

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

J- γ -SPEKT-ALUFT-02

Bearbeiter:

K. Vogl

Leitstelle für Fortluft aus kerntechnischen Anlagen

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

1 Anwendbarkeit

Das Verfahren eignet sich zur stichprobenartigen Bestimmung der Radionuklidzusammensetzung und der Aktivitätskonzentrationen von radioaktiven Edelgasen in der Abluft oder Fortluft von kerntechnischen Anlagen mittels Proben, die der Abluft oder Fortluft während einer kurzen Zeitspanne entnommen werden. Die Kenntnis der Edelgasradionuklidzusammensetzung ist unter anderem erforderlich für die Bilanzierung der Abgabe radioaktiver Edelgase mit der Fortluft nach dem Verfahren J- β -GESAMT-ALUFT-01.

2 Probeentnahme

Der Abluft oder Fortluft wird eine Stichprobe entnommen. Die Probeentnahme erfolgt entweder mit einem Schlauch direkt aus der Abluft oder Fortluft oder mit Hilfe einer Probeentnahmeeinrichtung, die im Verfahren J- γ -SPEKT-ALUFT-03 beschrieben ist. Die Luftprobe wird mittels eines zum Füllen von Atemluftdruckflaschen verwendeten Kompressors in eine Atemluftdruckflasche gepresst. Die Messung störende aerosolpartikelgetragene Radionuklide werden durch ein dem Kompressoreingang vorgeschaltetes Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ H12 nach DIN EN 1822 Teil 1 (1), wie etwa durch das Schwebstofffilter des Bilanzierungssammlers, aus dem Teilluftstrom entfernt. Andere gasförmige Radionuklidverbindungen, z. B. Tritiumgas, Kohlenstoffdioxid oder gasförmiges Iod, stören die Messungen aufgrund ihrer Strahlungsart oder wegen der wesentlich geringeren Aktivität nicht.

Als Druckflaschen werden Aluminium- oder Stahl-Atemluftdruckflaschen mit einem Innenvolumen von 2 l bis 10 l verwendet. Der Fülldruck der Atemluftdruckflaschen beträgt etwa $1 \cdot 10^7$ Pa bis $2 \cdot 10^7$ Pa bei Aluminium-Atemluftdruckflaschen und bis zu $3 \cdot 10^7$ Pa bei Stahl-Atemluftflaschen, so dass das Volumen der Luftprobe bei Normaldruck ca. $0,2 \text{ m}^3$ bis $1,5 \text{ m}^3$ beträgt. Bei den Messungen ist den Aluminium-Atemluftdruckflaschen trotz des geringeren maximalen Fülldrucks der Vorzug zu geben, da die niederenergetische Gammastrahlung, wie beispielsweise diejenige von Xe-133, durch die Aluminiumwandung weit weniger geschwächt wird (2). Das Füllen der Druckflaschen dauert je nach verwendetem Kompressor, Druckflaschenvolumen und erforderlichem Fülldruck 10 Minuten bis 40 Minuten.

3 Analyse

3.1 Prinzip des Verfahrens

Die nuklidspezifischen Aktivitäten der Edelgasradionuklide in der Druckflasche werden mittels Gammaskopie mit einem Halbleiterdetektor gemessen. Die Anordnung der Druckflaschen zum Halbleiterdetektor ist in den Abbildungen 1 und 2 dargestellt. Die Messanordnung ist zur Reduzierung von störender Umgebungsstrahlung mit einer etwa 5 cm dicken Bleiabschirmung umgeben. Die Messapparatur wird zuvor mit einem Druckflaschenstandard kalibriert. Steht ein solcher nicht zur Verfügung, muss auf andere in der Literatur (2 bis 4) beschriebene Kalibrierverfahren zurückgegriffen werden.

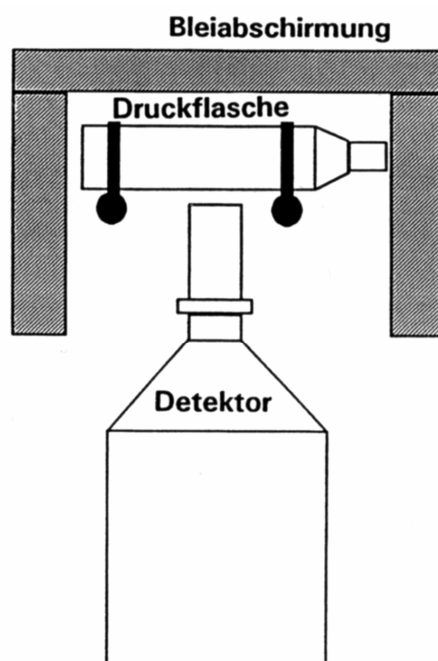


Abb. 1: Probenanordnung bei der Messung der Edelgasaktivität in der Druckflasche im Labor

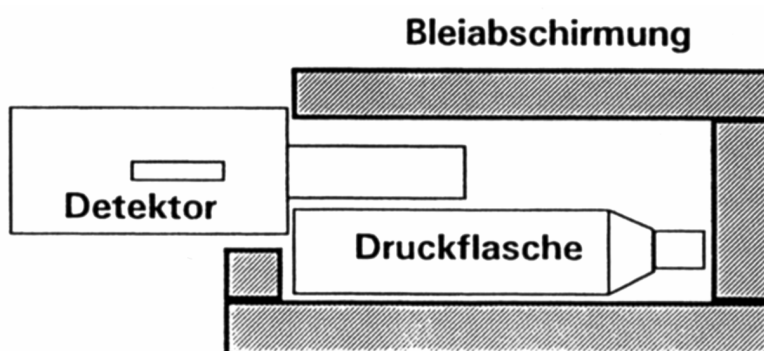


Abb. 2: Probenanordnung bei der Messung der Edelgasaktivität in der Druckflasche vor Ort

3.2 Probenvorbereitung

Eine Probenvorbereitung ist nicht erforderlich.

3.3 Radiochemische Trennung

Eine radiochemische Trennung ist nicht erforderlich.

4 Messung der Aktivität

4.1 Aktivitätsbestimmung

Als Halbleiterdetektor wird ein großvolumiger Reinstgermanium- oder Ge(Li)-Detektor verwendet, dessen hohe Nachweiswahrscheinlichkeit die Messung geringer Aktivität erlaubt. Weitere Hinweise zur Gammaskopimetrie sind in Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen zu finden.

Die Zeitspanne zwischen dem Füllen der Druckflaschen und dem Messbeginn sollte wegen der kurzen Halbwertszeiten der meisten Edelgasradionuklide (siehe Tabelle 1 des Verfahrens J- β -GESAMT-ALUFT-01 und Kapitel IV.6 dieser Messanleitungen) kurz sein. Die Messdauer muss ebenfalls den Halbwertszeiten der zu messenden Edelgasradionuklide angepasst sein. Die optimale Messzeit für kurzlebige Edelgasradionuklide zum Erzielen einer möglichst niedrigen Nachweisgrenze der Aktivität beträgt 1,8 Halbwertszeiten (5). Die Zeitspanne zwischen Füllen der Druckflaschen und dem Messbeginn sollte nur wenige Minuten und die gewählte Messdauer etwa eine halbe Stunde bis eine Stunde betragen (6, 7, 8).

Wenn nach einigen Tagen die Aktivitäten der störenden kurzlebigen Radionuklide abgeklungen sind und damit eine niedrigere Nachweisgrenze der Aktivität für das langlebige Edelgasradionuklid Kr-85 erreicht wird, kann die Messung mit einer Messdauer von einigen Stunden wiederholt werden. Eine entsprechende Wiederholungsmessung innerhalb von zwei Wochen wird bei Messungen gemäß der Sicherheits-technischen Regel des Kerntechnischen Ausschusses KTA 1503.1 (9) gefordert, sofern die Bestimmung der Aktivität von Kr-85 durch die anderen Edelgasradionuklide gestört wird.

Zum Messen der Aktivitäten der Edelgasradionuklide wird die Druckflasche mittels einer Haltevorrichtung in einer festgelegten und reproduzierbaren Position zum Halbleiterdetektor befestigt (3). Während bei den meisten stationären Halbleiterdetektoren die Druckflasche quer am Detektorende angebracht und die ganze Anordnung in einer dicken Bleiabschirmung untergebracht ist, wie es in Abbildung 1 dargestellt ist, wird bei tragbaren Halbleiterdetektoren eine parallele Anordnung nach Abbildung 2 bevorzugt, bei der die Abschirmung aus einigen Bleiziegeln besteht. Ein geeigneter Abstand der Wand der Druckflasche von der Detektorkappe bei der Anordnung nach Abbildung 1 beträgt etwa 5 cm bis 10 cm (2). Änderungen dieses Abstandes beeinflussen die Nachweiswahrscheinlichkeit und die Messunsicherheit (siehe Abbildung 3). Nur bei hohen Edelgasradionuklidaktivitäten in der Druckflasche ist ein größerer Abstand zu empfehlen.

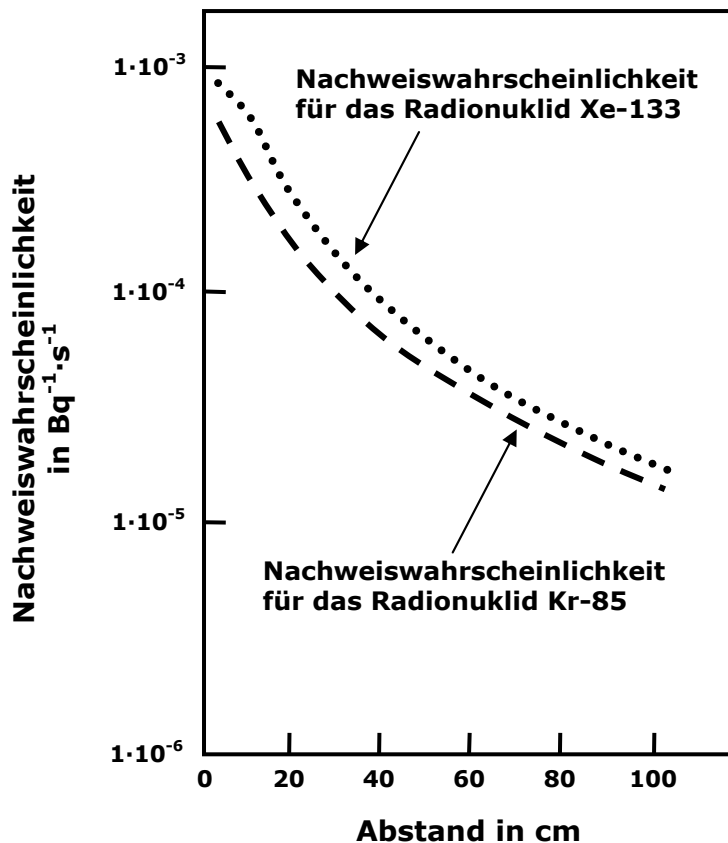


Abb. 3: Nachweiswahrscheinlichkeit für die Gammastrahlung von Kr-85 und Xe-133 als Funktion des Abstandes der Wand der Druckflasche von der Halbleiterdetektorkappe (siehe Abbildung 1)

Die Auswertung der Impulshöhenspektren erfolgt gemäß Kapitel IV.1 dieser Messanleitungen. Insbesondere ist zu beachten, dass die Energieauflösung des Gammapektrometers und die Anzahl der Kanäle eine sichere Auswertung der Kr-85-Linie mit 514 keV neben der stets vorhandenen Linie bei 511 keV sicherstellen (5).

4.2 Kalibrierung

Die Kalibrierung erfolgt üblicherweise mit einem Druckflaschenstandard. Dabei wird derselbe Druckflaschentyp wie für die Messung verwendet. Die Druckflasche ist mit einem Kunststoffschäum gefüllt, der eine homogen verteilte Radionuklidmischung mit bekannten Aktivitäten enthält, deren Gammastrahlungsenergien den Bereich von 80 keV bis 1300 keV abdecken. Die Zusammensetzung des Kunststoffschäum wird so gewählt, dass die Gammastrahlung in ähnlicher Weise wie durch Luft bei entsprechendem Fülldruck geschwächt wird.

5 Berechnung der Analyseergebnisse

5.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Aktivität A_r eines Edelgasradionuklids r in der Druckflasche zum Zeitpunkt der Probeentnahme wird nach den Gleichungen (1) bis (4) berechnet:

$$A_r = \frac{N_{n,r}}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot t_m \cdot \rho_{\gamma,r}} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot f_4 \quad (1)$$

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

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

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

Die Aktivitätskonzentrationen c_r der Edelgasradionuklide in der Fortluft werden nach Gleichung (5) berechnet:

$$c_r = \frac{A_r \cdot q_K}{P \cdot V_F} \quad (5)$$

Die relativen Standardmessunsicherheiten der Aktivitäten und der Aktivitätskonzentrationen werden nach den Gleichungen (6) und (7) berechnet:

$$\frac{s(A_r)}{A_r} = \sqrt{\left(\frac{s(N_{n,r})}{N_{n,r}}\right)^2 + \left(\frac{s(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^2 + (\lambda \cdot t_A)^2 \cdot \left(\frac{s(t_A)}{t_A}\right)^2} \quad (6)$$

$$\frac{s(c_r)}{c_r} = \sqrt{\left(\frac{s(A_r)}{A_r}\right)^2 + \left(\frac{s(P)}{P}\right)^2} \quad (7)$$

In den Gleichungen (1) bis (7) bedeuten:

- c_r Aktivitätskonzentration des Edelgasradionuklids r in $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$;
- A_r Aktivität des Edelgasradionuklids r in der Druckflasche in Bq;
- $N_{n,r}$ Nettoimpulsanzahl in der Linie des Edelgasradionuklids r ;
- $\rho_{\gamma,r}$ Emissionswahrscheinlichkeit für Gammastrahlung des Edelgasradionuklids r ;
- λ_r Zerfallskonstante des Edelgasradionuklids r in s^{-1} ;
- t_s Sammeldauer in s;
- t_A Abklingdauer in s
- t_m Messdauer in s;
- $\varepsilon(E_\gamma)$ Nachweiswahrscheinlichkeit bei der Energie E_γ in $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$;

- f_1 Korrektionsfaktor für Summationseffekte;
 f_2 Korrektionsfaktor für Abklingen der Aktivität während der Sammeldauer;
 f_3 Korrektionsfaktor für Abklingen der Aktivität zwischen Probeentnahme und Messung;
 f_4 Korrektionsfaktor für Abklingen der Aktivität während der Messdauer;
 P Fülldruck in Pa;
 V_F Volumen der Druckflasche in m^3 ;
 q_k Konvertierungskonstante: $q_k = 10^5 \text{ Pa}$;
 $s(A_r)$ Standardmessunsicherheit der Aktivität in Bq;
 $s(c_r)$ Standardmessunsicherheit der Aktivitätskonzentration in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

5.2 Rechenbeispiel

Als Beispiel wird die Aktivitätskonzentration des Edelgasradionuklids Xe-133 berechnet. Die Berechnung für andere Edelgasradionuklide erfolgt entsprechend.

Hinter dem Schwebstofffilter des Bilanzierungssammlers wurde ein Teilluftstrom entnommen und mit dem Kompressor 20 Minuten eine Atemluftdruckflasche aus Aluminium mit einem Volumen von 4 Litern auf einen Druck von $2 \cdot 10^7 \text{ Pa}$ gefüllt. Innerhalb von 5 Minuten wurde die Druckflasche in die Halterung in eine reproduzierbare Position gebracht und die Aktivität von Xe-133 eine Stunde gemessen. Mit dem Druckflaschenstandard wurde zuvor die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie der Gammastrahlung bestimmt.

Es liegen folgende Daten vor:

$$\begin{array}{ll}
 N_{\text{Xe-133}} = 1205; & \lambda_{\text{Xe-133}} = 1,52 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}; \\
 t_s = 1200 \text{ s}; & E_\gamma = 81 \text{ keV}; \\
 p_{\gamma, \text{Xe-133}} = 0,377; & t_A = 300 \text{ s}; \\
 \varepsilon(E_\gamma) = 2 \cdot 10^{-3} \text{ Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}; & f_1 = 1; \\
 t_m = 3600 \text{ s}; & V_F = 4 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3; \\
 P = 2 \cdot 10^7 \text{ Pa}. &
 \end{array}$$

Damit liefern die Gleichungen (1) bis (5) folgende Resultate:

$$f_1 = 1 \qquad f_2 = 1,0009$$

$$f_3 = 1,0005 \qquad f_4 = 1,0027$$

$$f = f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot f_4 = 1,004$$

$$A_{\text{Xe-133}} = \frac{1205}{2 \cdot 10^{-3} \cdot 3600 \cdot 0,377} \cdot 1,004 \text{ Bq} = 446 \text{ Bq}$$

$$c_{\text{Xe-133}} = \frac{446 \cdot 10^5}{2 \cdot 10^7 \cdot 4 \cdot 10^{-3}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 578 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Beim obigen Beispiel betragen die relativen Standardmessunsicherheiten der Aktivität und der Aktivitätskonzentration bei einer relativen Standardmessunsicherheit der Nettoimpulsanzahl von 3 %, der Nachweiswahrscheinlichkeit von 10 %, der Abklingdauer von 5 % und der Druckbestimmung von 10 %:

$$\begin{aligned} \frac{s(A_{\text{Xe-133}})}{A_{\text{Xe-133}}} &= \sqrt{0,03^2 + 0,1^2 + (1,5 \cdot 10^{-6} \cdot 300)^2 \cdot 0,05^2} = \\ &= \sqrt{0,0009 + 0,01 + (0,00045)^2 \cdot 0,0025} = 0,1 \end{aligned}$$

$$\frac{s(c_{\text{Xe-133}})}{c_{\text{Xe-133}}} = \sqrt{0,1^2 + 0,1^2} = \sqrt{0,01 + 0,01} = 0,14$$

Der Wert der Aktivitätskonzentration von Xe-133 beträgt damit:

$$c_{\text{Xe-133}} = (580 \pm 80) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

5.3 Unsicherheiten der Analyseergebnisse

Die Hauptbeiträge zur kombinierten Standardmessunsicherheit sind die Unsicherheiten bei der Bestimmung der Abklingdauer t_A zwischen Ende der Probeentnahme und Beginn der Messung bei kurzlebigen Radionukliden, der Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion des Abstandes und des Druckes sowie die statistische Unsicherheit der Nettoimpulsanzahl N_n . Demgegenüber können andere Beiträge zur Messunsicherheit in der Regel vernachlässigt werden.

6 Nachweisgrenzen des Verfahrens

6.1 Gleichungen zur Berechnung

Die Bestimmung der Nachweisgrenze der Aktivität erfolgt gemäß Kapitel IV.5 dieser Messanleitungen. Die Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration zum Probeentnahmezeitpunkt ist bei Edelgasradionukliden mit kleiner Halbwertszeit von der Sammel-, Abkling- und Messdauer abhängig. Die Nachweisgrenze bei der Messung beträgt gemäß den Gleichungen (8) und (9):

$$G_r = \frac{f_1 \cdot f_4}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot p_{\gamma,r}} \cdot \frac{k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}}{2 \cdot t_m} \cdot \left[k_{1-\alpha} + \sqrt{k_{1-\alpha}^2 + 4 \cdot b \cdot \bar{R}_0 \cdot t_m \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L} \right)} \right] \quad (8)$$

$$g_r = \frac{G_r \cdot f_2 \cdot f_3 \cdot q_k}{V_F \cdot P} \quad (9)$$

Dabei bedeuten:

- G_r Nachweisgrenze der Aktivität für das Edelgasradionuklid r in Bq;
 g_r Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration für das Edelgasradionuklid r in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$;
 $k_{1-\alpha}$, $k_{1-\beta}$ Quantile der Normalverteilung;
 b Linienfußbreite der Linie in Kanälen;
 L Breite des Bereiches zur Untergrundbestimmung in Kanälen;
 \bar{R}_0 mittlere Nulleffektzählrate pro Kanal in der Linie in s.

6.2 Rechenbeispiel

Für obiges Beispiel und bei einer mittleren Untergrundzählrate pro Kanal \bar{R}_0 von $0,02 \text{ s}^{-1}$, einer Linienbreite b von 5 Kanälen und einer Linienbreite für die Untergrundbestimmung L von 2 Kanälen ergibt sich daraus eine Nachweisgrenze bei den Werten für die Quantile $k_{1-\alpha} = 3$ und $k_{1-\beta} = 1,645$:

$$G_{\text{Xe}-133} = \frac{1 \cdot 1,0027}{2 \cdot 10^{-3} \cdot 0,377} \cdot \frac{4,645}{2 \cdot 3600} \cdot \left[3 + \sqrt{3^2 + 4 \cdot 5 \cdot 0,02 \cdot \left(1 + \frac{5}{2 \cdot 2} \right)} \right] \text{ Bq} =$$

$$= 1330 \cdot 0,00065 \cdot \left[3 + \sqrt{9 + 3240} \right] \text{ Bq} = 1330 \cdot 0,00065 \cdot 60 \text{ Bq} = 51,9 \text{ Bq}$$

$$g_{\text{Xe}-133} = \frac{51,9 \cdot 1,0009 \cdot 1,0005 \cdot 10^5}{4 \cdot 10^{-3} \cdot 2 \cdot 10^7} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 65 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

In Tabelle 1 sind die Nachweisgrenzen einiger ausgewählten Edelgasradionuklide zusammengestellt. Die Werte der einzelnen Einflussgrößen sind dabei denen im obigen Beispiel ähnlich.

Tab. 1: Beispiele typischer Nachweisgrenzen einiger Edelgasnuklide bei einer Messdauer von einer Stunde

Edelgas-radionuklid	Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration* in Bq·m ⁻³
Ar-41	7
Kr-85	1300
Kr-85m	9
Kr-87	16
Kr-88	25
Kr-89	+
Xe-131m	290
Xe-133	36
Xe-133m	50
Xe-135	6
Xe-135m	44
Xe-137	+
Xe-138	130

* Reinstgermaniumdetektor, 50 % Nachweiswahrscheinlichkeit im Vergleich mit einem 3" x 3"-NaI(Tl)-Detektor

+ aufgrund der kurzen Halbwertszeiten dieser Edelgasradionuklide ist eine Angabe der Nachweisgrenzen nicht sinnvoll

7 Verzeichnis der erforderlichen Chemikalien und Geräte

7.1 Chemikalien

Für das hier beschriebene Verfahren sind keine Chemikalien erforderlich.

7.2 Geräte

- Probeentnahmeeinrichtung mit Sonden, Probeentnahmeleitungen, Luftfördergeräten (Pumpen) und Volumenstrommessgeräten;
- Schwebstofffilter mit einem Abscheidegrad größer als 0,995, z. B. Typ H12;
- Kompressor zum Füllen von Atemluftdruckflaschen;
- Atemluftdruckflasche aus Aluminium oder Stahl, Volumen ca. 2 l bis 10 l;
- Druckflaschenstandard: gammastrahlende Radionuklide, homogen in Kunststoffschaum (Polyurethan) im Innern einer Druckflasche verteilt ;
- Druckflaschenhalterung;
- Gammaskpektrometriemessplatz mit Halbleiterdetektor, Reinstgermaniumdetektor, Vielkanalanalysator, Rechner und Auswertesoftware;
- Bleiabschirmung, ca. 5 cm bis 10 cm dick.

Literatur

- (1) Norm DIN EN 1822 Teil 1 Schwebstofffilter (HEPA und ULPA); Klassifikation, Leistungsprüfung, Kennzeichnung. 1998-07
- (2) Rau, G., Zimmer, W., Winkelmann, I., Demmeler, M.: Kalibrierung von Druckflaschen-Messanordnungen, Teil 2: Verbessertes Verfahren mit einfacher Herstellung von kalibrierten Gasen im Forschungsreaktor Neuherberg (FRN). Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1982, ABE-45
- (3) Winkelmann, I., Kreiner, H.-J.: Kalibrierung neuer Messanordnungen zur Erfassung der Emission radioaktiver Edelgase. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1977, STH-22/77
- (4) Winkelmann, I., Faleschini, J., Wutz, J.: Kalibrierung einer Druckflaschen-Messanordnung – Herstellung des Kalibriergases über Neutronenaktivierung im Reaktor. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1981, ABE-34
- (5) Deller, A.: Verfahren zur Messung von Emissionen und Immissionen künstlicher radioaktiver Edelgase aus kerntechnischen Anlagen. Diplomarbeit Fachhochschule München, 1992
- (6) Gesewsky, P.: Kalibrierung der Edelgas-Messstellen im Kernkraftwerk Grafenrheinfeld und Vergleichsmessungen. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1984, ABE-130
- (7) Brummer, C., Mundigl, S.: Integrale und nuklidspezifische Edelgasvergleichsmessung in der Kaminabluft des Kernkraftwerkes Stade. Fachbereich Strahlenschutz des Bundesamtes für Strahlenschutz, 1993, ST2-7/93
- (8) Winkelmann, I., Haubelt, R.: Messung der Nuklidzusammensetzung radioaktiver Edelgase in der Fortluft des Kernkraftwerkes Biblis Block A. Bericht des Institutes für Strahlenhygiene, 1977, STH-2/77
- (9) 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