



**Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration
der atmosphärischen Edelgase Krypton-85 und Xenon-133**

Bearbeiter: H. Sartorius, C. Schlosser, S. Schmid, W. Weiss
Bundesamt für Strahlenschutz, Institut für Atmosphärische Radioaktivität (IAR), Freiburg.

Inhaltsverzeichnis	Seite
1 Zweck der Überwachungsmaßnahme	1
2 Anwendbarkeit.....	2
3 Probenentnahme.....	3
4 Messung der Aktivität und des Luftvolumens	4
5 Berechnung der Aktivitätskonzentration	6
6 Genauigkeit / Reproduzierbarkeit.....	9
7 Qualitätssicherung	9
8 Nachweisgrenzen.....	9
8.1 Krypton.....	10
8.2 Xenon.....	10
9 Materialien und Geräte	10
9.1 Probenentnahme.....	10
9.2 Probenpräparation und Messung.....	11
10 Messergebnisse	11
11 Weiterentwicklungen der Messtechnik für den Nachweis von Xenonnukliden	13
12 Bewertung des IAR-Verfahrens.....	13
13 Literatur	14

1 Zweck der Überwachungsmaßnahme

Die Aufgabe zur kontinuierlichen Überwachung künstlicher radioaktiver Edelgase in der Atmosphäre ist in den Messprogrammen der AVV IMIS (§ 8.2.2, 8.3 und 8.42) beschrieben [1]. Die Maßnahmen dienen der qualitativen und quantitativen Kontrolle von Emissionen aus kerntechnischen Anlagen und der Erfassung von künstlichen radioaktiven Nukliden in der Umwelt.

Gegenwärtig werden Kr-85 hauptsächlich bei der Wiederaufarbeitung von Brennelementen und die radioaktiven Xenonisotope im bestimmungsgemäßen Betrieb von Kernkraftwerken in die Atmosphäre freigesetzt. Von diesen Xenonisotopen lässt sich in der Umwelt überwiegend Xe-133 feststellen, aufgrund der vergleichsweise längeren Halbwertszeit von 5,24 Tagen und der hohen Spaltausbeute von ca. 6 %. Xenonisotope mit kürzeren Halbwertszeiten werden im Normalbetrieb durch Verzögerungsstrecken und Aktivkohlebetten in den Abluftanlagen fast vollständig zurückgehalten. Neben dem Hauptisotop Xe-133 können dennoch weitere radioaktive Xenonnuklide aus kerntechnischen Anlagen, bei Nuklearexplosionen oder von medizinischen Quellen in die Atmosphäre freigesetzt werden. Die wichtigen Zerfallseigenschaften von Kr-85 und der hier relevanten radioaktiven Xenonisotope sind in Tab. 1 zusammengefasst [2,3]. Das Spaltprodukt Kr-85 wird derzeit in keiner Wiederaufbereitungsanlage zurückgehalten.

Die Daten des weltweiten Kr-85-Messnetzes dienen neben der allgemeinen Überwachung der Umwelt-radioaktivität auch als Indikator für die weltweite Wiederaufarbeitung von Brennelementen und zur Verifizierung von atmosphärischen Transportmodellen im Bereich der Umweltwissenschaften [4-9].



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU

**EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT**

Blatt: 3.4.9
Seite: 2
Stand: Juli 2002

Tab. 1: Zerfallseigenschaften einiger radioaktiven Edelgase (P = Emissionswahrscheinlichkeit). Neben den Gamma-Hauptlinien werden bei Xenon noch Röntgenstrahlen im Bereich von 30 keV emittiert, die für einen Nachweis genutzt werden können.

Nuklid	$T_{1/2}$	Zerfallsart, ($E_{\beta, \max}$)	E_{γ} , (P_{γ})	$E_{\text{Konv.elekt.}}$, ($P_{\text{Konv.elekt.}}$)
Kr-85	10,76 y	β , (687 keV)	514 keV (0,43 %)	
Xe-131m	11,84 d	γ	163,9 keV (1,96 %)	129 keV (60,7 %)
Xe-133	5,24 d	β , (346 keV)	81 keV (37,0 %)	45 keV (54,1 %)
Xe-133m	2,19 d	γ	233,2 keV (10,3 %)	199 keV (63,1 %)
Xe-135	9,10 h	β , (905 keV)	249,8 (90 %)	214 keV (5,7 %)

Die vorliegende Messanleitung beschreibt das Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentrationen von Kr-85 und Xe-133 in der bodennahen Luft, welches im Rahmen von IMIS und des weltweiten Edelgasmessnetzes des Instituts für Atmosphärische Radioaktivität (IAR) des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) am IAR eingesetzt wird [10]. In den letzten Jahren hat das Meteorological Research Institute (MRI), Japan, in Kollaboration mit dem IAR einen technisch vergleichbaren Edelgasmessplatz am MRI aufgebaut [11,12]. Ein weiteres Messsystem wird vom Deutschen Wetterdienst (DWD) in Offenbach für Messungen der Kr-85-Aktivitätskonzentration im Rahmen des Global Atmosphere Watch (GAW) Programms der World Meteorological Organization (WMO) betrieben. Die beim DWD und am MRI eingesetzten Systeme wurden auf der Basis des am IAR entwickelten Analysesystems konzipiert und nach dem heutigen Stand der Technik weiter optimiert.

2 Anwendbarkeit

Die gegenwärtigen Untergrundpegel der Aktivitätskonzentrationen der bodennahen Luft betragen ca. $1,4 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ Luft für Kr-85 bzw. $1\text{-}100 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ Luft für Xe-133 [12-16]. Eine Direktmessung dieser Aktivitätskonzentrationen der Luft mit Hilfe der In-situ-Gammaspektrometrie oder einer direkten Messung der β -Aktivität der Luft mit Hilfe eines dünnwandigen Zählrohrs ist nicht möglich. Kr-85 kann z. B. erst ab einer Konzentration von einigen $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ Luft mit einem β -Fensterzählrohr direkt gemessen werden. Für die β -Messung von Kr-85 sind in der Literatur eine Reihe von Verfahren beschrieben, u. a. die Messung mittels Flüssigszintillationszähler oder Szintillationskristall CaF_2 (EU) [9,17-21]. Die Nachweisgrenze (NWG, 2σ nach KTA 1503.1) bei In-situ-Messungen mittels HPGe-Detektoren liegen bei $18 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ für Kr-85 und zwischen $0,1$ und $10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ für die Xenonnuklide. Für die Messung der gegenwärtig in der Atmosphäre vorliegenden Aktivitätskonzentrationen ist deshalb eine Anreicherung der entsprechenden Edelgasfraktionen der Luft mit einer anschließenden Aktivitätsmessung, z. B. mit einer β -Zählung im Proportionalzählrohr, erforderlich.

Die im folgenden beschriebene Methode zum Nachweis von radioaktiven Edelgasen in Luftproben wurde am IAR entwickelt und wird dort im Routinemessbetrieb eingesetzt [10]. Zu diesem Zweck werden die Edelgasfraktionen der Luft mit Hilfe eines kryogenen Anreicherungsverfahrens aufkonzentriert und nach chromatographischer Reinstdarstellung im Proportionalzählrohr gemessen. Fortgeschrittene Messverfahren für Xenonnuklide sind in Kap. 11 beschrieben.



3 Probenentnahme

Das Probenentnahmeintervall ist in der AVV IMIS (Routinemessprogramm) festgelegt und beträgt 7 Tage. Andere Zeitintervalle sind leicht realisierbar.

Eine höhere zeitliche Auflösung wird dadurch erreicht, dass parallel zur Wochenprobe auch Tagesproben in Beuteln aus aluminiumbeschichteter Folie mit einem Volumen zwischen 0,2 und 1 m³ genommen werden. Nach dem Auftreten eines erhöhten Messwertes in einer Wochenprobe werden die Tagesproben aufgearbeitet, die Aktivitätskonzentrationen an den jeweiligen Tagen und damit sowohl der Zeitpunkt des Eintreffens als auch die Verweildauer der Wolke an der Sammelstation bestimmt. Die gegenüber von Wochenproben höhere zeitliche Auflösung der Tagesproben erlaubt mit Hilfe von Rückwärtstrajektorien die Lokalisierung möglicher Emittenten. Diese Information steht aber erst ca. 1 Woche nach Beendigung des wöchentlichen Sammelintervalls zur Verfügung.

An den Orten, an denen kein flüssiger Stickstoff vorhanden ist, wird die Luft (1-1,5 m³) in 10 l Stahlflaschen komprimiert, und die Anreicherung des Kryptons und des Xenons wird erst im Labor durchgeführt. Falls nur der Nachweis von Xenon von Interesse ist, können eine handelsübliche Kühlmaschine bei Temperaturen < -60 °C und ein entsprechend dimensionierter Adsorber für die Probenentnahme verwendet werden.

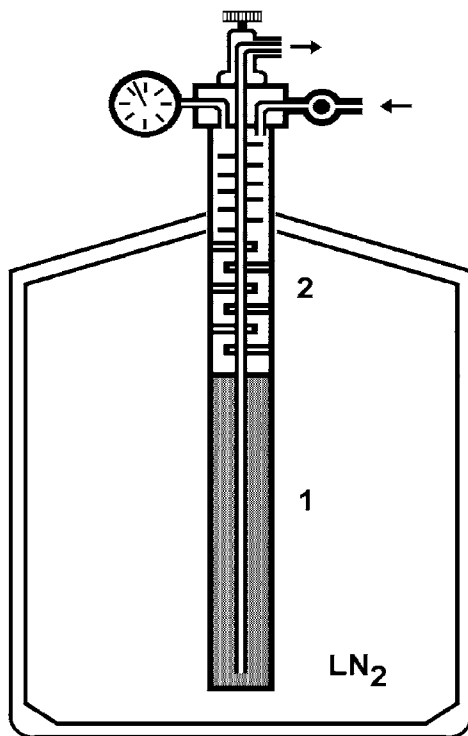
In allen Fällen, in denen flüssiger Stickstoff vorhanden ist, erfolgt die Anreicherung der Edelgase Krypton und Xenon bereits während der Probenentnahme. Für die Probenentnahme wurde am Institut für Atmosphärische Radioaktivität ein Edelgasadsorber entwickelt (Abb. 1). Die Anreicherung erfolgt an Aktivkohle bei -196 °C. Um die Kondensation von O₂ und N₂ in der Kohle zu vermeiden, wird die Luft bei einem Druck von etwa 500 hPa durch den Adsorber gepumpt. Dieser ist so dimensioniert, dass die Edelgase Krypton und Xenon während der Dauer der Probenentnahme quantitativ zurückgehalten werden. Entsprechende Anreicherungsgefäße stehen für Luftvolumina zwischen 1 und 10 m³ zur Verfügung. Um ein Verstopfen der Aktivkohle im Adsorber durch den in der Luft vorhandenen Wasserdampf und das CO₂ zu vermeiden, ist dieser so aufgebaut, dass die beiden Spurenstoffe durch konstruktive Maßnahmen und die Wahl geeigneter Materialien selektiv ausgefroren werden, bevor die Luft die Aktivkohle erreicht. Zu diesem Zweck wird der Temperaturgradient im Adsorber zwischen Raumtemperatur und -196°C ausgenutzt.

Der Gasfluss wird mit einem Durchflussmesser (Bereich 0 – 120 l/h) eingestellt und kontrolliert. Das gesamte Luftvolumen kann mit einem Gaszähler gemessen werden.

An Stationen mit hoher Luftfeuchtigkeit kann mittels Voradsorbern der in der Luft enthaltene Wasserdampf mit Silicagel sowie das Kohlendioxid mit Molekularsieb aus dem Luftstrom entfernt werden.

Bei einem Durchfluss von 60 l/h und einem Sammelzeitraum von einer Woche werden die in 10 m³ Luft enthaltenen Edelgase im Sammelgefäß akkumuliert. Nach Beendigung der Probenentnahme lässt man den Adsorber mit geöffnetem Ausgangsventil bei Raumtemperatur für ca. 1 Stunde „auftauen“. Dabei wird ein hoher Anteil der im Adsorber enthaltenen leicht flüchtigen Gase, wie Stickstoff und Sauerstoff, desorbiert. Die Desorption der Edelgase und deren Überführung in geeignete Behältnisse (z.B. evakuierte 1-l-Aluminiumdruckdosen) geschieht in einem zweiten Schritt durch Ausheizen des Adsorbers bei einer Temperatur von 300 °C für die Dauer von einer Stunde und anschließendem Spülen des Anreicherungsgefäßes mit Inertgas (He oder N₂).

Diese verbleibende Probe besitzt ein Restvolumen von etwa 3 l und kann zum Messort versandt werden. Einzelheiten sind in einem IAR internen Manual beschrieben [22].



- 1: Aktivkohle**
- 2: Kühlflächen zum Ausfrieren von H₂O und CO₂**

Abb. 1: Schematische Darstellung eines Edelgasadsorbers für die Probenentnahme von Krypton und Xenon in der Luft.

4 Messung der Aktivität und des Luftvolumens

Im Labor ist ein weiterer kryogener Anreicherungsschritt notwendig, so dass die Edelgase letztendlich in einem Volumen von weniger als 100 ml Restgas vorliegen. Dazu wird die Probe von ca. 3 l über einen Gaswäscher (2 M NaOH) zur Entfernung von CO₂ und eine Silicagel-Falle zur Trocknung des Gases gespült und in einem kleinen Aktivkohleadsorber bei -196°C adsorbiert. Die an der Aktivkohle adsorbierten Gase werden anschließend bei 300°C wieder desorbiert.

Aus dieser Restgasprobe werden mit einem präparativen Gaschromatographen die Edelgasfraktionen Krypton und Xenon quantitativ separiert und zur Aktivitätsbestimmung mittels einer β -Messung in Proportionalzählrohre überführt (Abb. 2). Als Trägergas dient Methan, das aufgrund seiner guten Zähleigenschaften auch als Zählgas eingesetzt wird. Einzelheiten des Chromatographen sind in [10] beschrieben.

Jede Krypton/Methan- bzw. Xenon/Methan-Probe wird vor der β -Messung im Zählrohr sicherheitshalber auf eventuell vorhandene Spuren von Radon überprüft (α -Messung). Mit Radon kontaminierte Proben können mit dem präparativen Gaschromatographen nochmals gereinigt, das Radon abgetrennt und die Probe einer erneuten Zählrohrmessung zugeführt werden.

Die genaue Messung der Aktivität erfolgt in einer Antikoinzidenzanordnung (Mess- und Schirmzählrohr) in einer Bleiabschirmkammer (d = 10 cm). Die Messzählrohre haben ein Volumen von ca. 230 cm³. Die Nulleffektszählraten liegen je nach Zählrohrmaterial bei etwa 0,03 Impulsen pro Sekunde (ips) für Kupfer bzw. 0,05 ips für Edelstahl.

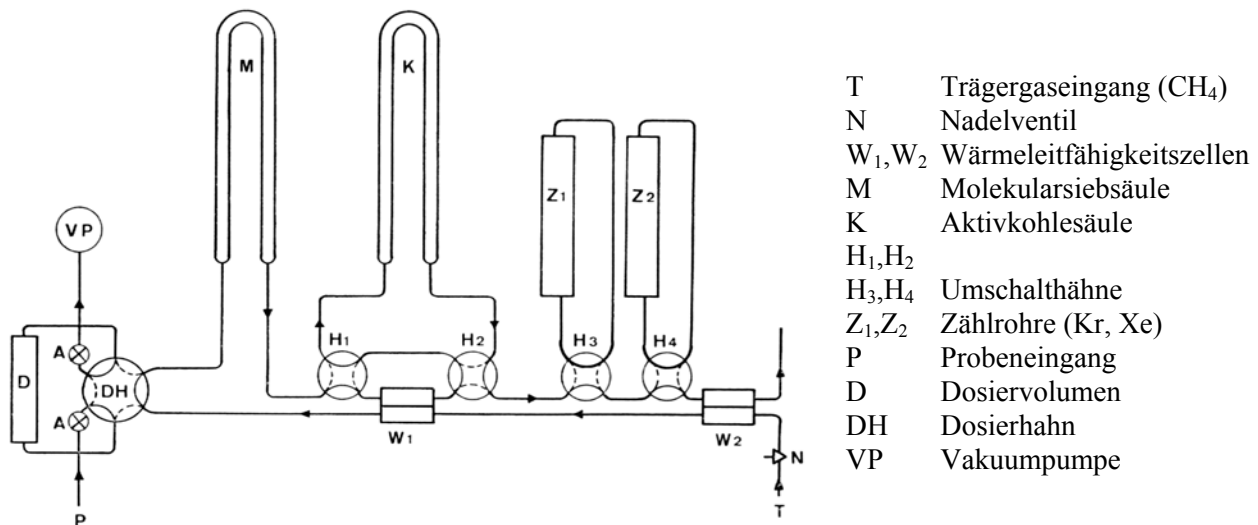


Abb. 2: Zweistufiger, präparativer Gaschromatograph zur Gewinnung reiner Krypton- und Xenonfraktionen mit direkter Überführung in Proportionalzählrohre zur Messung der ⁸⁵Kr- und ¹³³Xe-Aktivität [10].

Die Anzahl der radioaktiven Zerfälle in der Probe werden über eine integrale β -Zählung mit Einkanalanalysatoren in vorgegebenen Messintervallen erfasst. Aufgrund der integralen Messung ist es nicht möglich, direkt zwischen verschiedenen Xenonisotopen zu unterscheiden. Die Unterteilung der Gesamtmessdauer in mehrere Messintervalle ermöglicht eine Halbwertszeitanalyse und damit bei den Xenonnukliden eine Bestimmung der Isotopenzusammensetzung der Probe. Es können Beiträge von Xe-133, Xe-135 bzw. von Xe-131m an der Gesamtaktivität im Prozentbereich erkannt werden. Die Genauigkeit des Verfahrens ist sehr stark abhängig von der Gesamtaktivität, der Zusammensetzung der Probe und der zur Verfügung stehenden Messzeit.

Nach Beendigung der Messung wird das im Zählrohr vorhandene Edelgasvolumen durch eine gaschromatographische Analyse bestimmt. Dazu werden Aliquote von ca. 1-2 cm³ des Zählgases chromatographiert. Der zu diesem Zweck eingesetzte Gaschromatograph wird bei jeder Messung mit Hilfe von Kalibriergasen, deren Zusammensetzung in etwa die Verhältnisse der Proben repräsentieren, kalibriert. Die Aliquote sowohl des Zählgases als auch der Kalibriergasen werden mit derselben Gaspipette entnommen. Das Volumen der Edelgasfraktion im Zählrohr wird über den Vergleich der Peakhöhen der Zählrohrproben mit denen der Kalibriergasen bestimmt. Die Probenvolumina liegen typischerweise bei 5 cm³ Krypton und 0,4 cm³ Xenon. Die Volumenkonzentrationen von stabilem Xenon (0,087 ppm) und stabilem Krypton (1,14 ppm) in der Atmosphäre sind konstant. Deshalb kann nach Kenntnis des im Zählrohr vorhandenen Edelgasvolumens unmittelbar auf die entsprechende Luftmenge geschlossen werden. Aus der gemessenen Zerfallsrate und dem Edelgasvolumen lässt sich somit unmittelbar die Kr-85- bzw. die Xe-133-Aktivitätskonzentration der beprobten Luft berechnen.



5 Berechnung der Aktivitätskonzentration

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration A_r des Radionuklids r in $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ bezogen auf den Sammelzeitraum erfolgt nach Gleichung (1):

$$A_r = \frac{R_N}{\varepsilon_r} \cdot \frac{c_L}{V_G} \cdot f_1 \cdot f_2 \cdot f_3 \quad (1)$$

mit

- A_r : Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in $[\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}]$
- R_N : Nettozählrate in [ips]
- ε_r : Nachweiswahrscheinlichkeit für das Radionuklid r
- c_L : Konzentration des (stabilen) Edelgases in der Luft in $[\text{cm}^3 \text{ m}^{-3}]$
(Xe: 0,087, Kr: 1,14), welche weltweit konstant ist
- V_G : Volumen des stabilen Xenon bzw. Krypton im Zählrohr in $[\text{cm}^3_{\text{STP}}]$ (STP = 0°C , 1013 hPa)
- λ_r : Zerfallskonstante des Radionuklids r in $[\text{s}^{-1}]$
- t_s : Sammelzeit der Probe in [s]
- t_p : Zeitspanne zwischen dem Ende der Probenentnahme und dem Beginn der Zählrohrmessung in [s]
- t_m : Messzeit der Probe in [s].

und den Korrekturfaktoren

(a) Korrekturfaktor f_1 für Zerfall während der Messung:

$$f_1 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}} \quad (2)$$

(b) Korrekturfaktor f_2 zur Berechnung der Aktivitätskonzentration zu einem anderen Zeitpunkt als dem Startzeitpunkt der Messung:

$$f_2 = e^{\lambda_r \cdot t_p} \quad (3)$$

(c) Korrekturfaktor f_3 zur Berechnung der Abweichung, der auf einem konstant beaufschlagten Adsorber vorhandenen Aktivität, zur tatsächlich im Adsorber deponierten Aktivität zum Zeitpunkt Probenentnahmeende:

$$f_3 = \frac{\lambda_r \cdot t_s}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_s}} \quad (4)$$

Ist die Halbwertszeit sehr viel größer als die Sammelzeit der Probe t_s oder die Zeitspanne zwischen dem Ende der Probenentnahme und dem Beginn der Zählrohrmessung t_p oder die Messzeit t_m , gilt für die entsprechenden Korrekturfaktoren $f_1 = 1$, $f_2 = 1$ oder $f_3 = 1$.

Die relative Standardabweichung der Aktivitätskonzentration setzt sich wie folgt zusammen:

$$\sigma_{A_r} = \sqrt{\sigma_{\text{stat}}^2 + \sigma_{\text{Vol}}^2} \quad (5)$$



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU
EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT

Blatt: 3.4.9
 Seite: 7
 Stand: Juli 2002

mit:

$$\sigma_{stat} = \sqrt{\frac{R_m + R_{NE}}{t_m} + \frac{R_{NE}}{t_{NE}}} \cdot \frac{1}{R_m - R_{NE}} \quad (\text{statistische Messunsicherheit der Aktivitätsbestimmung})$$

σ_{Vol} = Messunsicherheit der Volumenmessung

Neben diesen statistischen Unsicherheiten ist noch die systematische Unsicherheit der Methode σ_{sys} bei der Abschätzung der Messunsicherheit zu berücksichtigen (siehe Kapitel 6).

Rechenbeispiele:

Für die beispielhafte Berechnung der Aktivitätskonzentrationen sind in Tabelle 2 die Daten einer typischen Edelgasprobe zusammengestellt.

Tab. 2: Daten einer typischen Edelgasprobe, welche für die Berechnung der Kr-85- bzw. der Xe-133-Aktivitätskonzentration verwendet werden.

		Krypton-85	Xenon-133
R_m	Gesamtzählrate Brutto in [ips]	5,00	0,083
t_m	Messzeit der Probe in [s]	3000	132000
R_{NE}	Nulleffekt-Zählrate in [ips]	0,047	0,051
t_{NE}	Nulleffekt – Messzeit in [s]	240000	240000
R_N	Nettozählrate in [ips]	4,95	0,032
ϵ_r	Nachweiswahrscheinlichkeit	0,883	0,883
c_L	Konzentration des (stabilen) Edelgases in der Luft in [cm ³ ·m ⁻³]	1,14	0,087
V_G	Xenon- bzw. Kryptonvolumen im Zählrohr in [cm ³ _{STP}] (STP = 0°C, 1013 hPa)	4,26	0,338
λ_r	Zerfallskonstante des Radionuklids r in [s ⁻¹]	2,04E-09	1,53E-06
t_s	Sammelzeit der Probe in [s]	603780	603780
t_p	Zeitspanne zwischen dem Ende Probenentnahme und dem Beginn der Zählrohrmessung in [s]	15840	15240
f_1	Korrekturfaktor für den Zerfall während der Messung	1	1,104
f_2	Korrekturfaktor zur Berechnung der Aktivitätskonzentration zu einem anderen Zeitpunkt als dem Startzeitpunkt der Messung	1	1,024
f_3	Korrekturfaktor zur Berechnung der Abweichung, der auf einem konstant beaufschlagten Adsorber vorhandenen Aktivität, zur tatsächlich im Adsorber deponierten Aktivität zum Zeitpunkt Probenentnahmeende	1	1,531

Mit den in Tab. 2 aufgeführten Daten berechnen sich die Aktivitätskonzentrationen für Kr-85 und Xe-133 und deren statistische Messunsicherheit wie folgt:

$$A_{Kr-85} = \frac{5,0 - 0,047}{0,883} \cdot \frac{1,14}{4,26} \cdot 1 \cdot 1 \cdot 1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 1,498 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$



$$\sigma_{stat, Kr-85} = \frac{\sqrt{\frac{5,0}{3000} + \frac{0,047}{240000}}}{5,0 - 0,047} = 0,008, \text{ entsprechend } 0,8\%.$$

Die Auswertung der Gaschromatogramme ergibt für die Bestimmung des Kryptonvolumens eine relative Messunsicherheit σ_{Vol} von 0,5 %.

Die mittlere Aktivitätskonzentration von Kr-85 in der bodennahen Luft in dem beprobten Sammelzeitraum beträgt:

$$A_{Kr-85} = (1,50 \pm 0,01) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

Analog wird die Aktivitätskonzentration von Xe-133 berechnet:

$$A_{Xe-133} = \frac{0,083 - 0,051}{0,883} \cdot \frac{0,087}{0,338} \cdot 1,104 \cdot 1,024 \cdot 1,531 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = 0,0159 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

$$\sigma_{stat, Xe-133} = \frac{\sqrt{\frac{0,083}{132000} + \frac{0,051}{240000}}}{0,083 - 0,051} = 0,003, \text{ entsprechend } 3\%.$$

Die Auswertung der Gaschromatogramme ergibt für die Bestimmung des Xenonvolumens eine relative Messunsicherheit σ_{Vol} von 1 %.

Die mittlere Aktivitätskonzentration von Xe-133 in der bodennahen Luft in dem beprobten Sammelzeitraum beträgt:

$$A_{Xe-133} = (0,016 \pm 0,0005) \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} \text{ oder } (16 \pm 0,5) \text{ mBq/m}^3$$

Zeitaufwand:

Erfolgt die Messung unmittelbar nach Probenentnahme, so steht das Messergebnis für Luftproben mit einem Volumen von 10 m³

- für Krypton nach etwa 3-4 Stunden,
- für Xenon je nach gewünschter Genauigkeit (Zählstatistik) bei den derzeitigen Aktivitätskonzentrationen erst nach 2 - 3 Tagen (vgl. Kapitel 8 "Nachweisgrenzen")

fest.

Bei Probenentnahmen außerhalb des Messorts tritt eine durch den Transport bedingte zeitliche Verzögerung auf. Für die innerhalb von Deutschland genommenen Proben beträgt die Transportzeit etwa 2 Tage. Diese Verzögerung vergrößert die Nachweisgrenzen bezogen auf das Probenentnahmeintervall für die kurzlebigen Xenonnuclide. Für die Messung von Kr-85 spielen die Transportzeiten aufgrund der Halbwertszeit von 10,76 Jahren und der hohen atmosphärischen Aktivitätskonzentration keine Rolle. Das Messergebnis steht nach Beendigung der Probenentnahme erst mit einer zeitlichen Verzögerung zur Verfügung und Reaktionen auf auffällige Messwerte sind zeitnah nicht möglich.



6 Genauigkeit / Reproduzierbarkeit

Die absolute Genauigkeit des Verfahrens wird zum einen durch die Kalibrierengenauigkeit der Gasstandards bestimmt, welche die Genauigkeit der Volumenbestimmung der stabilen Edelgasfraktionen begrenzen. Zum anderen gehen hier limitierend die bei der Bestimmung des effektiven Zählrohrvolumens notwendigen Korrekturen des sogenannten Wand- und Endeffektes ein. Bei diesen Randeffekten werden Zerfälle in Nähe der Zählrohrwand (Zählverluste aufgrund der Reichweite der nachzuweisenden Teilchen) bzw. an den beiden Stirnseiten (Verluste aufgrund der reduzierten Feldstärke in dem Übergangsbereich Zählrohrkörper zu Zählrohrvolumen) im Vergleich zum übrigen Zählrohrvolumen mit einer verminderten Nachweiswahrscheinlichkeit registriert und führen daher zu einer Verkleinerung des zur Radioaktivitätsmessung verfügbaren geometrischen Volumens [23]. Aus diesen Unsicherheitsbeiträgen ergibt sich für die systematische Unsicherheit ein Wert von etwa 3,5 % für Kr- und 4 % für Xe-Proben. Die statistische Unsicherheit der Aktivitätsmessung ist bei Kr-Proben kleiner 1% und beträgt bei Xe-Proben typischerweise einige Prozent. Die Reproduzierbarkeit und die Langzeitkonstanz der Kalibriermessungen mit einem Kr-85-Standardgas liegen bei etwa 1 % [24].

Die Berechnung der Aktivitätskonzentration beruht auf der Annahme ihrer Konstanz während des Probenentnahmeintervalls. Messungen mit Probenentnahmezeiten von 24 Stunden oder kleiner zeigen, dass die Aktivitätskonzentration kurzzeitigen (≤ 24 h) Schwankungen über mehrere Größenordnungen unterliegen kann. Ist der Probenentnahmezeitraum vergleichbar oder länger als die Halbwertszeit der zu messenden Nuklide, wie z.B. bei Xe-133 in Wochenproben, so ist eine weitere Unsicherheit von einigen zehn Prozent in Betracht zu ziehen, abhängig von Eintreffen und Aufenthaltsdauer der Wolke an der Probenentnahmestelle und vom Sammelzeitraum.

7 Qualitätssicherung

Zur Qualitätssicherung der Messungen werden folgende Maßnahmen durchgeführt:

- Halbjährliche Messung eines Kr-Standardgases zur Überprüfung der Konstanz der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors und der Reproduzierbarkeit von Messergebnissen.
- Wöchentliche Messung des Nulleffekts (Wochenende).
- Regelmäßige Messung der Zählrohrplateaus für Messzählrohre und Schirmzähler.
- Messung von kalibrierten Xe-133 Proben (z.B. von der PTB oder AEA Technology).
- Bestimmung der Linearität der Messsysteme.
- Vergleichsanalysen an Proben anderer Laboratorien.

8 Nachweisgrenzen

Die Nachweisgrenze G der Aktivitätskonzentration wird nach DIN 25482 (1) berechnet [25]

$$G_r = \frac{c_L}{\varepsilon_r \cdot V_G} \left\{ (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \sqrt{R_{NE} \left(\frac{1}{t_{NE}} + \frac{1}{t_m} \right)} + \frac{1}{4} (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2 \left(\frac{1}{t_{NE}} + \frac{1}{t_m} \right) \right\} \quad (6)$$

mit:

- G_r : Nachweisgrenze der Aktivitätskonzentration des Radionuklids r in $[\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}]$
- $k_{1-\alpha}, k_{1-\beta}$: Quantile der standardisierten Normalverteilung ($k_{1-\alpha}=3,0, k_{1-\beta}=1,645$)
- t_{NE} : Messzeit der Nulleffektmessung in [s]
- R_{NE} : Nulleffektszählrate in [ips]

Wird die Nachweisgrenze auf einen anderen Zeitpunkt als den der Messung bezogen, z.B. auf das Probenentnahmeintervall, so ist der Wert der Nachweisgrenze mit den entsprechenden, in Kap. 5 beschriebenen Korrekturfaktoren f_1, f_2 , und f_3 zu multiplizieren.



8.1 Krypton

Mit den Werten aus Tab. 2 und mit Gleichung (6) ergibt sich eine Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Kr-85 zum Zeitpunkt der Messung als Funktion des Kryptonvolumens V_{Kr} (in $[\text{cm}^3_{\text{STP}}]$) von

$$G_{Kr-85} = \frac{1,14}{0,883 \cdot V_{Kr}} \cdot 0,02 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \frac{0,0258}{V_{Kr}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

oder $0,006 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bei $V_{Kr} = 4,26 \text{ cm}^3$.

Die Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Kr-85 in Luftproben liegt damit um den Faktor 200 unter dem derzeitigen Aktivitätspegel. Limitierend für eine Messung ist das chromatographisch zu bestimmende Kryptonvolumen und damit die erfasste Luftmenge. Das minimale, mit dieser Apparatur noch handhabbare und analysierbare Kryptonvolumen ist $0,03 \text{ cm}^3$. Dies entspricht einem Luftvolumen von $0,026 \text{ m}^3$. Dieses Kryptonvolumen ergibt nach 15 h Messzeit eine Nachweisgrenze von etwa $0,3 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

8.2 Xenon

Mit den Werten aus Tab. 2 und mit Gleichung (6) ergibt sich eine Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Xe-133 zum Zeitpunkt der Messung als Funktion des Xenonvolumens V_{Xe} (in $[\text{cm}^3_{\text{STP}}]$) von

$$G_{Xe-133} = \frac{0,087}{0,883 \cdot V_{Xe}} \cdot 0,0037 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3} = \frac{0,0004}{V_{Xe}} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$$

oder $0,001 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ bei $V_{Xe} = 0,338 \text{ cm}^3$.

Bezogen auf den Sammelzeitraum ergibt sich nach den Korrekturen mit den Faktoren f_1 , f_2 sowie f_3 eine Nachweisgrenze von $0,0018 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

Die Nachweisgrenze für die Aktivitätskonzentration von Xe-133 in der bodennahen Luft liegt im Bereich des derzeitigen Untergrundpegels an den deutschen Stationen von etwa $0,005 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ in Wochenproben.

Das mit dieser Apparatur noch handhabbare und analysierbare Xenonvolumen ist $0,02 \text{ cm}^3$, entsprechend einem Luftvolumen von $0,230 \text{ m}^3$. Dieses Xenonvolumen ergibt nach einer Messzeit von 60 h eine Nachweisgrenze von ca. $0,015 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ für Xe-133.

9 Materialien und Geräte

Die in dieser Messanleitung näher beschriebenen Geräte zur Adsorption der Edelgase Krypton und Xenon, die Chromatographen zur Reinstdarstellung und Analyse sowie die Proportionalzählrohre sind Eigenentwicklungen des IAR. Es werden die folgenden Materialien und Geräte eingesetzt:

9.1 Probenentnahme

Adsorber, mit Aktivkohle gefüllt (siehe Abb. 1),
LN₂-Dewar-Gefäß (30-50 l),
Pumpe (Unterdruck: <0,5 hPa, Pumpleistung: 1 m³/Tag),
Ofen für die Desorption (regelbar bis 300 °C),
Alu-Druckdosen für den Versand von angereicherten Proben,
flüssiger Stickstoff (etwa 20 l/Woche),
Inertgas zum Spülen (He oder N₂).

9.2 Probenpräparation und Messung

kleiner Kohleabsorber,
 kleines LN₂-Dewar-Gefäß (1-2 l),
 Vakuumpumpe, Schlauchpumpe,
 präparativer Gaschromatograph (siehe Abb. 2),
 Proportionalzählrohr mit Elektronik,
 Analysenchromatograph,
 flüssiger Stickstoff,
 Inertgas zum Spülen (He oder N₂),
 CH₄ als Trägergas und Zählgas.

Die für den Aufbau eines Edelgasmessplatzes benötigten Messsysteme und Apparateile sind, wenn auch als Einzelanfertigungen, auch kommerziell erhältlich.

10 Messergebnisse

Als Beispiele sind die Kr-85- (Abb. 3) und die Xe-133- (Abb. 4) Messreihen der Probenentnahmestation Freiburg dargestellt.

Kr-85 ist das einzige künstliche Radionuklid, dessen Aktivitätskonzentration in der Atmosphäre kontinuierlich ansteigt, der jährliche Anstieg beträgt gegenwärtig etwa 0,03 Bq·m⁻³. Diesen Gradienten findet man bei allen Stationen. Das bedeutet, dass mehr Kr-85 in die Atmosphäre freigesetzt wird als zerfällt. Für die Edelgase ist der radioaktive Zerfall die einzige Senke.

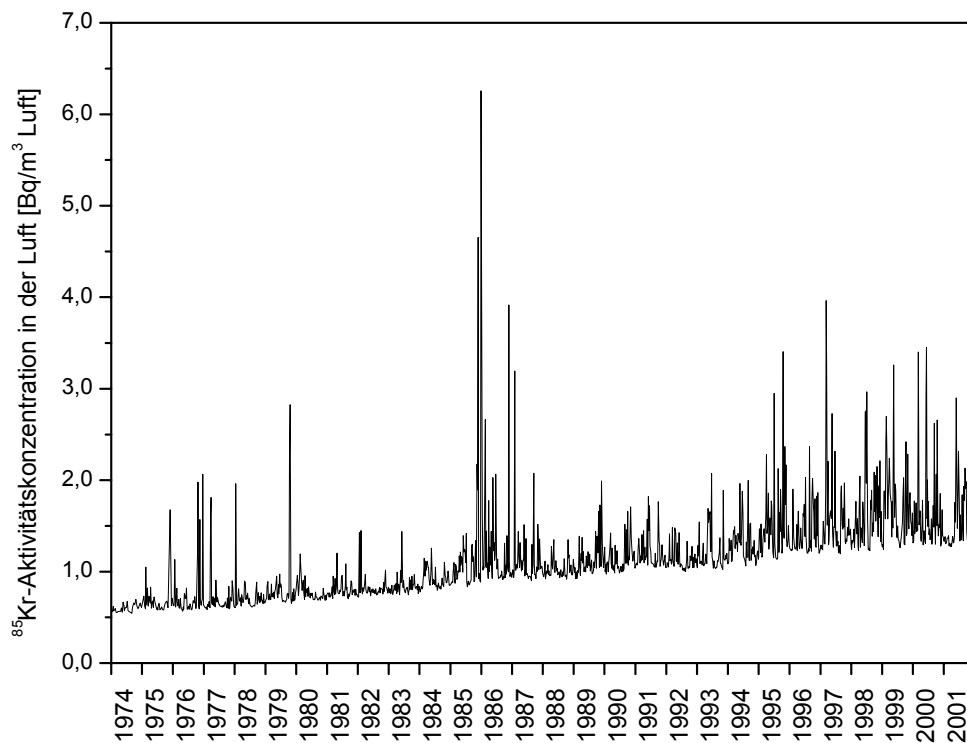


Abb. 3: Zeitlicher Verlauf der Kr-85-Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft an der Station Freiburg von 1974 bis 2001.



Des Weiteren fallen die relativ starken Schwankungen auf. Die sind damit zu erklären, dass die Station häufig in Ablufffahrten der in Europa liegenden Wiederaufarbeitungsanlagen liegt. Die hohen Messwerte in den Jahren 1985 und 1986 haben ihre Ursache in Emissionen der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK), die inzwischen stillgelegt wurde.

Die weltweit betriebenen Wiederaufarbeitungsanlagen liegen alle in der nördlichen Hemisphäre. Aus dem Vergleich der Zeitverläufe der Kr-85-Aktivitätskonzentrationen in der nördlichen mit der in der südlichen Hemisphäre kann eine hemisphärische Verweilzeit von etwa 1,5 Jahren berechnet werden [7].

Die Medianwerte liegen bei Xe-133 je nach Station zwischen $0,003$ und $0,009 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Aufgrund der kurzen Halbwertszeit der Xenonisotope unterliegt der aus Leckagen von Kernkraftwerken im Normalbetrieb resultierende Untergrundpegel ausgeprägten Schwankungen. Die Xe-133-Aktivitätskonzentrationen an der Station Freiburg zeigen in Wochenproben eine Schwankungsbreite zwischen $0,001$ und $0,1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Abb. 4). Schwankungen dieser Größenordnung werden an allen Stationen gemessen. Hohe Messwerte von $0,1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ und mehr lassen sich meist bekannten Wartungsarbeiten, wie Brennstabwechsel, in benachbarten Kernkraftwerken zuordnen. Deutlich ist die aufgrund des Reaktorunglücks in Tschernobyl um etwa drei Größenordnungen höhere Aktivitätskonzentration von $43 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ in der Wochenprobe vom 28. April bis 5. Mai 1986 zu erkennen. Zwischen 1988 und 1994 ist die tendenzielle Abnahme der Aktivitätskonzentration um etwa eine Größenordnung erkennbar, die sich auch an anderen Stationen zeigt [13]. Diese Abnahme ist auf die Verringerung der Xe-133-Emissionen aus Kernkraftwerken aufgrund von verbesserten Brennelementen und Einbau weiterer Verzögerungsstrecken und Aktivkohlebetten zurückzuführen. Diese Tendenz wurde auch in den USA festgestellt [14].

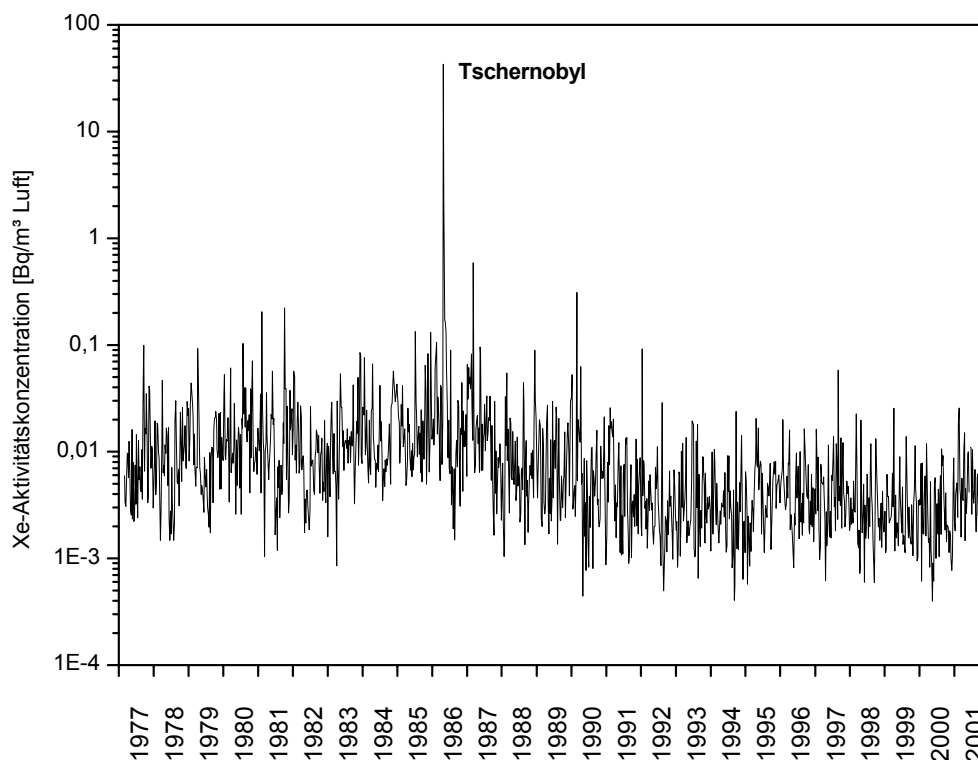


Abb. 4: Zeitlicher Verlauf der Xe-133-Aktivitätskonzentration in der bodennahen Luft an der Station Freiburg von 1977 bis 2001.



11 Weiterentwicklungen der Messtechnik für den Nachweis von Xenonnukliden

Weiterentwicklungen der Messtechnik in den letzten Jahren führten zu sehr empfindlichen Nachweismethoden für die in Tab. 1 angegebenen radioaktiven Isotope von Xenon u.a. mittels der β - γ -Koinzidenz-Methode [26] oder hochauflösender Low-Energy-HPGe-Gamma-Spektrometrie [14] mit Nachweisgrenzen im Bereich von einigen $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ und kleiner. Die sehr hohe Nachweisempfindlichkeit der β - γ -Koinzidenz-Methode für alle relevanten Xenonnuklide beruht auf der Energiespektroskopie der bei einem Zerfall koinzident emittierten Elektronen (β -Teilchen, Konversionselektronen) und der emittierten γ - und Röntgenstrahlen. Die für die Xenonmessung verwendete Nachweisteknik ist in der Literatur sehr detailliert beschrieben [2,26]. Die zerfallsspezifischen Informationen ermöglichen auch einen gleichzeitigen Nachweis der vier in Tab. 1 angegebenen Xenonisotope. Diese Zusatzinformation über die Isotopenzusammensetzung der Probe erlaubt die Unterscheidung verschiedener Emissionen, z.B. aus Kernkraftwerken, von Kernexplosionen oder medizinischen Quellen [2].

Bei der Probenentnahme, der Reinigung und der Aufkonzentrierung der Xenonfraktion kommen bei den automatischen Xenonsystemen neben dem klassischen Verfahren der Adsorption und Desorption an Aktivkohle bei verschiedenen Temperaturen auch Polymer-Permeationsmembranen [31] zum Einsatz. Das Xenonvolumen einer Probe wird entweder mittels Gaschromatographie oder über eine statische Messung der Wärmeleitfähigkeit des Gasgemisches bestimmt.

Für das Internationale Messnetz (IMS) der Organisation des Vertrages über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen (Comprehensive Nuclear Test-Ban Treaty Organisation, CTBTO) [27,28] wurden in den letzten Jahren von Institutionen in Frankreich, Russland, Schweden und den USA unabhängig voneinander vollautomatische Messsysteme für den empfindlichen Nachweis (NWG für Xe-133: 0,0001 bis 0,001 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) der radioaktiven Xenonnuklide Xe-131m, Xe-133, Xe-133m und Xe-135 in der Atmosphäre entwickelt und für den Einsatz im IMS getestet [16,29,30]. Die Sammelzeiträume für die Luftproben von nicht mehr als 24 Stunden ermöglichen mit Hilfe von Ausbreitungsrechnungen (Rückwärtstrajektorien) die Eingrenzung des Herkunftsorts und damit eine Lokalisierung der Quelle.

Am IAR wurde ein methodisches Vergleichsexperiment mit vier Systemen durchgeführt [16,32]. Die Vergleiche der vier Messsysteme zeigen eine sehr gute Übereinstimmung der Ergebnisse. Die Kontrollanalysen mit dem manuellen Edelgasmesssystem des IAR bestätigen die mit den vollautomatischen Systemen gemessenen Ergebnisse. Die neuentwickelten Systeme sind in Zukunft nicht nur in dem IMS sondern auch in nationalen Messnetzen zur Umweltüberwachung einsetzbar. Gegenüber der jetzigen Methode bieten sie den Vorteil des gleichzeitigen empfindlichen Nachweises von Xe-131m, Xe-133, Xe-133m und Xe-135 verbunden mit einer hohen zeitlichen Auflösung.

12 Bewertung des IAR-Verfahrens

Die Edelgasmesssysteme des IAR wurden vor mehr als 20 Jahren für die Überwachung der Aktivitätskonzentrationen von Kr-85 und Xe-133 in der Atmosphäre entwickelt. Das Gesamtsystem besteht aus zwei Messplätzen mit je zwei Messzählrohren, umgeben von einem Schirmzählrohr in einer gemeinsamen Bleiabschirmkammer. Es handelt sich dabei, von der Probenentnahme bis zur Aktivitätsbestimmung, um rein manuelle Systeme. Als Sammelintervalle sind im Routinemessbetrieb wöchentliche Probenentnahmen vorgesehen.

Die Systeme haben sich in diesen Jahren als sehr robust und zuverlässig erwiesen. Die Bedienung des Systems ist einfach und die Arbeitsweise nachvollziehbar. Es erfüllt die Aufgaben, für die es konzipiert wurde und die in der AVV-IMIS aufgeführten Anforderungen. Im Routinebetrieb werden jährlich etwa 1000 Umweltproben (600 Kr- und 400 Xe-Proben) gemessen. Hinzu kommen Sondermessungen zur Qualitätssicherung oder im Rahmen von Sondermessprogrammen. Der Verlust von Proben bei der Probenentnahme oder der Probenaufbereitung liegt bei weniger als 1%. Für die Durchführung und Auswertung der Messungen sind ca. 1,5 Personengänge bei dem Probenaufkommen am IAR notwendig.



Im Vergleich mit den vollautomatischen Messsystemen zeigen die manuell betriebenen Systeme folgende Vorteile:

- Für das Messnetz wird nur in einem zentralen Labor ein teures Messsystem benötigt, die Probenentnahme erfolgt an den Sammelstationen mit geringem personellen und finanziellen Aufwand.
- die Volumenbestimmung der Luft ist mittels des angewandten Verfahrens der Gaschromatographie mit nur kleiner Messunsicherheit möglich.
- Radon wird bei der präparativen Gaschromatographie abgetrennt und gelangt nicht in das Messzählrohr. Radon kann als Verunreinigung des Zählgases bei den betrachteten automatischen Systemen zum Untergrund beitragen, was besonders in Gebieten mit hohen Radonkonzentrationen in der Atmosphäre eine wesentliche Untergrundquelle sein kann.

Hauptsächliche Nachteile des Systems sind:

- Das Messergebnis liegt oft erst Tage nach dem Ende der Probenentnahme vor. Dies gilt vor allem auch im Falle einer notwendigen Aufarbeitung von Tagesproben.
- Die gleichzeitige Messung der Xenonnuklide mit kleinen Nachweisgrenzen ist nicht möglich, die Isotopenzusammensetzung ist nur bedingt über eine Entfaltung der Zerfallskurve (Halbwertszeitanalyse) des Gemischs messbar.
- Die für die Anwendung von Ausbreitungsrechnungen benötigte zeitliche Auflösung von nicht mehr als 24 h ist in Echtzeit nicht möglich.
- Für die Probenentnahme, die Probenaufbereitung und Durchführung der Messungen wird permanent Personal benötigt.

Für den Laborgebrauch könnten auch halbautomatische Systeme aufgebaut werden, welche die Vorteile der manuellen Probenentnahme und Probenpräparation mit denen der neuen Detektorsysteme vereinen.

13 Literatur

- [1] Allgemeine Verwaltungsvorschrift zum Integrierten Mess- und Informationssystem nach dem Strahlenschutzvorsorgegesetz (AVV-IMIS) vom 27. September 1995 mit den Anlagen 1 und 2, Bundesanzeiger Jahrgang 47, Nummer 200a, 24. Oktober 1995.
- [2] Bowyer, T.W. et al., Xenon Radionuclides, Atmospheric Monitoring, In: 'Encyclopedia of Environmental Analysis and Remediation', Robert A. Meyers (editor), John Wiley & Sons Inc., 5299-5314 (1998)
- [3] Table of Isotopes, Eight Edition, R. B. Firestone and V.S. Shirley (Editor), John Wiley & Sons Inc. (1996)
- [4] Sittkus, A. und H. Stockburger, Krypton-85 als Indikator des Kernbrennstoffverbrauchs, Naturwissenschaften 63, 266-272 (1976).
- [5] Kalinowski, M., H. Sartorius, S. Uhl, W. Weiss, Rückschließbarkeit auf Plutoniumabtrennungen durch Auswertung von Messungen des atmosphärischen Krypton-85 in Wochenproben bei verschiedenen Abständen von der Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe, IANUS-TU Darmstadt, Arbeitsbericht IANUS 3/1998
- [6] Weiss, W., H. Stockburger, H. Sartorius, R. Rozanski, C. Heras and H.G. Östlund, Mesoscale Transport of ^{85}Kr originating from European Sources, Nuclear Instruments and Methods B17, 571-574 (1986).
- [7] Weiss, W., Sartorius, H. and Stockburger, H. Global distribution of atmospheric ^{85}Kr . A database for the verification of transport and mixing models. In 'Isotopes of noble gases as tracers in environmental studies', 29-62 (1992), Vienna: IAEA.



- [8] Levin, I. and V. Hesshaimer, Refining of atmospheric transport model entries by the globally observed passive tracer distributions of ^{85}Kr and sulphur hexafluoride (SF_6), *J. Geoph. Res.* Vol 101, No. D11, 16,745-16,755 (1996).
- [9] WMO/GAW report No. 109 (TD No. 733), Report of an Expert Consultation on ^{85}Kr and ^{222}Rn : measurements, effects and applications; Freiburg, Germany, 28-31 March 1995.
- [10] Stockburger, H., H. Sartorius und A. Sittkus, Messung der Krypton-85- und Xenon-133-Aktivität der atmosphärischen Luft, *Z. Naturforsch.* 32a, 1249-1263 (1977).
- [11] Igarashi, Y., Aoyama, M., Nemoto, K., Katsumi Hirose, K., Takashi Miyao, T., Fushimi, K., Suzuki, M., Yasui, S., Asai, Y., Aokid, I., Fujiie, K., Yamamoto, S., Sartorius, H., and Weiss, W., (2001) ^{85}Kr measurement system for continuous monitoring at Meteorological Research Institute, Japan, *Journal Environmental Monitoring*, 3, 688-696 (2001).
- [12] Igarashi, Y., Sartorius, H., Miyao, T., Weiss W., Fushimi, K., Aoyama, M. Hirose, K., and Inoue, H., ^{85}Kr and ^{133}Xe Monitoring at MRI, Tsukuba and its Importance, *Journal of Environmental Radioactivity*, 48, 191-202 (2000).
- [13] (a) Sartorius, H., Spurenanalyse: Die radioaktiven Edelgase Kr-85 und Xe-133, *BfS Jahresbericht 1992*, S 102.
(b) Sartorius, H., Der Xenon-Untergrundpegel in Deutschland, *BfS Jahresbericht 1997*, S 82.
(c) Sartorius, H., Der Krypton-85 Untergrundpegel in der nördlichen Hemisphäre, *BfS Jahresbericht 1998*, S 67.
- [14] Bowyer, T.W. et al., Ambient ^{133}Xe levels in the Northeast US, *J. Environmental Radioactivity* 37, No.2, 143-253 (1997)
- [15] Kunz, C., Xe-133: Ambient Air Concentrations in Upstate New York, *Atmospheric Environment* 23, No. 8, 1827-1833 (1989).
- [16] Bowyer, T.W.; Schlosser, C.; Abel, K.H.; Auer, M.; Hayes, J.C.; Heimbigner, T.R.; McIntyre, J. I.; Panisko, M. E.; Reeder, P. L.; Sartorius, H.; Schulze, J.; Weiss, W. A Demonstration of High Sensitivity Automated Detection and Analysis of Xenon Isotopes for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty International Monitoring System Using the U.S. DOE ARSA, *Journal of Environmental Radioactivity*, 59, 139-151 (2002)
- [17] Sax, N. I., Robert R. Reeves and J. David Denny, Surveillance for Krypton-85 in the Atmosphere, *Radiological Health Data and Reports*, March 1969
- [18] Shuppig, E., C. R. Phillips and A. A. Moghissi, Krypton-85 Levels in the Environment Determined from Dated Krypton Gas Samples, *Radiological Health Data and Reports*, December 1970
- [19] Janssens, A., F. Raes, E. Cottens, G. Eggermont, J. Buysse, Measurement of low-level activity of ^{85}Kr in air, IAEA-SM-252/37, 1981
- [20] Wilhelmova, L., M. Tomasek, Z. Dvorak, Monitoring of the atmospheric activity of ^{85}Kr in Prague, 3rd Int. Conf. "Low Radioactivities '85", Bratislava, 1985
- [21] Salvamoser, J., Überblick über die Messung von Krypton-85-Gehalten in der Atmosphäre und im Wasser, 6. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität, Karlsruhe, 15.-17. April 1986.
- [22] „Krypton/Xenon Sammelapparatur“, IAR internes Manual (in deutsch oder englisch), auf Anfrage vom IAR erhältlich



LOSEBLATTSAMMLUNG FS-78-15-AKU

**EMPFEHLUNGEN ZUR ÜBERWACHUNG
DER UMWELTRADIOAKTIVITÄT**

Blatt: 3.4.9

Seite: 16

Stand: Juli 2002

- [23] (a) Engelkemeir, A.G. and W.F.Libby, End and Wall Corrections for Absolute beta-Counting in Gas Counters, *The Review of Scientific Instruments* 21, No. 6, 550-554 (1950)
(b) Tschiersch, J., Untersuchung der atmosphärischen Ausbreitung durch Immissionsmessungen von Xenon-133 am Kernkraftwerk Fessenheim, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (1986); GSF-Bericht 19/86
- [24] (a) Weiss, W., H. Stockburger und H. Sartorius, Messung der zeitlichen Zunahme der Kr-85-Aktivität der Luft in Mitteleuropa, in: Fachgespräch zur Überwachung der Umweltradioaktivität, Darstellung und Erörterung ausgewählter und spezieller Verfahren zur Überwachung der natürlichen und künstlichen Radioaktivität in der Umwelt, Karlsruhe 15-17-April 1986, 307-321.
(b) Sartorius, H., Die Überwachung des Edelgases Kr-85, *BfS Jahresbericht 1994*, S 123.
- [25] Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen, Herausgeber: Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, Urban & Fischer Verlag Jena, Stand 1.10.2000, IV.5 Nachweis- und Erkennungsgrenzen verschiedener Messmethoden § 2.1.
- [26] (a) Pezzoni, S., Non solar-neutrino production of ^{71}Ge in GALLEX, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (1995).
(b) Reeder, P.L., T.W. Bowyer and R.W. Perkins, Beta-gamma counting system for Xe fission products, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 235, 89-94 (1998)
(c) Reeder, P.L. and T.W. Bowyer, Xe isotope detection and discrimination using beta spectroscopy with coincident gamma spectroscopy, *Nuclear Instruments and Methods A* 408, 582-590 (1998)
(d) Reeder, P.L. and T.W. Bowyer, Delayed coincidence technique for ^{133}Xe detection, *Nuclear Instruments and Methods A* 408, 573-581 (1998)
- [27] (a) Atomteststopp-Verifikation I, *Spektrum der Wissenschaft*, 88-97, Juli 1997
(b) Atomteststopp-Verifikation II, *Spektrum der Wissenschaft* 94-111, August 1997
(c) Kerntechnik, Special Subject: Monitoring the Nuclear-Test-Ban, Vol. 66, No. 3 (2001)
- [28] Schulze, J., M. Auer and R. Werzi, Low level radioactivity measurement in support of the CTBTO, *Applied Radiation and Isotopes* 53, 23-30 (2000).
- [29] Larson, T., A. Ringbom, I. Vintersved, K. Elmgren and M.A. Waldenvik, System for automatic sampling and detection of radioactive xenon at room temperature, presented on 'Third International Meeting on Low-Level Air Radioactivity Monitoring', 25-29 September 2000, Dabrownó, Poland
- [30] Bowyer, T.W. et al., Field testing of collection and measurement of radioxenon for the Comprehensive Test Ban Treaty, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 240, 109-122 (1999)
- [31] Informationen über Membrane sind unter www.angelfire.com/me/ozanpage/membrane.html erhältlich.
- [32] Schlosser, C., Xenon-Vergleichsexperiment im Rahmen des Vertrages über das umfassende Verbot von Nuklearversuchen, *BfS Jahresbericht 2000*, 23.