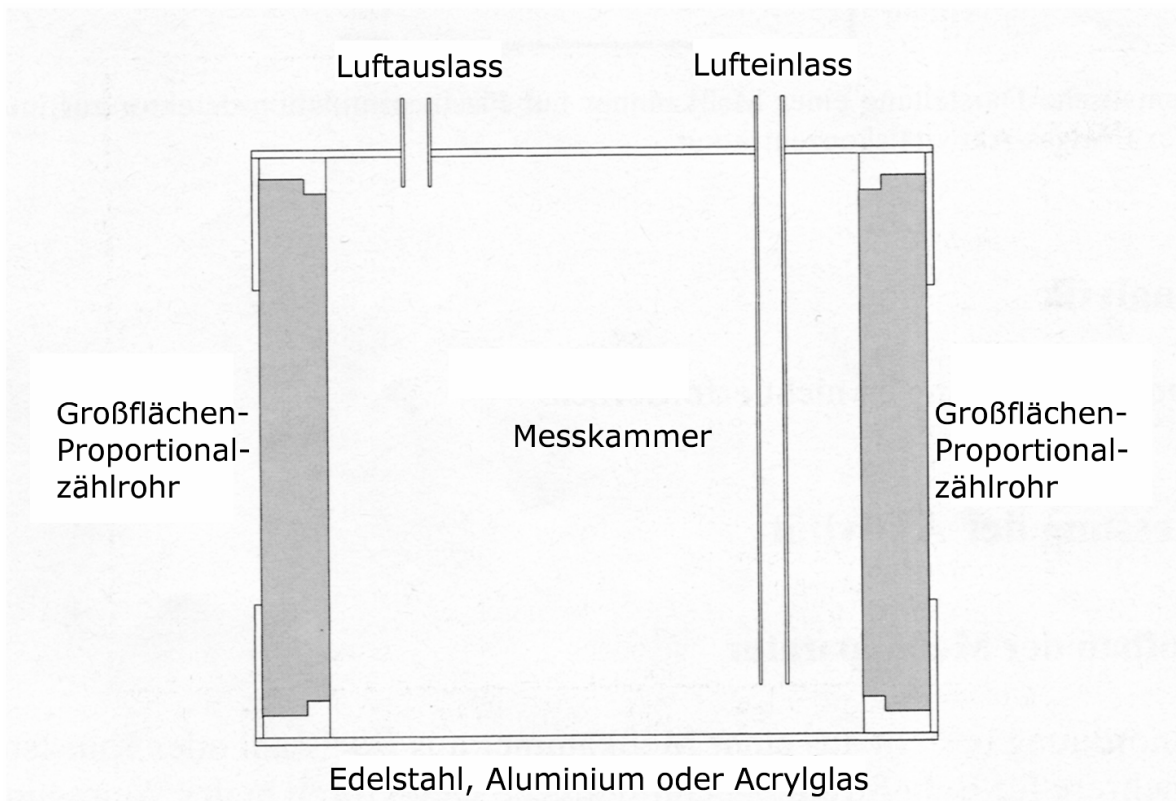


Abb. 4: Schematische Darstellung der Messapparatur mit Großflächen-Proportionalzählrohren

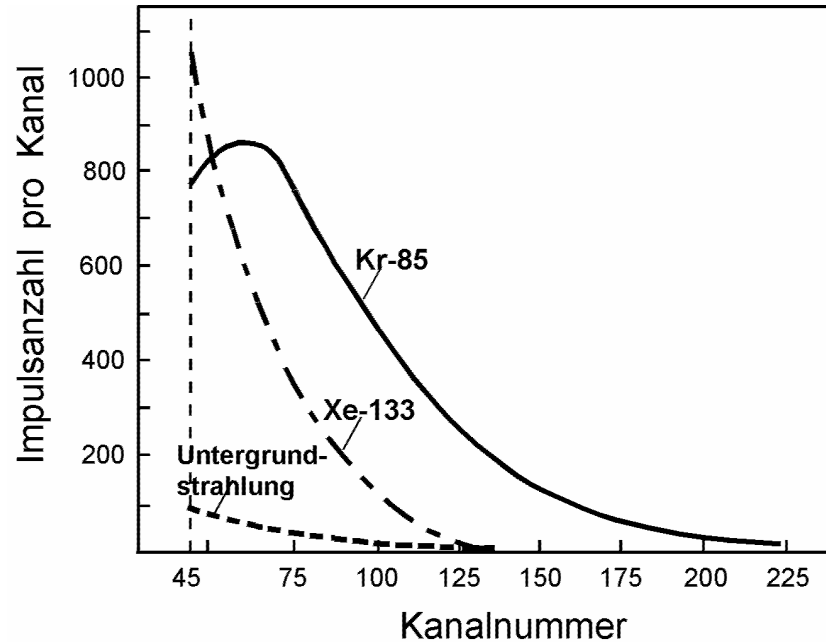


Abb. 5: Impulshöhenspektrum bei einer Messung von Kr-85 und Xe-133, nach (6)

4.1.2 Plastiksintillationsdetektoren

Wie in Abbildung 2 dargestellt, ist in der Messkammer ein Plastiksintillator in Form einer dünnen großflächigen Scheibe vor einem Photoelektronenvervielfacher angebracht. Der Plastiksintillator sollte dabei aus einer etwa 0,5 mm bis 1,0 mm dicken Scheibe oder Platte bestehen, da bei dieser geringen Schichtdicke das Ansprechvermögen für Gammastrahlung, die die Messergebnisse verfälschen könnte, gering ist. Für niedrige Betastrahlungsenergien bis etwa 400 keV ist dabei die Höhe der im Photoelektronenvervielfacher entstehenden und weiter verstärkten Impulse der Energie der Betastrahlung proportional, bei höheren Energien der Betastrahlung der im Plastiksintillator abgegebenen Energie (Abbildung 5). Für die optimale Einstellung der Messeinrichtung ist die Einstellung des Schwellendiskriminators von Bedeutung (6 bis 9).

4.1.3 Praktische Hinweise

Variierende Nulleffektzählraten infolge der Umgebungsstrahlung lassen sich dadurch bestimmen und kompensieren, dass in der Nähe der Messkammer noch eine weitere, möglichst bauartgleiche Referenzmesskammer angebracht wird. Diese Referenzmesskammer kann geschlossen sein oder von Luft, die keine künstlichen radioaktiven Edelgase enthält, durchströmt werden (6, 9). Die Nettozählrate ist die Differenz der Zählrate der Messkammer und der Zählrate der Referenzmesskammer.

Die Messkammer ist mit einer Vorrichtung versehen, die es erlaubt, zur wiederkehrenden Prüfung ein geeignetes radioaktives Präparat reproduzierbar in eine nahe und definierte Position zu den Betastrahlungsdetektoren zu bringen.

4.2 Kalibrierung

Für die Kalibrierung der Messeinrichtung entsprechend den Anforderungen der KTA-Regel 1503.1 (1) sind Kr-85- und Xe-133-Edelgasradionuklide bekannter Aktivitätskonzentration zu verwenden. Beide Edelgasradionuklide liefern üblicherweise einen großen Beitrag zur Gesamtaktivitätskonzentration von radioaktiven Edelgasen in der Fortluft, weisen eine für die Handhabung praktikable Halbwertszeit auf und repräsentieren Edelgasradionuklide mit Betastrahlungsenergien im mittleren Bereich (siehe Tabelle 1). Beide Edelgasradionuklide können von verschiedenen Herstellern in Ampullen bezogen und nach Zertifizierung, z. B. von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB), zur Kalibrierung der Messeinrichtung eingesetzt werden.

Das Verhältnis der Zählrate zur Gesamtaktivitätskonzentration von betastrahlenden Edelgasradionukliden in der Fortluft hängt von dem Aufbau der Messkammer und der Einstellung der Elektronik sowie von der Gemischzusammensetzung der Edelgasradionuklide ab. Für die Bestimmung des Kalibrierfaktors muss daher durch nuklid-spezifische Messung die Gemischzusammensetzung der Edelgasradionuklide ermittelt werden (siehe Verfahren J-γ-SPEKT-ALUFT-01 und J-γ-SPEKT-ALUFT-02 dieser Messanleitungen).

Zur Kalibrierung kann die in Abbildung 6 schematisch dargestellte Apparatur verwendet werden. Der Vorratsbehälter, der die geschlossene Glasampulle mit dem Edelgasradionuklid enthält, die drei Gasmäuse mit unterschiedlichen Volumina und die entsprechenden Zuleitungen werden mit Frischluft gespült und das Absperrventil V1 am Vorratsbehälter, die Absperrventile V5 bis V7 und der Drei-Wege-Hahn DH2 geschlossen. Die Gasmäuse und Zuleitungen werden dann mittels der

Vakuumpumpe auf einen Druck von ca. 100 Pa evakuiert. Die Ampulle, die Kr-85 und Xe-133 einzeln oder im gleichen Verhältnis wie bei der nuklidspezifischen Messung ermittelt enthält, wird im Vorratsbehälter mittels eines mechanischen oder magnetischen Stößels zertrümmert und das Edelgas im Vorratsbehälter mit Hilfe eines eingebauten Propellers homogen verteilt. Der Drei-Wege-Hahn DH1 wird zur Vakuumpumpe hin geschlossen und zu den Gasmäusen hin geöffnet. Durch Öffnen des Absperrventils V1 am Vorratsbehälter gelangen Teilmengen des radioaktiven Edelgases in die Gasmäuse. Anschließend werden die Absperrventile V1, V2, V3 und V4 am Vorratsbehälter und den Gasmäusen geschlossen. Das Füllen der Gasmäuse kann mehrere Male wiederholt werden.

Da die einzelnen Volumina von Vorratsbehälter, Zuleitungen, Ventilen und Gasmäusen bekannt sind oder sich leicht durch Druckmessung ermitteln lassen, lässt sich die Aktivität $A_{GM,i}$ in jeder Gasmaus i nach Gleichung (1) berechnen.

$$A_{GM,i} = \frac{V_{GM,i}}{V_{VA}} \cdot A \quad (1)$$

In Gleichung (1) bedeuten:

- A Aktivität im Vorratsbehälter vor dem jeweiligen Füllen der Gasmäuse;
- $A_{GM,i}$ Aktivität in der Gasmaus i ;
- $V_{GM,i}$ Volumen der Gasmaus i ;
- V_{VA} Gesamtinnenvolumen der verwendeten Teile der Verdünnungsapparatur (Vorratsbehälter, Zuleitungen, Ventile und Gasmäuse).

Alternativ kann auch nur eine Gasmaus gefüllt werden und diese Gasmaus an andere Gasmäuse angeschlossen werden, so dass die Überführung unterschiedlicher Edelgasradionuklid-Aktivitäten in die einzelnen Gasmäuse möglich ist.

Die Messkammer wird nun mittels Flanschen an die Absperrventile V8 und V9 angeschlossen. Bei geschlossenem Absperrventil V10 wird eine Gasmaus, in der Regel anfangend bei der mit dem kleinsten Volumen, in die Position M gebracht, mit den Schnellkupplungen an die Leitungen angeschlossen und nach Öffnen der Absperrventile 8 und 9 die Luft mit dem radioaktiven Edelgas mit Hilfe der Umwälzpumpe im geschlossenen Kreislauf, der die Messkammer einschließt, geführt und in den Komponenten homogen verteilt.

Aus der Aktivität in der Gasmaus und dem Gesamtinnenvolumen der Umwälzapparatur wird die Aktivitätskonzentration $c_{Kal,r,j}$ nach Gleichung (2) berechnet:

$$c_{Kal,r,j} = \frac{A_{GM,r,j}}{V_{UA,j}} \quad (2)$$

In Gleichung (2) bedeuten:

- $c_{Kal,r,j}$ Aktivitätskonzentration im geschlossenen Kreislauf bei der Kalibrierung j mit dem Edelgasradionuklid r in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $A_{GM,r,j}$ Aktivität in der Gasmaus bei der Kalibrierung j in Bq;
- $V_{UA,j}$ Gesamtinnenvolumen der Umwälzapparatur bei der Kalibrierung j in m^3 (Messkammer, Gasmaus, Zuleitungen, Umwälzpumpe, Absperrventile, Drei-Wege-Hahn).

Pro Kalibrierschritt wird mehrmals die Bruttozählrate – bei Einsatz einer Referenzmesskammer die Nettozählrate – gemessen und der Mittelwert dieser Werte gebildet. Die Messdauer ist dabei so zu wählen, dass die Unsicherheit der Zählrate weniger als 2 % beträgt. Anschließend wird mit Frischluft gespült und die Nulleffektzählrate ermittelt. Weitere Angaben sind der Literatur (10 bis 14) zu entnehmen.

Anmerkung

Um Totzeiteffekte zu vermeiden, darf die Aktivitätskonzentration nicht zu hoch gewählt werden (14).

Für jede Kombination von Gasmäusen wird eine andere Aktivitätskonzentration $c_{\text{Kal},r,j}$ und auch eine andere Nettozählrate $R_{n,r,j}$ erhalten, so dass sich die Nettozählrate nahezu als lineare Funktion der Aktivitätskonzentration angeben lässt. Der verfahrensbezogene Kalibrierfaktor $\bar{\varphi}_r$ für das Edelgasradionuklid r entspricht der reziproken Steigung der ermittelten Geraden.

Bei den üblicherweise verwendeten Messkammern mit Plastiksintillatoren ist der verfahrensbezogene Kalibrierfaktor für Xe-133 je nach Einstellung der Diskriminatorschwelle (6 bis 9) und der Abmessung der Messkammer (7) um den Faktor 1,3 bis 2,5, bei Großflächen-Proportionalzählrohren um den Faktor 1,5 bis 3,0 größer als derjenige für Kr-85. Der verfahrensbezogene Kalibrierfaktor für Ar-41 ist bei Plastiksintillationsdetektoren um etwa den Faktor 1,5 größer und bei Großflächen-Proportionalzählrohren um den Faktor 0,6 kleiner als derjenige für Kr-85 (8, 9).

Die Kalibrierung sollte unbedingt vor Ort und mit der gesamten verwendeten Messeinrichtung erfolgen. Kann die Messkammer nicht vor Ort kalibriert werden, ist zu berücksichtigen, dass durch die unterschiedliche Länge der Signalleitungen zwischen Detektor und Verstärker variable Impulshöhendämpfungen auftreten können.

Laut Anforderung der KTA-Regel 1503.1 soll das verfahrensbezogene Ansprechvermögen der Messkammer für Betastrahlung im Energiebereich von 80 keV bis 2500 keV bekannt sein. Diese Größe kann experimentell nicht ermittelt, jedoch aus den Daten der Kalibrierung mit den Edelgasradionukliden Kr-85 und Xe-133 rechnerisch abgeschätzt werden.

Liefern die Edelgasradionuklide Kr-85 und Xe-133 den weitaus größten Anteil an der Gesamtaktivitätskonzentration von künstlichen radioaktiven Edelgasen in der Fortluft, so kann ein mittlerer verfahrensbezogener Kalibrierfaktor $\bar{\varphi}$ nach Gleichung (3) berechnet werden:

$$\bar{\varphi} = \frac{\varphi_{\text{Kr-85}} \cdot \varphi_{\text{Xe-133}}}{x_{\text{Kr-85}} \cdot \varphi_{\text{Xe-133}} + x_{\text{Xe-133}} \cdot \varphi_{\text{Kr-85}}} \quad (3)$$

Dabei bedeuten:

- $\bar{\varphi}$ mittlerer verfahrensbezogener Kalibrierfaktor in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $x_{\text{Kr-85}}$ Anteil von Kr-85 an der Gesamtaktivitätskonzentration gemäß der nuklidspezifischen Messung;
- $x_{\text{Xe-133}}$ Anteil von Xe-133 an der Gesamtaktivitätskonzentration gemäß der nuklidspezifischen Messung;
- $\varphi_{\text{Kr-85}}$ verfahrensbezogener Kalibrierfaktor von Kr-85 in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $\varphi_{\text{Xe-133}}$ verfahrensbezogener Kalibrierfaktor von Xe-133 in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$.

Dasselbe Verfahren kann angewandt werden, wenn andere Edelgasradionuklide, wie z. B. Xe-135 oder Ar-41, die Hauptanteile an der Gesamtaktivitätskonzentration liefern. Es sind dann die entsprechenden Anteile und die abgeschätzten verfahrensbezogenen Kalibrierfaktoren anstelle der oben genannten einzusetzen.

Von den Betreibern von Kernkraftwerken wird meist ein mittlerer verfahrensbezogener Kalibrierfaktor nach der Gleichung (4) berechnet:

$$\bar{\varphi} = X_{\text{Kr-85}} \cdot \varphi_{\text{Kr-85}} + X_{\text{Xe-133}} \cdot \varphi_{\text{Xe-133}} \quad (4)$$

In den meisten Fällen stimmen die Werte der beiden nach Gleichungen (3) und Gleichung (4) berechneten verfahrensbezogenen Kalibrierfaktoren gut überein.

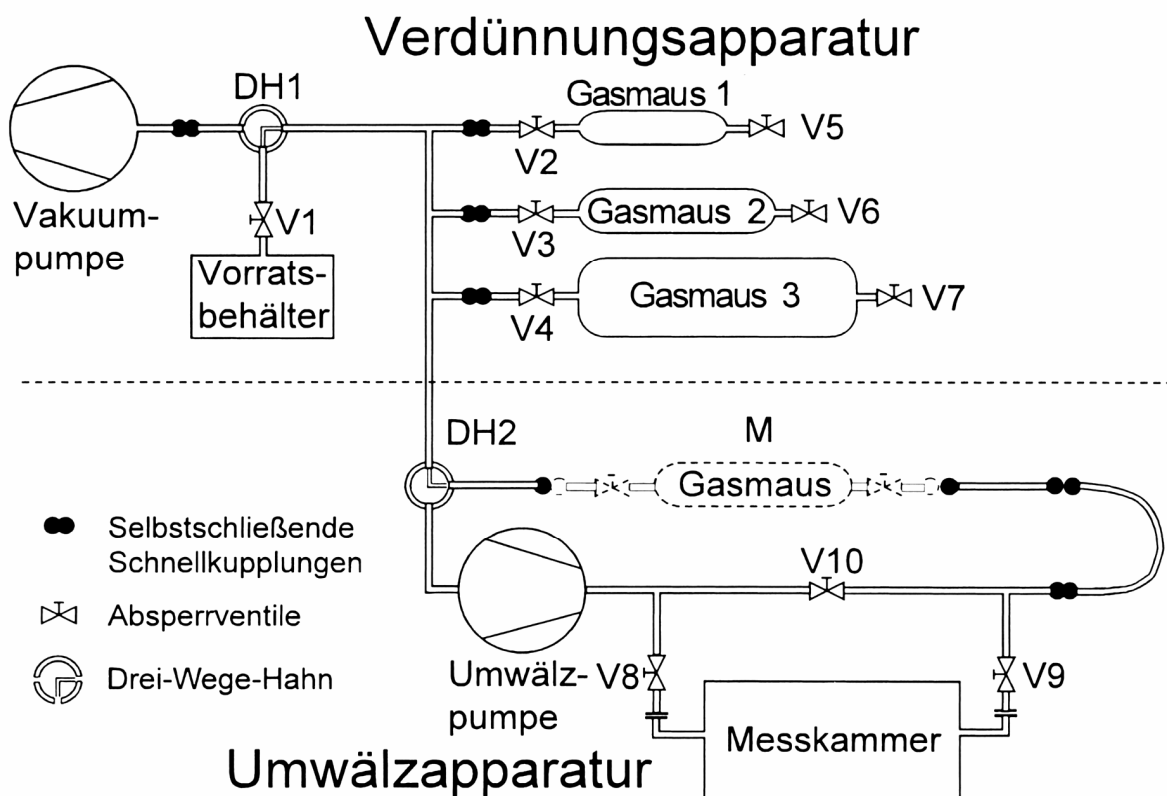


Abb. 6: Apparatur zur Kalibrierung der Messeinrichtung

4.3 Messung

Die Messung der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration muss gemäß den Vorschriften der KTA-Regel 1503.1 (1) erfolgen. Die Werte der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration und des Fortluftdurchsatzes sind für die Bilanzierung aufzuzeichnen und daraus die tägliche Ableitung zu berechnen.

In regelmäßigen Zeitabständen ist durch Abtrennen der Messkammer von der Kaminfortluft und anschließendes Spülen mit Luft, die keine künstlichen radioaktiven Edelgase enthält, die Nulleffektzählrate zu bestimmen. Wird die Nulleffektzählrate mit einer zweiten, gleichartigen Messkammer erfasst, ist ein stündlicher Wechselbetrieb der beiden Messkammern vorzusehen, so dass diese abwechselnd von Frischluft und Kaminfortluft durchflossen werden.

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Da die Messung mit den Detektoren für Betastrahlung nicht nuklidspezifisch ist, wird ein mittlerer verfahrensbezogener Kalibrierfaktor $\bar{\varphi}$ zur Bestimmung der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration von Edelgasradionukliden verwendet. Die Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $c_{G\beta}$ wird nach Gleichung (5) berechnet.

$$c_{G\beta} = \bar{\varphi} \cdot R_n \quad (5)$$

Die relative Standardmessunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $s(c_{G\beta}) \cdot c_{G\beta}^{-1}$ wird nach Gleichung (6) berechnet:

$$\frac{s(c_{G\beta})}{c_{G\beta}} = \sqrt{\frac{R_n + R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0}\right)}{(R_b - R_0)^2} + \left(\frac{s(\bar{\varphi})}{\bar{\varphi}}\right)^2} \quad (6)$$

In den Gleichungen (5) und (6) bedeuten:

- $c_{G\beta}$ Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $\bar{\varphi}$ mittlerer verfahrensbezogener Kalibrierfaktor in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $s(c_{G\beta})$ Standardmessunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- $s(\bar{\varphi})$ Standardmessunsicherheit des mittleren verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors in $\text{Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$;
- R_b Bruttozählrate in s^{-1} ;
- R_n Nettozählrate in s^{-1} ;
- R_0 Nulleffektzählrate in s^{-1} ;
- t_m Messdauer in s;
- t_0 Messdauer der Nulleffektzählrate in s.

5.2 Rechenbeispiel

Nachfolgend wird ein Rechenbeispiel für die Kalibrierung und die Messung mit einem Plastiksziintillationsdetektor wiedergegeben.

5.2.1 Kalibrierung

Nach einer gemäß Abschnitt 4.2 erfolgten Kalibrierung liegen folgende Daten vor:

$$\begin{aligned}
 A_{\text{Kr-85}} &= 1,4 \cdot 10^7 \text{ Bq}; & V_{\text{GM},1} &= 9,1 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3; \\
 V_{\text{VA}} &= 8,9 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3; & V_{\text{ÜA}} &= 1,9 \cdot 10^{-2} \text{ m}^3; \\
 R_0 &= 1 \text{ s}^{-1}; & R_b &= 2471 \text{ s}^{-1}; \\
 x_{\text{Kr-85}} &= 0,3; & x_{\text{Xe-133}} &= 0,6.
 \end{aligned}$$

Die Werte für Kr-85 gemäß den Gleichungen (1) bis (3) sind wie folgt:

$$A_{\text{GM},1} = \frac{9,1 \cdot 10^{-5}}{8,9 \cdot 10^{-3}} \cdot 1,4 \cdot 10^7 \text{ Bq} = 1,4 \cdot 10^5 \text{ Bq}$$

$$c_{\text{Kr-85},1} = \frac{1,4 \cdot 10^5}{1,9 \cdot 10^{-2}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 7,4 \cdot 10^6 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

$$\varphi_{\text{Kr-85}} = \frac{7,4 \cdot 10^6}{2471 - 1} \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3} = 3,0 \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$$

Auf gleiche Weise wird der Wert des verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors $\varphi_{\text{Xe-133}}$ für Xe-133 berechnet:

$$\varphi_{\text{Xe-133}} = 6,8 \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$$

Der Wert des mittleren verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors $\bar{\varphi}$ beträgt nach Gleichung (3):

$$\bar{\varphi} = \frac{3,0 \cdot 10^3 \cdot 6,8 \cdot 10^3}{0,3 \cdot 6,8 \cdot 10^3 + 0,6 \cdot 3,0 \cdot 10^3} \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3} = 5,3 \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.2.2 Messung

Bei der Durchführung der Messung ergeben sich folgende Daten:

$$\begin{aligned} N_b &= 5100; & t_m &= 3600 \text{ s;} \\ R_0 &= 1 \text{ s}^{-1}; & t_0 &= 3600 \text{ s.} \end{aligned}$$

Die Wert der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $c_{G\beta}$ beträgt nach Gleichung (5):

$$\begin{aligned} R_b &= \frac{5100}{3600} \text{ s}^{-1} = 1,417 \text{ s}^{-1} \\ c_{G\beta} &= 5300 \cdot (1,417 - 1) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 2,2 \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \end{aligned}$$

Mit den obigen Werten und mit der Annahme, dass die relative Unsicherheit des Wertes des mittleren verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors etwa 20 % beträgt, folgt für die relative Standardmessunsicherheit der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration $s(c_{G\beta}) \cdot c_{G\beta}^{-1}$:

$$\begin{aligned} \frac{s(c_{G\beta})}{c_{G\beta}} &= \sqrt{\frac{0,417}{3600} + 1 \cdot \left(\frac{1}{3600} + \frac{1}{3600} \right)}{(1,417 - 1)^2} + 0,2^2 = \\ &= \sqrt{\frac{0,00012 + 0,00055}{0,174} + 0,04} = 0,21 \end{aligned}$$

Der Wert der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration in der Fortluft $c_{G\beta}$ beträgt damit

$$c_{G\beta} = (2,2 \pm 0,5) \cdot 10^3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Hauptbeiträge zur kombinierten Standardmessunsicherheit sind die Unsicherheiten der Kalibrierung (Unsicherheiten der Aktivitäten, der Volumina der Gasmäuse und des Gesamtvolumens), die zählstatistischen Messunsicherheiten der Bruttozählrate und der Nulleffektzählrate sowie die Unsicherheit infolge unterschiedlicher Zusammensetzung des Edelgasgemisches. Demgegenüber können andere Beiträge zur Messunsicherheit in der Regel vernachlässigt werden.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration wird gemäß Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen nach Gleichung (7) berechnet:

$$g_{G\beta} = \bar{\varphi} \cdot \left[(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right)} + \frac{(k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2}{4} \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_m} \right) \right] \quad (7)$$

Dabei bedeuten:

$g_{G\beta}$ Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-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 Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration beträgt für obiges Beispiel bei Tagesmessungen ($t_m = 86400 \text{ s}$, $t_0 = 86400 \text{ s}$) und den Werten für die Quantile $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$\begin{aligned} g_{G\beta} &= 5300 \cdot \left[4,645 \cdot \sqrt{1 \cdot \left(\frac{1}{86400} + \frac{1}{86400} \right)} + \frac{21,6}{4} \cdot \left(\frac{1}{86400} + \frac{1}{86400} \right) \right] \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \\ &= 5300 \cdot [4,645 \cdot 0,0048 + 5,4 \cdot 0,000023] \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 5300 \cdot 0,022 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,2 \cdot 10^2 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \end{aligned}$$

Der Wert der Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration bei der integralen Messung mittels Plastiksziintillationsdetektor liegt bei einigen hundert $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ unter optimalen Umständen. In der Praxis beträgt der Wert der Nachweisgrenze der Gesamt-Beta-Aktivitätskonzentration etwa $1,0 \cdot 10^3 \text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, je nach Nulleffektzählrate und Messdauer.

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Die verwendeten Chemikalien sollten analysenrein sein.

- Absorptionsmaterial für gasförmige Radioiodverbindungen (Silberzeolithe).

7.2 Geräte

- Probeentnahmeeinrichtung mit Probeentnahmesonden, Probeentnahmeleitungen, Luftfördergeräten, Volumenstrommessern und -reglern;
- Schwebstofffilter und Filter für gasförmige Radioiodverbindungen;
- Messkammer mit Betastrahlungsdetektoren (Großflächen-Proportionalzählrohrdetektoren, Plastikszintillationsdetektoren), Spannungsversorgung, Hochspannungsversorgung, Vorverstärker, Verstärker, Diskriminator, Zählinheit.

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) Richtlinie Kontrolle der Eigenüberwachung radioaktiver Emissionen aus Kernkraftwerken GMBI. 1996, Nr. 9/10, S. 247, 1996
- (3) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (4) Gesewsky, P.: Die Eignung von Membranfiltern zur Aerosolüberwachung in kerntechnischen Anlagen in Gegenüberstellung zu Glasfaserfiltern. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1985, ABE-139
- (5) 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.
- (6) Winkelmann, I., Kreiner, H.-J.: Kalibrierung neuer Messanordnungen zur Erfassung der Emission radioaktiver Edelgase. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1977, STH-22/77
- (7) Winkelmann, I.: Bericht über die Messungen zur Kalibrierung von Edelgas-Messstellen im Kernkraftwerk Biblis B. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1979, ISR-47
- (8) Winkelmann, I., Kreiner, H.-J., Jagersberger, J., Walz, K. F.: Kalibrieren von Messkammern zur Überwachung gasförmiger Emissionen bei Kernkraftwerken. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1976, STH-3/76
- (9) Deller, A.: Verfahren zur Messung von Emissionen und Immissionen künstlicher radioaktiver Edelgase aus kerntechnischen Anlagen. Diplomarbeit Fachhochschule München, 1992
- (10) Brummer, C., Mundigl, S.: Integrale und nuklidspezifische Edelgasvergleichsmessung in der Kaminabluft des Kernkraftwerkes Stade. Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz, 1993, ST2-7/93
- (11) Gesewsky, P., Endrulat, H.-J.: Kalibrierung von Edelgas-Messstellen (Messkammer SB150, fahrbarer Monitor SEM 1000, HochaktivitätsMessstelle PIA, nuklidspezifische Messanlage) im Kernkraftwerk Isar 2. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1988, ABE-285
- (12) Kohl, R., Klopfer, P., Gesewsky, P.: Kalibrierung von acht Edelgas-Messwagen Typ 902 SR mit Kr-85 und Xe-133. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1985, ABE-219
- (13) Winkelmann, I.: Kalibrierung der Edelgas-Messstellen im Versuchsatomkraftwerk Kahl (VAK). Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1978, ISR-16
- (14) Deller, A.: Kalibrierung des integralen betasensitiven Edelgas-Messsystems des Bundesamtes für Strahlenschutz. Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz, 1995, ST2-05/1995