

KFK-21

Bau- und Betriebs-Gesellschaft
Zentralbüro

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

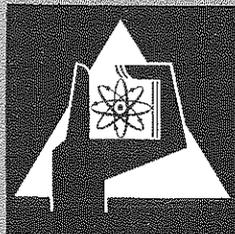
März/April 1960

KFK 21

Strahlenmeßabteilung

Der heutige Stand der
Radioaktivitätsüberwachung im Wasser

H. Kiefer und R. Maushart



KERNREAKTOR

BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.

KARLSRUHE

Der heutige Stand der Radioaktivitätsüberwachung im Wasser

Dr. H. Kiefer und Dr. R. Maushart,
Kernforschungszentrum Karlsruhe (Deutschland)

Zusammenfassung

Im ersten Teil ihrer Arbeit besprechen die Verfasser die Aufgaben der Radioaktivitätsüberwachung im Wasser. Hierauf wird auf die Überwachungsmethoden eingegangen, welche im einzelnen besprochen werden. In diesem Teil werden die direkten Verfahren erläutert: β -Überwachung; α -Überwachung; γ -Überwachung.

Résumé

La première partie de cet exposé traite des buts du contrôle de la radio-activité des eaux. Les différentes méthodes sont discutées en détail. Le présent chapitre s'occupe des procédés de contrôle direct: contrôle des radiations β ; contrôle des radiations α ; contrôle des radiations γ .

Summary

In the first part of this paper, the authors give a view on the tasks of the control of radioactivity in water. The different control methods are discussed. This chapter deals with the methods of direct control: β -control; α -control; γ -control.

Aufgaben der Wasserüberwachung

In den letzten Jahren sind der Umgang mit radioaktiven Isotopen, ihre Erzeugung und ihr Verbrauch in Wissenschaft, Industrie und Technik zur täglichen Aufgabe geworden. Wir haben uns damit abzufinden, daß radioaktive Isotope genau wie andere konventionelle Industrieabfälle in gewissen Mengen mit dem Wasser und in dem Wasser abführbar sein müssen. Um Schädigungen zu vermeiden, sind in nationalen und internationalen Empfehlungen und Gesetzen maximal zulässige Konzentrationen erarbeitet worden. Die Aufgabe der Wasserüberwachung liegt darin, dafür zu sorgen, daß diese Höchstgrenzen für die radioaktiven Isotope nirgends überschritten werden. Dabei kann die Problemstellung durchaus mit derjenigen bei der Überwachung auf konventionelle Gifte verglichen werden. So wie beispielsweise der Feststoffgehalt einer Wasserprobe noch kein Maß für die chemische Toxizität des Wassers darstellt, so ist auch eine gemessene Radioaktivität – ohne die Kenntnis, um welches spezielle Radionuklid es sich handelt – noch kein Maß für eine Strahlengefährdung bei der Benützung des Wassers. Die Gefährdung ist bei jedem Isotop verschieden und hängt von physikalischen, chemischen und physiologischen Faktoren ab. Deshalb darf etwa von dem in biologischen Laboratorien häufig verwendeten Isotop Kohlenstoff 14 eine 80 000-mal höhere Aktivität im Wasser sein als von dem in der Uhrenindustrie anfallenden Radium 226. Auch die Meßmethoden müssen, um überhaupt eine Aussage zu erlauben, wie bei der Chemie spezifisch auf die zu erwartenden und zu überwachenden Stoffe zugeschnitten sein. Dabei läßt sich von der Meßtechnik her bereits eine grobe Einteilung in reine α -, reine β -Strahler, α - γ - und β - γ -Mischstrahler sowie in

die seltenen reinen γ -Strahler vornehmen. Man kann die 1. und 3. Gruppe durch Überwachung der α -, die 2., 4. und 5. Gruppe durch Überwachung der β -Aktivität erfassen. Eine Überwachung lediglich der γ -Aktivität würde die sehr wichtigen Gruppen 1 und 2 außer acht lassen. Unabhängig von dieser Einteilung können die einzelnen Isotope im Wasser in den verschiedensten Formen, etwa als gelöste Gase, ional, kolloidal, suspendiert oder an gröbere Verunreinigungen adsorbiert vorkommen. Da es keine Methode gibt, die allen diesen Möglichkeiten gleichermaßen gerecht wird, müssen bei allgemeinen Überwachungsaufgaben, also immer dann, wenn man es mit noch völlig unbekanntem Isotopen zu tun hat, unter meist relativ großem Aufwand Kombinationen von mehreren Methoden benutzt werden. Umgekehrt ist jede Messung um so einfacher durchzuführen und ihr Ergebnis um so genauer, je besser die zu messenden Isotope bekannt sind. Das wird in erster Linie dort der Fall sein, wo die Isotope unmittelbar in das Wasser abgegeben werden, das heißt bei Isotopenverbrauchern. Demnach hat eine sinnvolle Wasserüberwachung dort einzusetzen.

Die konsequente Durchführung der Überwachung bei allen Isotopenverbrauchern würde eine weitere Überwachung an anderen Stellen überflüssig machen. Trotzdem ist es verständlich, wenn zum Beispiel Betriebe der Fotoindustrie oder auch Wasserwerke eine eigene Kontrolle anstreben, da auf der einen Seite heute noch nicht alle Isotopenverbraucher genügend bekannt und erfaßt sein dürften, zum andern immer mit der Möglichkeit von bewußter Umgehung der Vorschriften seitens der Isotopenverbraucher oder mit Unglücksfällen gerechnet werden muß. Da aber etwa ein Wasserwerk oft nicht wissen kann, welche Isotope die Verbraucher in seinem Einzugsgebiet abgeben, muß es für eine wirksame Überwachung an dieser Stelle einen entsprechend hohen Aufwand treiben. Oft wird es allerdings auch ausreichend sein, auf eine genaue Messung zu verzichten und sich mit einer *Warnung* zu begnügen, deren Möglichkeiten und Grenzen im folgenden noch beschrieben werden.

Es fehlt nicht an Bestrebungen, zur Vereinfachung der Meßmethoden die maximal zulässige Konzentration des oder der gefährlichsten Isotope als Richtwert für die überhaupt zulässige Aktivitätskonzentration im Wasser festzulegen. Dadurch will man sich eine Identifizierung einzelner Isotope bei der Überwachung ersparen. Wenn dieses Vorgehen auf den ersten Blick auch bestechend erscheinen mag, so bedeutet es doch eine wirtschaftlich kaum zumutbare Belastung für alle Verbraucher von ungefährlichen Isotopen, die dadurch gezwungen wären, ihre Abgabe von Radioaktivität ins Abwasser in so niedrigen Grenzen zu halten, wie sie vom Strahlenschutzstandpunkt her in keiner Weise gerechtfertigt sind. Um eine begründete Entscheidung darüber fällen zu können, ob nun die höhere Konzentration eine effektive Gefährdung der Wasserverbraucher bedeutet – und nur darauf kommt es an –, muß letzten Endes immer in irgendeiner Form analysiert werden. Bei nicht zu hohen Konzentrationen wird es oft einfacher sein, an Stelle der Identifikation der vorhandenen Nuklide auf das Nichtvorhandensein bestimmter gefährlicher Isotope zu prüfen.

Methoden zur Wasserüberwachung

Eine sinnvolle Wasserüberwachung läßt sich systematisch in drei Stufen aufbauen.

In der ersten Stufe wird das Wasser automatisch kontinuierlich überprüft. Eine solche Anlage soll wartungsfrei arbeiten. Sie hat als «Wasserwächter» lediglich die Aufgabe anzuzeigen, ob überhaupt eine Radioaktivität vorhanden ist, die unter Umständen eine Gefährdung darstellen kann. Die tatsächliche Höhe der Aktivität läßt sich aus dieser Anzeige im allgemeinen nicht entnehmen. Ab einer bestimmten Höhe des Anzeigewertes, die noch zu diskutieren sein wird, muß daher als zweite Stufe eine *Aktivitätsmessung* erfolgen. Von deren Ergebnis hängt es ab, ob und in welchem Umfang zur Bestimmung der Gefährdung als dritte Stufe eine Identifizierung einzelner Radionuklide sich anzuschließen hat.

Je nach der einzelnen Meßaufgabe wird man natürlich auch mit nur einer oder zwei der hier aufgeführten Stufen auskommen bzw. in einem Meßgang mehrere dieser Stufen zugleich erfassen. Trotzdem ist es zur klaren Herausarbeitung der Verhältnisse sehr nützlich, sich die Möglichkeiten und Grenzen der einzelnen Stufen gesondert zu betrachten.

Direktüberwachung

Die Direktüberwachung soll automatisch, das heißt ohne besondere Wartung und unmittelbar, das heißt verzögerungsfrei anzeigen. Sie soll weiter auf alle im Wasser vorhandenen Radionuklide ansprechen, weshalb sich jedes noch so schnelle Anreicherungsverfahren wegen seiner unvermeidbaren Selektivität verbietet. Wichtigstes Glied der Anlage ist daher ein Detektor, der die aus dem Rohwasser austretende Strahlung direkt erfaßt. Um eine kontinuierliche Anzeige zu erreichen, werden die Impulse aus dem Detektor auf einen Mittelwertsmesser gegeben, der die Impulsrate anzeigt und gegebenenfalls auf einem Schreiber registriert. Diese Impulsrate setzt sich zusammen aus der Nulleffektsrate und der Meßrate.

Die Empfindlichkeit der Anlage wird durch die statistische Schwankung der Nulleffektsrate begrenzt, die einerseits von deren Höhe J (Impulse/min), andererseits von der Zeitkonstante τ (min) des Mittelwertsmessers abhängt. Als Nachweisgrenze muß eine Meßrate betrachtet werden, die wesentlich oberhalb der statistischen Schwankung des Nulleffekts liegt. In der Praxis hat sich gezeigt, daß für die Dauermessung eine Anzeige erst oberhalb der vierfachen statistischen Standard-Schwankung verwertbar wird. Als Nachweisgrenze der Anlage für ein bestimmtes radioaktives Isotop definieren wir demnach diejenige spezifische Aktivität α ($\mu\text{c/ml}$) des Isotops, die im Detektor eine Impulsrate n von

$$n = 4 \sqrt{\frac{J}{2\tau}} \text{ bewirkt.}$$

Die Nachweisgrenze liegt demnach um so niedriger, je höher man die Zeitkonstante wählt. Andererseits bedingt eine zu hohe Zeitkonstante durch die Trägheit des Instruments entgegen unserer Absicht eine gewisse Verzögerung in der Anzeige. Auch hier stellt aus den Erfahrungen der Praxis heraus eine Zeitkonstante von etwa 3 Minuten einen günstigen Kompromiß dar.

Um eine hohe Empfindlichkeit zu erreichen, muß die Strahlung aus einem großen Wasservolumen stammen, das heißt auf der einen Seite muß der verwendete Detektor großflächig sein, auf der anderen Seite sollte die ausgenützte Wasserdicke der Strahlungsreichweite im Wasser entsprechen.

Da bei gegebener Strahlungsart die Reichweite im Wasser natürlich sehr stark von der Energie der Strahlung abhängt, zeichnet sich hier bereits als größter Nachteil solcher kontinuierlich arbeitender Anlagen ihre Energieabhängigkeit ab. Die angezeigte Impulsrate ist keinesfalls ein Maß für die im Wasser vorhandene Aktivität. Deren Messung ist mit einer solchen Anlage nur in den seltenen Grenzfällen möglich, in denen der Strahler und damit seine Energie genau bekannt ist.

Trotzdem ist es in vielen Fällen sinnvoll, solche Anlagen einzusetzen, wie im folgenden diskutiert werden soll. Dabei ist es zweckmäßig, mit der Besprechung der β -Strahlung zu beginnen, die vom Überwachungsstandpunkt her die wichtigste Anwendung darstellt.

β -Überwachung: Die einfachste Anlage zur β -Überwachung ist ein völlig ins Wasser eingetauchtes β -empfindliches Zählrohr. Die größten zurzeit im Handel erhältlichen Zählrohre, die dazu verwendet werden können, haben eine wirksame Oberfläche von 380 cm² und eine Wandstärke von etwa 200 μ Aluminium. Die von uns mit verschiedenen Isotopen bestimmte Nachweisgrenze für dieses Zählrohr in Abhängigkeit von der Maximalenergie der β -Strahlung ist in Figur 1 eingezeichnet (gestrichelte Kurve). Die starke Energieabhängigkeit der Nachweisgrenze zeigt noch einmal mit aller Deutlichkeit, daß eine solche Anlage nicht dazu imstande ist, einen Meßwert für die Aktivität zu liefern, solange der auszusendende Strahler nicht genau bekannt ist. Die gleiche Impulszahl in der Anzeige kann bei verschiedenen Strahlern spezifischen Konzentrationen entsprechen, die sich um mehrere Zehner-Potenzen unterscheiden. Soll eine solche Anlage einen Sinn haben, muß die Nachweisgrenze für alle zu überwachenden Isotope unterhalb der maximal zulässigen Konzentration liegen. Der Wert der Anlage besteht dann darin, daß sie ein Alarmsignal liefern kann, das die Notwendigkeit einer genaueren Messung anzeigt. Bei Nichtvorhandensein dieses Alarmsignals steht mit Sicherheit fest, daß keiner der zu überwachenden Strahler seine maximal zulässige Konzentration überschritten hat. Wenn dagegen der Alarm anspricht, muß die Messung einer Einzelprobe zeigen, ob einer der zu überwachenden Strahler die maximal zulässige Konzentration überschritten hat oder nicht. Die in Figur 1 gleichfalls miteingetragenen maximal zulässigen Konzentrationen der wichtigsten β -strahlenden Isotope zeigen, daß das Eintauchzählrohr in dieser einfachen Form nicht in der Lage ist, eine ganze Reihe von Strahlern unterhalb ihrer maximal zulässigen Konzentration nachzuweisen.

Ein weiterer und entscheidender Nachteil einer solch einfachen Eintauchanlage ist die mögliche Kontamination der mit dem Wasser in unmittelbarer Berührung stehenden Oberfläche des Detektors. Dadurch macht sich bereits bei sehr geringen im Wasser vorhandenen Aktivitäten mit der Zeit ein Anstieg der Anzeige bemerkbar, der mit der spezifischen Aktivität

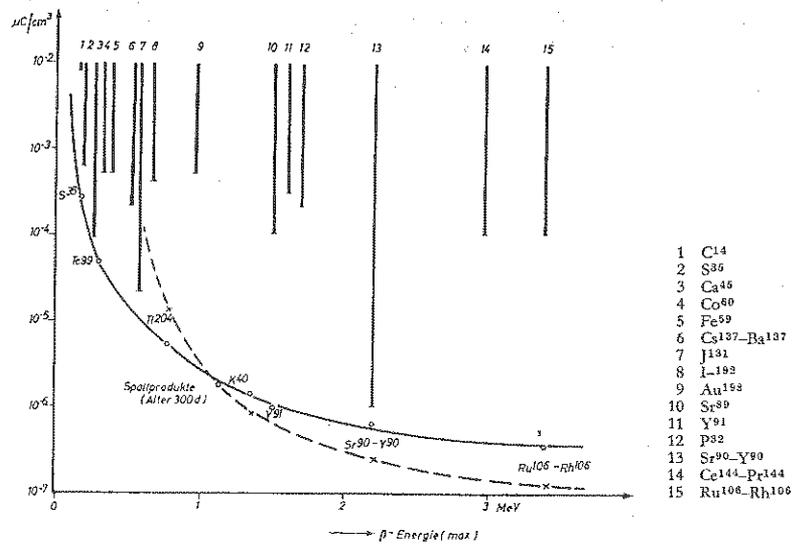


Fig. 1 Nachweisgrenzen der direkten β -Überwachung
 - x - x - x - Eintauchzählrohr von 380 cm² Oberfläche und 65 mg/cm² Wandstärke hinter 10 cm Stahlabschirmung. Nulleffekt \approx 100 Imp./min
 - o - o - o - Differenz-Durchflußzähler von 2 \times 400 cm² Oberfläche und 3 mg/cm² Fensterdicke, keine Abschirmung
 Die senkrechten Striche bedeuten maximal zulässige Konzentrationen der einzelnen Strahler (siehe Schrifttum [15] im zweiten Teil dieser Arbeit)

Fig. 1 Nachweisgrenzen der direkten β -Überwachung

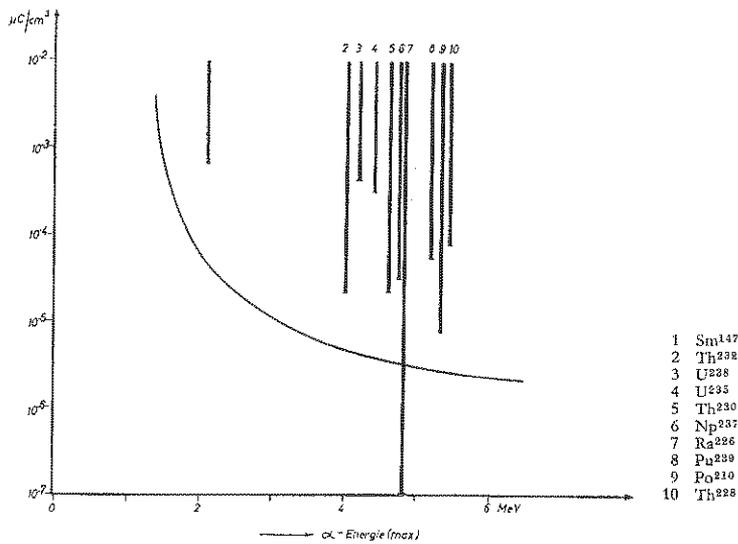


Fig. 2 Nachweisgrenzen der direkten α -Überwachung
 - - - - - Durchflußzähler von 1000 cm² Oberfläche und 1 mg/cm² Fensterdicke. Nulleffekt \approx 10 Imp./min
 Die senkrechten Striche bedeuten maximal zulässige Konzentrationen der einzelnen Strahler (siehe Schrifttum [15] im zweiten Teil dieser Arbeit)

Fig. 2 Nachweisgrenzen der direkten α -Überwachung

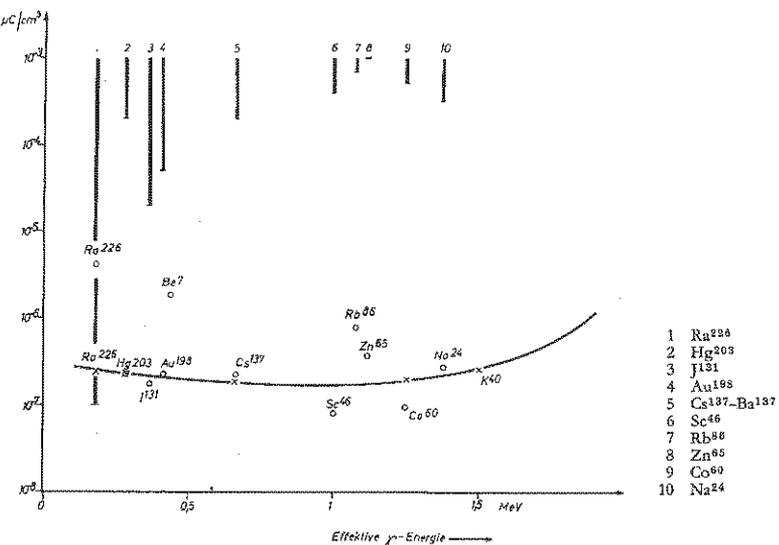


Fig. 3 Nachweisgrenzen der direkten γ -Überwachung
 o o o o 2,5' \times 2,5'-NaJ-Kristall mit 1,5-l²-Ringschale hinter 10 cm Blei
 Nulleffekt \approx 500 Imp./min
 x - x - x Berechnete Energieabhängigkeit für aktive γ -Strahler mit 1 γ -Quant per Zerfall
 Die senkrechten Striche bedeuten maximal zulässige Konzentrationen der einzelnen Strahler (siehe Schrifttum [15] im zweiten Teil dieser Arbeit)

Fig. 3 Nachweisgrenzen der direkten γ -Überwachung

des Wassers nicht in Zusammenhang gebracht werden kann. Für kontinuierlich messende Anlagen muß deshalb verlangt werden, daß der Detektor nicht unmittelbar mit dem auszumessenden Wasser in Berührung kommt. Da sich mit oberhalb der Wasseroberfläche angeordneten konventionellen Zählrohren keine sehr günstigen Geometrieverhältnisse erreichen lassen, liegen Versuche vor, mit Hilfe der Zentrifugalkraft einen zylinderförmigen Wassermantel um ein Zählrohr herum zu erzeugen, wobei das Zählrohr mit der Oberfläche selbst nicht in Berührung steht [1]. Weiter wurden verschiedene mit β -Szintillationszählern arbeitende Anlagen gebaut [2]. Szintillationszähler sind jedoch durch wirtschaftliche Überlegungen in ihrer Flächenausdehnung begrenzt und erfordern zur Einhaltung eines konstanten Nulleffekts eine weit entwickelte Stabilisierung der Hochspannung. Auch die Temperaturempfindlichkeit dieser Geräte macht sich in manchen Fällen störend bemerkbar. Alle diese Anlagen erreichen nicht die Empfindlichkeit des Eintauchzählrohrs.

Die im *Kernforschungszentrum Karlsruhe* durchgeführte Entwicklung großflächiger Methandurchflußzähler hat neuerdings die Möglichkeit gegeben, durch den Einsatz solcher Zähler, die durch ihre extrem dünnen ebenen Fenster mit bis zu 1000 cm² Fläche für die Anbringung über der Wasseroberfläche sehr geeignet sind, die kontinuierliche β -Überwachung in verschiedener Hinsicht zu verbessern. Der Methandurchflußzähler vereinigt einfache Bauart mit den Vorteilen einer praktisch unbegrenzten Lebensdauer und weitgehender Unempfindlichkeit gegenüber Temperaturschwankungen. Die Anordnung zweier Zähler in Differenz, von denen der eine nur den Nulleffekt, der andere Nulleffekt + β -Strahlung aus dem Wasser erfaßt [3], ermöglicht eine Unterdrückung aller langfristigen, nicht statistischen Nulleffektschwankungen, die sowohl natürlichen Ursprungs (zum Beispiel starke Regenfälle) sein können als auch durch das Arbeiten mit Strahlenquellen innerhalb kerntechnischer Anlagen und Laboratorien verursacht werden. Die experimentell ermittelte Nachweisgrenze einer solchen Anlage ist ebenfalls in Figur 1 (ausgezogene Linie) eingezeichnet. Sie zeigt, daß hier auch noch die schwachenergetischen β -Strahler bis zum Kohlenstoff 14 unterhalb ihrer maximal zulässigen Konzentration erfaßbar sind.

α -Überwachung: Infolge der kurzen Reichweite der α -Strahlung in Wasser gilt eine Direktüberwachung im Bereich der maximal zulässigen Konzentrationen für α -Strahler als problematisch. Kommerzielle kontinuierliche Anlagen nennen Nachweisgrenzen von mehreren 10^{-5} $\mu\text{C}/\text{cm}^3$, wobei allerdings Zeitkonstanten bis zu einer Stunde verwendet werden [4]. Auch hier bringt der Einsatz großflächiger Methandurchflußzähler wesentliche Verbesserungen. Welche Nachweisgrenzen sich mit einem solchen Zähler von 1000 cm² Fläche unter den gleichen Bedingungen wie bei der β -Überwachung (Zeitkonstante 3 min) erreichen lassen, ist in Abhängigkeit von der Energie der α -Strahlung in Figur 2 dargestellt. Man sieht, daß sich die Energieabhängigkeit in viel kleineren Bereichen bewegt, als bei der β -Überwachung (maximal für die interessierenden α -Strahler um den Faktor 10), so daß hier in erster Näherung von einer *Aktivitätsmessung* gesprochen werden kann.

Aus den gleichfalls eingetragenen maximal zulässigen Konzentrationen für einzelne α -Strahler ist ersichtlich, daß die Nachweisgrenze zur Auslösung eines Alarmsignals noch unterhalb der maximal zulässigen Konzentration aller α -Strahler mit Ausnahme von Radium 226 ausreicht. Die Anlage kann daher, mit Ausnahme der Fälle, wo mit diesem Strahler gerechnet werden muß, zur α -Überwachung zum Einsatz kommen.

γ -Überwachung: Die kontinuierliche Überwachung der γ -Strahlung ist nur dort angebracht, wo man sicher ist, daß man es nicht mit reinen β -Strahlern, wie Strontium 90, Schwefel 35, Phosphor 32 oder Kohlenstoff 14 zu tun hat. Hinsichtlich ihrer Empfindlichkeit bietet sie jedoch gewisse Vorteile, weil man in der Lage ist, mit Detektoren hoher Ansprechwahrscheinlichkeit (Szintillationskristall) zu arbeiten und zur Messung die Strahlung aus relativ dicken Wasserschichten (mehrere Dezimeter) auszunützen. Allerdings liegt bei solchen Detektoren meist der Nulleffekt sehr hoch. Auch das Verseuchungsproblem spielt eine besondere Rolle, denn selbst wenn der Zähler mit dem Wasser nicht in Berührung stünde, was aus Gründen der schlechten Geometrie unvorteilhaft erscheint, muß immer noch damit gerechnet werden, daß γ -Strahlung von an den Gefäßwänden abgelagerter Aktivität in den Detektor gelangt.

In Figur 3 ist die Nachweisgrenze der zurzeit wohl günstigsten kommerziellen Anlage für verschiedene γ -Strahler dargestellt. Sie arbeitet mit einem Szintillationskristall von 6,2 cm Durchmesser und einem in einer Ringschale um den Kristall angeordneten Wasservolumen von 1,5 l. Die ganze Anlage ist mit einer Bleiabschirmung von 10 cm Stärke umgeben [2, 5].

Da bei γ -Strahlern ein Zerfall fast immer mit der Emission von weniger oder mehr als 1 γ -Quant verknüpft ist, wird die vom Gerät angezeigte Impulszahl nicht nur abhängig von der Aktivität und der Energie, sondern auch vom Zerfallsschema des jeweiligen Isotops. Wir haben deshalb aus unseren Meßpunkten für Radium 226, Quecksilber 203, Barium 137, Kobalt 60 und Kalium 40 sowie den bekannten Zerfallsschemata dieser Isotope die Nachweisgrenze für fiktive γ -Strahler (1 Zerfall von 1 γ -Quant begleitet) in Abhängigkeit von der Energie berechnet (ausgezogene Linie in Figur 3). Die geringe Energieabhängigkeit beruht auf der Kompensation zweier Effekte, nämlich steigender Ansprechwahrscheinlichkeit des Kristalls [6] und fallender Reichweite im Wasser zu niederen Energien hin. Die Verschiedenheiten der einzelnen Zerfallsschemata verursachen jedoch eine beträchtliche Streuung der Nachweisempfindlichkeiten der verschiedenen Isotope (Kreise in Figur 3) um die «Idealkurve». Zusammenfassend läßt sich demnach sagen, daß heute kontinuierlich alle irgendwie wichtigen β - und γ -Strahler bis auf Tritium* und genau so alle α -Strahler bis auf Radium 226 noch unterhalb ihrer maximal zulässigen Konzentration überwacht werden können.

* Tritium als extrem energiearmer β -Strahler stellt einen Sonderfall dar. Es wird von keinem der üblichen Meßverfahren erfaßt. Wo daher mit dem Vorhandensein von Tritium gerechnet werden muß, sind zum Nachweis spezielle Geräte, wie Flüssigszintillatoren in Verbindung mit Energiediskriminierung, erforderlich.

Zusammenfassung

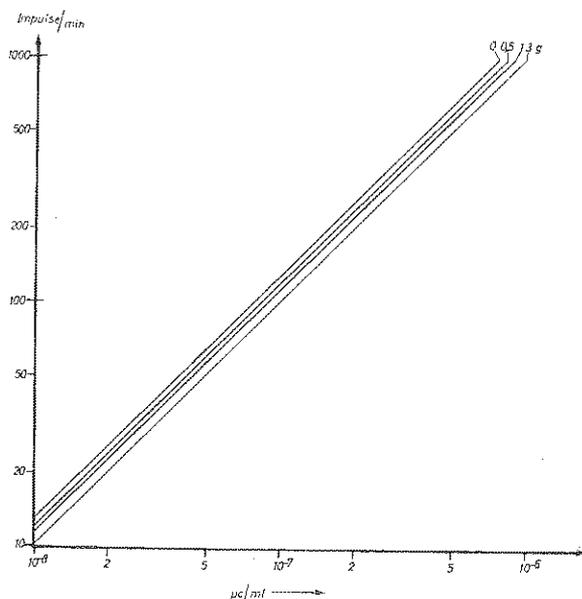
Im zweiten Teil ihrer Arbeit besprechen die Verfasser die Aktivitätsmessung im Wasser nach vorangehender Anreicherung. Es wird auf die verschiedenen Verfahren hingewiesen: Anreicherung durch Eindampfen, durch Mitfällen, durch Ionenaustausch und durch kontinuierliche Anreicherung. Hierauf wird auf das Problem der Identifizierung der einzelnen Radionuklide eingegangen.

Summary

The second part of this paper deals with methods of activity measurement in water after previous enrichment. Different methods are cited: Enrichment by vaporization, precipitation, ion exchange. Then a method of continuous enrichment is treated; finally, the problem of identification of radionuclides is discussed.

Résumé

La seconde partie de ce travail traite des méthodes de mesure de la radio-activité des eaux après enrichissement préalable. Différentes méthodes sont discutées: Enrichissement par vaporisation, par précipitation, échange d'ions ainsi qu'une méthode d'enrichissement continu. Finalement on discute le problème de l'identification des radionuclides.



Aufgearbeitete Menge: 1 l

Ausmessung in fensterlosem Methandurchflußzähler von 300 cm² Fläche

Nulleffekt hinter 3 cm Blei \approx 200 Imp./min

Parameter ist die Masse des Eindampfrückstandes in der Zählchale

Figur 1 β -Nettopulsrate bei der Anreicherung durch Eindampfen (Eichstrahler Kalium)

II. Teil

Im I. Teil dieser Arbeit (Neue Technik 2, Nr. 3 [1960]) wurde auf die Methoden der Direktüberwachung des Wassers eingegangen, während sich der vorliegende II. Teil mit den Meßmethoden nach erfolgter Anreicherung befaßt.

Messung nach Anreicherung

Eine Messung der Aktivität mit Hilfe von Anreicherungsverfahren muß dann vorgenommen werden, wenn entweder eine der oben beschriebenen kontinuierlichen Überwachungsanlagen das Überschreiten des festgelegten Grenzwerts anzeigt, wenn aus irgendwelchen Gründen der Nachweis der Aktivität wesentlich unterhalb der maximal zulässigen Konzentration geführt werden soll oder schließlich, wenn der Aufwand einer kontinuierlichen Anlage ungerechtfertigt erscheint und man sich mit mehr oder weniger häufigen Stichproben begnügen kann. Das ist beispielsweise der Fall, wenn kerntechnische Anlagen ihr Abwasser in Endbecken sammeln, so daß die Abgabe nicht kontinuierlich erfolgt.

Zur Anreicherung stehen im wesentlichen Eindampfverfahren, Mitfällungs- und Adsorptionsverfahren und Ionenaustauscher zur Verfügung. Ein Anreicherungsverfahren, das zur Messung der Gesamtaktivität Verwendung findet, sollte nach drei Gesichtspunkten beurteilt werden. Es muß erstens so wenig selektiv wie möglich arbeiten, das heißt, da wir es immer mit unbekanntem Isotopen zu tun haben, das Verfahren muß alle Isotope gleichmäßig anreichern. Das Verfahren soll zweitens die Aktivität so stark wie möglich konzentrieren, das heißt in wenig Feststoff anreichern, damit die Messung weitgehend selbstabsorptionsfrei und damit energieunabhängig erfolgen kann. Drittens ist es für die Praxis ein nicht zu unterschätzender Vorteil, wenn das Verfahren sich in kurzer Zeit durchführen läßt. Kein bekanntes Verfahren vermag gleichzeitig alle diese Bedingungen optimal zu erfüllen, so daß man sich in der Praxis immer mit einem mehr oder minder günstigen Kompromiß begnügen muß. Es ist dabei von Wichtigkeit, daß man sich stets darüber im klaren ist, welche Isotope von den jeweils benutzten Anreicherungsverfahren tatsächlich noch erfaßt werden und welche nicht.

Auf die Anwendungsmöglichkeiten und Grenzen der verschiedenen Anreicherungsverfahren soll im folgenden eingegangen werden.

Anreicherung durch Eindampfen: Das Eindampfverfahren arbeitet von allen Anreicherungsverfahren am wenigsten selektiv. Bei sachgemäßer Durchführung verliert man lediglich im Wasser gasförmig gelöste und leicht flüchtige Isotope. Die Hauptschwierigkeit beim Eindampfen besteht in der verlustfreien Überführung des Eindampfrückstandes aus dem Eindampfgefäß in die Zählchale. An den Wandungen des Ein-

dampfgefäße werden unter Umständen erhebliche Mengen Radioaktivität fast masselos adsorbiert [7]. Man kann die Wandadsorptionsverluste verringern, indem man dem Wasser Trägersubstanzen für die jeweils interessierenden Isotope zufügt. Das hat aber den Nachteil, daß die Aktivität «verdünnt», das heißt mit einer größeren inaktiven Restsubstanz belastet wird. Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Eindampfgefäße vor dem Eindampfen mit einem hitzebeständigen Stripping-Lack zu überziehen, der später von der Wand abgezogen und verascht wird [8]. Abgesehen davon, daß diese Technik einiger Erfahrung bedarf, muß man dabei auch die Aktivitätsverluste in Kauf nehmen, die infolge Verflüchtigung von Isotopen bei der Veraschungstemperatur von mehreren 100° entstehen. Wandadsorptionsverluste vermeidet man völlig dadurch, daß man das Wasser direkt in der Zählchale eindampft [7]. Dieses Verfahren wird wesentlich erleichtert durch die Zählchalen großflächiger Methandurchflußzähler, die bis zu ½ l Flüssigkeit ohne Nachfüllen aufnehmen können.

Der Nachteil des Eindampfens besteht in dem hohen Zeitaufwand zur Aufarbeitung der Proben, der in der Praxis die Anreicherung aus mehr als einigen Litern Wasser verbietet. Für einen Liter muß man im allgemeinen mit einer Zeit von rund drei Stunden rechnen. Wenn in den oben erwähnten großflächigen Meßschalen eingedampft wird, läßt sich diese Zeitdauer auf etwa 1 Stunde reduzieren [9]. Da das Eindampfverfahren von der Qualität des Wassers unabhängig ist, eignet es sich besonders zur Überwachung von Abwässern industrieller und chemischer Laboratorien.

Anreicherung durch Mitfällung: Die Aktivität in Oberflächen- und Trinkwässern sowie in Niederschlägen läßt sich rascher durch Adsorption und Mitfällung anreichern. Die Grundlagen solcher Verfahren sind aus der Radiochemie bekannt. So werden Mitfällungen auch zur Reinigung radioaktiv verschmutzter Abwässer verwendet. Dabei werden häufig besondere Adsorbentien, wie zum Beispiel Aktivkohle, zugesetzt, um die Selektivität zu vermindern. In letzter Zeit sind derartige Verfahren speziell zu Meßzwecken ausgearbeitet worden [9], deren Wirkungsgrad für Uranspaltprodukte über 95% und beispielsweise für Strontium 90 bei 99%, für Kobalt 60 bei 98% liegt. Auch beim Eindampfen normalerweise flüchtige Isotope, wie Jod 131 oder Quecksilber 203, werden zu 50% bzw. rund 100% erfaßt.

Den Rückstand sammelt man bei dieser Art der Anreicherung auf einem Filter, das nach Trocknung in einem entsprechend großflächigen Zähler unmittelbar ausgemessen werden kann. Fällung und Filtrierung bis zum Vorliegen des meßbereiten Filters lassen sich für 5 bis 10 Liter Wasser in einer halben Stunde durchführen. Der Nachteil des Verfahrens besteht darin, daß hier Adsorbentien zugegeben werden müssen, die den Rückstand erhöhen. Durch höhere Konzentrationen von Detergentien und Komplexbildnern im Wasser kann der Wirkungsgrad des Verfahrens beeinflußt werden, so daß man die Mitfällung und Adsorption zur Überwachung von chemischen und industriellen Abwässern nur unter Vorbehalt anwenden kann.

Anreicherung durch Ionenaustausch: Das Ionenaustauscherverfahren zur Anreicherung der Aktivität hat bisher nur für die Überwachung von Niederschlägen Bedeutung erlangt. Das hängt damit zusammen, daß Ionenaustauscher nur eine beschränkte Austauschkapazität haben. Die Aktivität kann deshalb nur aus solchen Wässern angereichert werden, die zusätzlich wenig inaktive Ionen enthalten. Ionenaustauscher sind sehr anfällig gegen Komplexbildner und Detergentien im Wasser. Auch macht sich unangenehm bemerkbar, daß das Ionenaustauscherverfahren einen relativ hohen Zeitaufwand erfordert (einige cm³ Durchfluß/Minute). Ionenaustauscherverfahren dienen dagegen infolge der Möglichkeit einer fraktionierten Eluierung häufig als Vorstufe der Identifizierung einzelner Radionuklide.

Um die im Ionenaustauscher angereicherte Aktivität zu bestimmen, kann der Ionenaustauscher direkt ausgemessen werden. Bei geringeren Aktivitäten wird man allerdings gezwungen sein, den Ionenaustauscher zunächst zu veraschen, oder man kann die Aktivität mit geringen Mengen Flüssigkeit wieder eluieren und diese Flüssigkeit dann eintrocknen oder eindampfen.

Kontinuierliche Anreicherung: Es sind heute auch Anlagen bekannt, welche die Anreicherung der Aktivität im Wasser kontinuierlich durchführen. Sie stellen einen Versuch dar, die Unmittelbarkeit der Direktüberwachung mit der niedrigen Nachweisgrenze der Anreicherungsverfahren zu kombinieren. Bei solchen, technisch allerdings recht aufwendigen Anlagen wird die Aktivität auf ein Band aufgebracht, das kontinuierlich an einem oder mehreren Detektoren vorbeiläuft. Die Anreicherung kann dadurch erfolgen, daß das Wasser zerstäubt und in einem gegenläufigen Heißluftstrom verdampft wird, so daß die im Wasser vorliegenden Feststoffe als Staub zurückbleiben, der anschließend auf dem Filterband aufgesaugt wird [10]. Bei einem anderen System läßt man das Wasser auf ein geheiztes Metallband auftropfen, auf dem das Wasser verdampft und den Feststoff zurückläßt [11]. Die Empfindlichkeit solcher Anlagen hängt davon ab, daß pro cm² Band der Rückstand einer möglichst großen Wassermenge aufgesammelt wird. Dafür ist eine geringe Bandvorschubgeschwindigkeit erforderlich, die aber wiederum eine große Zeitspanne zwischen Probenahme und Meßwert bedingt. Außerdem beginnt dann die Energieabhängigkeit durch Selbstabsorption in der Probe bereits eine erhebliche Rolle zu spielen. In der Praxis lassen sich zurzeit bei einem Wasser, dessen Feststoffgehalt nicht höher als einige 100 mg/l liegt, bei Verzögerungszeiten von rund 30 min noch Strontium-90-Aktivitäten von etwa 10⁻⁷ µc/cm³ nachweisen. Bei größeren Verzögerungszeiten lassen sich höhere Empfindlichkeiten erzielen, vorausgesetzt, daß der Einfluß der Selbstabsorption durch den wachsenden Feststoffgehalt/cm² Bandfläche nicht zu sehr stört. Praktische Erfahrungen über einen Dauerbetrieb solcher Anlagen über größere Zeiträume liegen heute noch nicht vor. Inwieweit derartige Empfindlichkeiten in der Praxis ausgenutzt werden können, hängt von der Höhe der natürlichen Radioaktivität in den zu untersuchenden Wässern ab, die zum Beispiel bei Grundwasser mehrere 10⁻⁷ µc/cm³ beträgt und daher eine Strontium-90-Aktivität von 1 × 10⁻⁷ µc/cm³ verdecken würde.

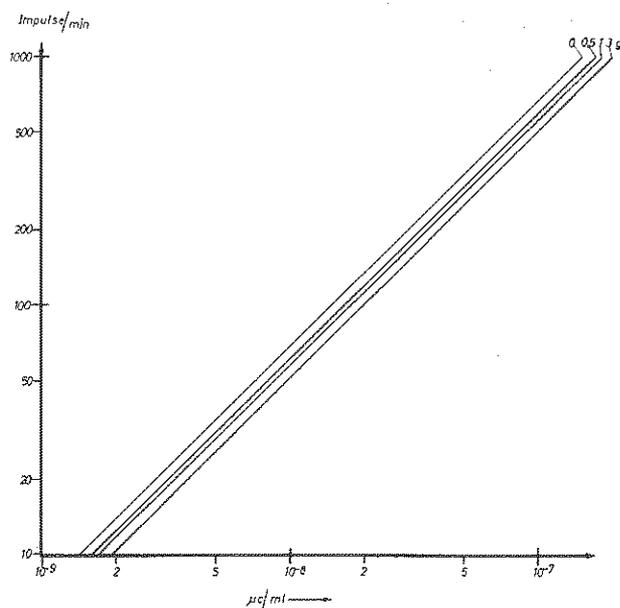
Man kann gegebenenfalls eine zusätzliche Verzögerung einbauen, so daß die Messung erst nach Abklingen der Radonfolgeprodukte erfolgt.

In manchen Fällen kann es angebracht sein, zwar diskontinuierlich anzureichern und zu messen, aber doch die Probenahme kontinuierlich durchzuführen. So kann beispielsweise der Ausstoß eines Verbrauchers an Radioaktivität überwacht werden, der so gering ist, daß keine unmittelbaren Gegenmaßnahmen erforderlich sind. Kontinuierliche Probenahme ist auch dort angebracht, wo eine bestimmte maximale Durchschnittsabgabemenge pro Tag zur Auflage gemacht wurde. Auch die sichere Überwachung von Wässern auf Radium 226 wird sich vorteilhaft dieser Art von Probenahme bedienen.

Zur Erzielung einer kontinuierlichen Probenahme sind viele Möglichkeiten denkbar und vorgeschlagen worden, zum Beispiel Beipässe in Leitungen, Dosierpumpen, kleine Schöpfwerke und ähnliches. Zur Probenahme in Flüssen und größeren Becken ist heute ein Schwimmer erhältlich, der durch Verdrängung der Luft in einem Gefäß über eine Kapillare erlaubt, innerhalb von 24 Stunden einen oder mehrere Liter Wasser kontinuierlich zu sammeln [12].

Messung des Anreicherungsrückstandes: Die beschriebenen Anreicherungsverfahren liefern ein Aktivitätskonzentrat von meist fester Form und einer Masse von einigen Milligramm bis einigen Gramm. Um eine verlässliche Angabe über die Aktivität gewinnen zu können, muß die Ausmessung des Rückstandes so energieunabhängig wie möglich erfolgen. Dazu ist es nötig, einerseits das Meßpräparat in dünner Schicht aufzubringen, damit der Fehler durch die unterschiedliche Selbstabsorption bei verschiedener Energie der Strahler klein wird, andererseits einen Detektor von geringer Energieabhängigkeit zu verwenden.

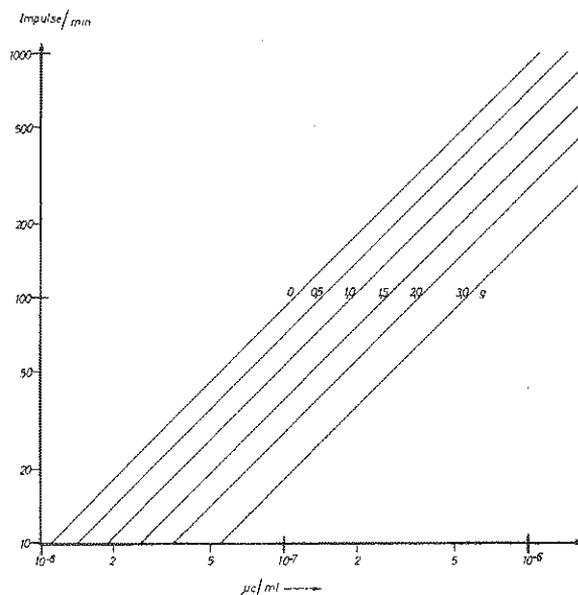
Für α - und β -Strahlung lassen sich beide Forderungen am einfachsten mit großflächigen und fensterlosen Methandurchflußzählern erfüllen [9]. Sie arbeiten im Proportionalbereich und geben so die Möglichkeit, nach einfacher Spannungsänderung die α -Strahlung allein zu messen. Als Beispiel für die mit solchen Zählern in Verbindung mit verschiedenen Anreicherungsverfahren erreichbaren Nachweisgrenzen ist in den Figuren 1, 2 und 3 der Zusammenhang zwischen Impulsrate, spezifischer Aktivität im Wasser und Masse des Anreicherungsrückstandes dargestellt. Um allgemein vergleichbare Werte zu erhalten, wurden die Kurven mit den international üblichen Eichsubstanzen Kalium und gereinigtem Natururan aufgenommen. Für die ebenfalls häufig zu Eichzwecken verwendeten Isotope Strontium 90–Yttrium 90 sowie Thallium 204 vermindern sich die in den Figuren 2 und 3 angeführten Impulsraten für 1 g Anreicherungsrückstand um 5% bzw. 15%, für 3 g um 16% bzw. 29%. Eine Ausmessung des Rückstandes mit großflächigen α - und β -Szintillationszählern liegt zwar nahe, erfordert aber einen erheblichen technischen Aufwand zur Temperatur- und Spannungsstabilisation. Auch wird es bei größeren Abmessungen schwieriger als beim Durchflußzähler, eine gleichmäßige Ansprechwahrscheinlichkeit über die ganze Fläche zu erzielen, die zur fehlerfreien Ausmessung von Rückständen mit ungleichmäßig verteilter Aktivität (heiße Teilchen!) verlangt werden muß.



Aufgearbeitete Menge: 5 l
Ausmessung in fensterlosem Methandurchflußzähler von 300 cm² Fläche
Nulleffekt hinter 3 cm Blei \approx 200 Imp./min

Parameter ist die Masse des Fällungsrückstandes in der Zählchale

Figur 2 β -Nettopulsrate bei der Anreicherung durch Mitfällung (Eichstrahler Kalium)



Aufgearbeitete Menge: 1 l
Ausmessung in fensterlosem Methandurchflußzähler von 300 cm² Fläche
Nulleffekt \approx 3 Imp./min

Parameter ist die Masse des Eindampfrückstandes in der Zählchale

Figur 3 α -Nettopulsrate bei der Anreicherung durch Eindampfen (Eichstrahler Uran)

In den wenigen Fällen, in denen man sich darauf beschränken kann, die γ -Strahlung auszumessen, geschieht dies am einfachsten durch Einbringen des Anreicherungsrückstandes in das Bohrloch eines Szintillationskristalls. Infolge der günstigen Geometrie der Anordnung ist diese Methode zwar relativ empfindlich; sie unterliegt aber zur Gesamtaktivitätsbestimmung noch unbekannter Isotope allen bereits oben genannten Vorbehalten, der – mit der Kristallgröße etwas abnehmenden – Energieabhängigkeit [6] und der Abhängigkeit vom Zerfallsschema.

Identifizierung

Wenn man in einer Wasserprobe das Vorhandensein möglicherweise gefährlicher Radioaktivität festgestellt hat, steht man vor dem Problem der Identifizierung der einzelnen Radionuklide. Dazu könnte man sich einen genauen und ausführlichen Analysengang ausarbeiten, der mit Sicherheit die Bestimmung von Art und Anteil der im Wasser vorhandenen Nuklide durchzuführen gestattet. Dafür wäre aber auf der einen Seite ein solcher Aufwand an Zeit, Apparaten und Personal notwendig, wie er nur wissenschaftlichen Spezialinstituten, etwa an Kernforschungszentren, möglich ist. Auf der anderen Seite ist man gezwungen, das Ergebnis schnell vorliegen zu haben, so daß gerade der Zeitfaktor bei der Identifizierung eine ganz wesentliche Rolle spielt, während derartige Analysen unter Umständen Wochen beanspruchen würden. Zur Bestimmung der Gefährlichkeit ist eine solche «Vollanalyse» auch nur in den seltensten Fällen notwendig. In der Praxis wird man so vorgehen, daß man «gezielt» analysiert. Fast immer wird man schon bestimmte Radionuklide vermuten, sei es, daß man die im Einzugsbereich des zu untersuchenden Wassers liegenden Isotopenbenutzer kennt, sei es, daß durch vorbereitende Grobanalysen bereits ein Verdacht auf ein bestimmtes Isotop besteht. Ist das nicht der Fall, wird man zunächst zu beweisen versuchen, daß alle jene Isotope nicht in der Probe vorhanden sind, deren maximal zulässige Konzentrationen unterhalb der bereits gemessenen Gesamtaktivität liegen.

Da sich die verschiedenen radioaktiven Isotope untereinander durch Art und Energie ihrer Strahlung sowie durch ihre Halbwertszeit unterscheiden, stehen uns als primäre Mittel der Identifizierung radioaktiver Isotope die Bestimmung der Art der Strahlung, die Bestimmung der Halbwertszeit und die Bestimmung der Energie zur Verfügung. Dazu kommt als sekundäres Mittel zur Identifizierung die Radiochemie, die in Kombination mit den physikalischen Bestimmungsmethoden dazu dient, entweder störende Isotope abzutrennen oder bestimmte Isotope zur Messung aus der Wasserprobe bevorzugt anzureichern.

Bestimmung der Strahlungsart: Die erste Grobanalyse der Strahlung wird in den meisten Fällen bei der Bestimmung der Gesamtaktivität vorgenommen worden sein, wo man bereits gezwungen war, nach α - und β -Aktivität aufzutrennen. Eine zusätzliche Bestimmung des γ -Anteils der Aktivität bietet oft wertvolle Hinweise über die Art der Strahler und ermöglicht manchmal eine Entscheidung über die Gefährlichkeit des Wassers. Das ist zum Beispiel dann der Fall, wenn ein Wasser eine β -Aktivität zeigt, die nur wenig über

der für Strontium 90 maximal zulässigen Konzentration liegt. Wenn dann ein wesentlicher Anteil an γ -Strahlung nachweisbar ist, so läßt das den Schluß zu, daß das gefährliche Isotop Strontium 90 nicht Ursache der gemessenen Aktivität war.

Bestimmung der Halbwertszeit: Die Bestimmung der Halbwertszeit wird man zweckmäßig dann anwenden, wenn bereits der Verdacht auf relativ kurzlebige Isotope gegeben ist, wie sie zum Beispiel an vielen Krankenhäusern Verwendung finden. Es handelt sich um eine einfache Identifizierungsmethode, die lediglich einige Sorgfalt in der Behandlung der Proben und einen gewissen Mindestaufwand an Zeit erfordert, der von der Halbwertszeit selbst und von der Menge der vorhandenen Aktivität abhängt. Je mehr Aktivität vorliegt, um so kürzer kann bei gleichem Fehler gemessen werden. Wertvolle Aufschlüsse kann man daraus erhalten, daß man die Messungen für die verschiedenen Strahlenarten getrennt durchführt und die Ergebnisse miteinander vergleicht.

Bestimmung der Energie: Eine Energieanalyse ist für alle drei Strahlenarten möglich, doch kommt in der Praxis der γ -Analyse die größte Bedeutung zu.

Die γ -Spektroskopie geschieht mit Hilfe von geeigneten Szintillationskristallen, wobei wegen seines hohen Wirkungsquerschnitts für den Photoeffekt fast ausschließlich Thallium-aktiviertes Natriumjodid als Kristall in Frage kommt. Zur Analyse des Energiespektrums können Ein- oder Mehrkanal-Spektrometer Verwendung finden. Die recht aufwendigen Vielkanal-Spektrometer ermöglichen eine Messung gleicher Genauigkeit in wesentlich kürzerer Zeit, was bei der Wasserüberwachung von Bedeutung sein kann. Ebenso schnell läßt sich mit Graukeilspektrometern arbeiten, die nur den Aufwand eines Einzelkanal-Spektrometers erfordern, dafür nicht ganz deren Auflösungsvermögen erreichen [13].

Bei so kleinen Aktivitäten, wie sie bei der Wasserüberwachung vorkommen, ist die Zuverlässigkeit einer spektroskopischen γ -Messung wesentlich von der Höhe der Aktivität abhängig. Daher wird es oft notwendig sein, größere Wassermengen als zur Bestimmung der Gesamtaktivität aufzuarbeiten. Die Anwesenheit mehrerer Strahler, vor allem wenn sie komplizierte Zerfallsschemen haben, setzt die Zuverlässigkeit unter Umständen stark herab. Um bei der Auswertung des Spektrums die Linien schwachenergetischer γ -Strahler vom Untergrund gleichzeitig vorhandener höherenergetischer Strahler zu trennen, bedarf es ziemlicher Erfahrung. In solchen Fällen hilft die Abtrennung störender Strahler durch radiochemische Methoden, die dabei durchaus nicht quantitativ zu arbeiten brauchen. Sofern die chemische Zusammensetzung des Wassers dies erlaubt, lassen sich zur Erleichterung der Messung mit Ionenaustauschern Fraktionierungen der einzelnen Isotope durchführen. Empfehlenswert ist es, für jede genaue Messung Vergleichsspektren bekannter Strahler oder Strahlergemische etwa gleicher Aktivität wie die des Meßpräparats aufzunehmen, da sich die Energieeichung durch Temperatureffekte, Höhe der Impulsrate usw. ändern kann.

Die α -Spektroskopie gleicht der γ -Spektroskopie insofern, als auch α -Strahler genau wie γ -Strahler einzelne scharf definierte Energien besitzen. Ihre Anwendung wird in der Praxis der Wasserüberwachung

dadurch eingeschränkt, daß infolge der hohen Selbstabsorption für α -Strahler ein ausreichendes Auflösungsvermögen nur bei Präparaten mit sehr dünnen Schichten zu erreichen ist.

Die α -Energieanalyse erfolgt meist mit einem speziellen Typ von Ionisationskammer, der sogenannten *Frisch-Kammer* [14]. Da die Anzahl der in einem Gas gebildeten Ionenpaare direkt proportional der Energie des α -Teilchens ist, muß zur Bestimmung seiner Energie dafür gesorgt werden, daß alle im Gas gebildeten Ionenpaare von den Elektroden gesammelt werden und so zur Messung gelangen. Solche Kammern müssen daher mit sauerstofffreien Gasen betrieben werden, da Sauerstoff die Eigenschaft hat, freie Elektronen anzulagern und so die Ausgangsimpulse herabzusetzen. Weiterhin muß ein spezielles Schutzgitter vorgesehen sein, das die Kollektorelektrode der Ionisationskammer von dem Bereich abschirmt, in dem die Ionisation stattfindet, damit die langsame Bewegung der positiven Ionen keine Spannungsänderung in der Kollektorelektrode induzieren kann. Mit sorgfältig ausgebildeten Kammern dieser Art lassen sich Auflösungen von besser als 2% erreichen.

α -Spektrometer werden für die Wasserüberwachung nur in Frage kommen, wenn ein Institut überwacht werden soll, das ausschließlich oder weitgehend mit α -Strahlern arbeitet, wie dies etwa bei Transuran-Instituten der Fall ist.

Die β -Energieanalyse unterscheidet sich von der α - und γ -Spektroskopie dadurch, daß wir es hier nicht mit diskreten Energien, sondern mit einem kontinuierlichen Energiespektrum zu tun haben. Bei der Überwachung versucht man deshalb, einzelne β -Strahler durch eine Bestimmung ihrer Maximalenergie zu identifizieren. Das läßt sich sowohl mit Szintillationskristallen und Ein- bzw. Mehrkanalanalysatoren durchführen, wobei als Kristall meist Anthrazen Verwendung findet, als auch durch die Bestimmung der Maximalreichweite der Strahlung in Absorbieren wie zum Beispiel Aluminium. Solche Absorptionsmessungen setzen einige praktische Erfahrung voraus und können nur dann befriedigend durchgeführt werden, wenn man die gemessenen Werte unmittelbar mit bekannten Eichstrahlern vergleicht. Diese müssen in gleicher Schichtdicke und aus dem gleichen Absorptionsmaterial wie die auszumessende Probe hergestellt sein. Da eine Absorption immer mit einer beträchtlichen Herabsetzung der gemessenen Impulsrate verbunden ist, wird die Genauigkeit der Methode wesentlich durch die Höhe der zur Verfügung stehenden Aktivität begrenzt.

Radiochemische Analysen: Wenn die physikalischen Methoden nicht mehr ausreichen, um ein Strahlergemisch in seine Bestandteile aufzulösen, muß man eine Zerlegung mit radiochemischen Verfahren versuchen. Man findet in der Literatur radiochemische Trennungsgänge für alle praktisch vorkommenden Isotope [16, 18], die zu beschreiben den Rahmen dieser Arbeit weit überschreiten würde. Allgemein ist zu sagen, daß derartige Verfahren ein voll ausgerüstetes radiochemisches Laboratorium mit erfahrenem Personal sowie meist hohem Zeitaufwand erfordern. Für den Routinebetrieb wird häufig versucht, mit vereinfachten «Schnellmethoden» zu arbeiten,

die aber oft wesentliche Fehlerquellen enthalten können, über deren Tragweite man sich bei der Anwendung im klaren sein muß. Für einige häufig vorkommende Fälle, wie etwa die Abtrennung von Cäsium 137 aus einem Spaltproduktgemisch, sind in der letzten Zeit zuverlässige Schnellmethoden entwickelt worden [17], die auch von ungeübten Kräften im Routinebetrieb angewendet werden können.

Spezialfälle: Identifizierungsmethoden lassen sich natürlich auch mit kontinuierlichen Meßmethoden für die Aktivität kombinieren. So werden zum Beispiel Reaktorkühlwässer auf Undichtheit von Brennelementen dadurch kontrolliert, daß man Jod 131 als Leitisotop für austretende Spaltprodukte benutzt. Zu diesem Zweck wird ein im Kühlkreislauf befindlicher Anionenaustauscher von einem Szintillationszähler mit anschließendem Einkanal-Spektrometer überwacht, dessen Kanal auf die höchste γ -Energie des Jods 131 eingestellt ist.

Schlußbemerkung

Die hier gegebene Übersicht über die heute zur Verfügung stehenden Wasserüberwachungsverfahren zeigt, daß von der technischen Seite – wenn auch mit einem nicht zu unterschätzenden Aufwand – alle Anforderungen des Strahlenschutzes an die Wasserüberwachung erfüllt werden können. Genau so wichtig wie die Technik ist aber auch eine sinnvolle Organisation der Wasserkontrolle. In den Ländern, die bereits seit vielen Jahren Erfahrungen im Umgang mit Isotopen sammeln konnten, zeichnet sich eine Entwicklung nach wenigen, gut ausgerüsteten Zentralinstituten ab, die auch schwierige Radioaktivitätsanalysen durchführen können. Örtliche Stellen beschränken sich dort auf die Probenahme und in Einzelfällen auf Gesamtaktivitätsbestimmung. Im übrigen hat man gelernt, weitgehend der Selbstüberwachung von kerntechnischen Anlagen und Isotopenbenutzern zu vertrauen, denen bei Übertretung der Vorschriften Entzug der Lizenz droht. Man glaubt heute, daß so die zur Verfügung stehenden Geldmittel am wirksamsten eingesetzt sind.

Schrifttum

1. Entwicklungs-Labor Prof. *Berthold*, Wildbad (mündliche Mitteilung).
2. *Jordan, K.*: Atompraxis 3, 398 (1957).
3. *Kiefer, H.*, und *Mausbart, R.*: Atompraxis 5, 431 (1959).
4. Vergleiche zum Beispiel die Trinkwasser-Überwachungsanlage der Landis & Gyr AG, Zug (Schweiz).
5. *Pfau, A.*, und *Heinrich, H. C.*: Atompraxis 5, Nr. 1 und 3 (1959).
6. Siehe etwa: *Borkowski, C. J.*: ORNL Report 1160.
7. *Kiefer, H.*, und *Mausbart, R.*: Nukleonik 1, 103 (1958).
8. *Roth, G. E.*: Division of Isotopes, IAEA, Wien (mündliche Mitteilung).
9. *Damecker, A.*, *Kiefer, H.*, und *Mausbart, R.*: Nukleonik 1, 319 (1959).
10. *Müller, S.*: Dechema-Monographien 30, 205 (1958).
11. *Landis & Gyr AG*, Zug (Schweiz) (mündliche Mitteilung).
12. *Aurand, K.*: Institut für Wasser-Boden-Luft-Hygiene, Berlin (mündliche Mitteilung).
13. *Fränz, K.*: Atompraxis 5, 381 (1959).
14. *Frisch, O. R.*: B.R. 49/1942.
15. NBS-Handbook 69.
16. Siehe z. B.: *Herrmann, G.*: Angewandte Chemie 71, 561 (1959).
17. *Damecker, A.*, *Kiefer, H.*, und *Mausbart, R.*: Kerntechnik 1 (1959).
18. *Osmond, R. G.*, und *Pratchett, A. G.*: AERE-AM 51 (1959).