

KFK-154

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

März 1963

KFK 154

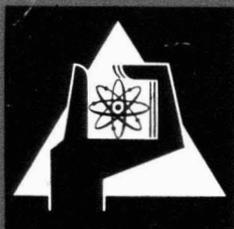
Strahlenmeßabteilung

Zum Problem der unverzögerten Laborluftüberwachung
bei schwankendem Radon- und Thorongehalt

R. Ehret, H. Kiefer und R. Maushart

KERNREAKTOR
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. B. H.
Verwaltung- und Betriebsbüros

25. Juli 1963



KERNREAKTOR

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

KARLSRUHE

HERAUSGEBER: Baudirektor Dr. H. Adam, Direktor der Staatl. Ingenieurschule Kiel · Prof. Dr. H.-J. Born, Direktor des Inst. für Radiochemie der Techn. Hochschule München · Baurat Dr. K. Diebner, Dozent an der Staatl. Schiffingenieurschule Flensburg · Prof. Dr. W. Hanle, Direktor des Physikal. Inst. der Universität Gießen · Prof. Dr.-Ing. K. Illies, Direktor des Inst. für Schiffmaschinen und Dampfkessel der Techn. Hochschule Hannover · Prof. Dr.-Ing. W. Miarki, Direktor des Inst. für Allg. und Kern-Verfahrenstechnik der Techn. Universität Berlin · Prof. Dr. M. Pollermann, Kernforschungsanl. Jülich, Zentralinst. für Reaktorexperimente · G. Thiemig, München

VERLAG KARL THIEMIG KG · MÜNCHEN 9 · PILGERSHEIMER STRASSE 38

Gleichzeitig Publikationsorgan

der Studiengesellschaft zur Förderung der Kernenergieverwertung in Schiffbau und Schifffahrt e. V., Hamburg 36, Neuer Wall 34,

der Isotopen-Studiengesellschaft e. V., Frankfurt/Main, Karlstraße 21

Zum Problem der unverzögerten Laborluftüberwachung bei schwankendem Radon- und Thorongehalt

Von R. Ehret, H. Kiefer und R. Maushart Aus der Strahlenmeßabteilung des Kernforschungszentrums Karlsruhe

Einführung

In Laboratorien und Arbeitsräumen, in denen offene radioaktive Stoffe vorhanden sind, stellt in die Luft gelangter radioaktiver Staub eine sofortige und unmittelbare Gefahr dar. Deshalb wird immer wieder eine unverzögerte Anzeige bei der Luftüberwachung gefordert. Eine »unverzögerte Anzeige« kann aber nur genutzt werden, wenn sie mit einem Alarmsignal gekoppelt ist, das bei einer wählbaren Radioaktivitätskonzentration in der Luft anspricht. Wählbar muß die Aktivitätskonzentration deshalb sein, damit die Alarmschwelle den maximal zulässigen Konzentrationen verschiedener Radioisotope angepaßt werden kann.

Das Problem einer ausreichenden Luftüberwachung liegt nicht so sehr darin, daß die nachzuweisenden Aktivitätskonzentrationen meistens klein sind, sondern in dem störenden Einfluß der natürlichen Aktivität in der Luft. Dabei macht wiederum besondere Schwierigkeiten, daß die natürliche Aktivität in der Luft nicht (wie z. B. die kosmische Strahlung) einen örtlich konstanten Untergrund liefert, sondern daß sie während der Meßzeit stark schwanken kann. Erschwerend wirkt auch ihre Zusammensetzung aus zwei Komponenten (Radon mit Folgeprodukten, Thoron mit Folgeprodukten), die ein verschiedenes Verhalten zeigen. Häufig sucht man den Einfluß dieser natürlichen Aktivität durch Verfahren zu umgehen, die zwischen der Sammlung des Luftstaubs und der Messung eine bestimmte Verzögerungszeit einschalten, in der die natürliche Aktivität zerfällt. Solche Methoden werden z. B. bei der Umgebungsüberwachung eingesetzt. Für die unverzögerte Anzeige bei der Laborüberwachung geht man jedoch andere Wege, um den Einfluß der natürlichen Aktivität bzw. den Einfluß ihrer Schwankungen auf die Messung der Luftkontamination zu verringern. In der vorliegenden Arbeit sollen solche Mög-

lichkeiten diskutiert werden. Ausgegangen wird dabei von der unmittelbaren Messung eines Faserfilters während der Bestäubung.

Anreicherung der Aktivität auf dem Filter

Die auf dem Filter jeweils vorhandene natürliche Radioaktivität errechnet sich durch Summierung der Lösungen des Differentialgleichungssystems für die Einzelprodukte der Zerfallsreihen (Abb. 1). Die ausgezogenen Kurven geben den Verlauf der α - und β -Aktivität auf dem Filter für ein Gemisch von $1 \cdot 10^{-10}$ c/m³ Radon und $5 \cdot 10^{-12}$ c/m³ Thoron in der Luft wieder. Dabei ist innerhalb der Zerfallsreihe in der Luft Gleichgewicht vorausgesetzt. Während am Anfang für die Form der Kurve im wesentlichen der Radon-Gehalt der Luft maßgebend ist, wird der schließlich erreichte Gleichgewichtswert in gleicher Weise von der Thoron-Konzentration mitbestimmt. Um den Einfluß einer schwankenden Thoron-Konzentration auf diesen Wert zu zeigen, sind in Abb. 1 noch Gleichgewichtswerte für verschiedene Thoron-Prozentsätze im Verhältnis zur Radon-Konzentration eingetragen.

Falls bereits zu Beginn der Saugzeit in der Luft auch eine zusätzliche künstliche langlebige Aktivitätskomponente vorhanden ist, addiert sich deren linearer Anstieg auf dem Filter zu der Kurve der natürlichen Aktivität. In Abb. 1 sind für drei verschiedene Konzentrationen langlebiger künstlicher Aktivität die resultierenden Gesamtkurven gestrichelt eingezeichnet.

Durch eine bestimmte, vorher eingestellte Impulsrate kann ein Alarm gegeben werden. Wenn man sicher sein will, daß der Alarm nicht durch natürliche Aktivität ausgelöst wird,

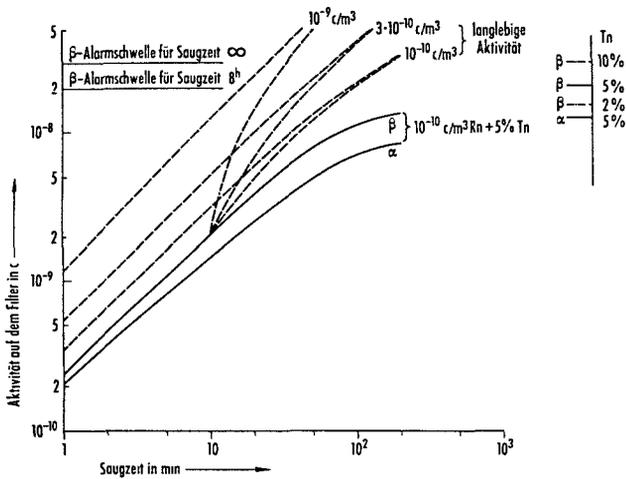


Abb. 1: Berechnete α - und β -Aktivität in Abhängigkeit von der Saugzeit auf einem festen Filter für einen Luftdurchsatz von $1 \text{ m}^3/\text{min}$, eine Konzentration von 10^{-10} c/m^3 Radon und $5 \cdot 10^{-12} \text{ c/m}^3$ (5%) Thoron und einen gleichbleibenden Filterwirkungsgrad von 100% (ausgezogene Kurven). Die Aktivität des i -ten Radon- bzw. Thoronfolgeproduktes auf dem Filter bei Aktivitätsgleichgewicht in der Luft ergibt sich zu

$$N_i \lambda_i = \eta_i DK \sum_{k=1}^i \frac{1}{\lambda_k} \left(1 - e^{-\lambda_k \vartheta} \prod_{l=1}^k \frac{\lambda_l}{\lambda_l - \lambda_k (1 - \delta_{kl})} \right)$$

Dabei ist

- N_i die Zahl der Atome des i -ten Folgeproduktes auf dem Filter,
- λ_i die Zerfallskonstante des i -ten Folgeproduktes,
- η_i der Filterwirkungsgrad für das i -te Folgeprodukt,
- D der Luftdurchsatz durch das Filter, z. B. in m^3/min ,
- K die Radon- bzw. Thoron-Aktivitäts-Konzentration in Luft, z. B. in c/m^3 ,
- ϑ die Saugzeit,

$$\delta_{kl} = \begin{cases} 0 & \text{für } k \neq l, \\ 1 & \text{für } k = l. \end{cases}$$

Für die dargestellten Kurven wurde über die i summiert.

Am rechten Bildrand sind die Gleichgewichtswerte nach unendlich langer Saugzeit angegeben.

Gestrichelte Kurven: Zusätze an langlebiger β -Aktivität zu Beginn der Saugzeit bzw. 10 min nach Beginn der Saugzeit.

muß diese Impulsrate höher gewählt werden, als der Gleichgewichtsaktivität für die maximal zu erwartende natürliche Konzentration des Radon und des Thoron entspricht [21].

In der Praxis wird man jedoch nicht so lange saugen, bis die Einstellung des Gleichgewichtswerts auf dem Filter erreicht ist. Man wird die Filter am Ende jedes Arbeitstages auswechseln. Das ergibt eine Saugzeit von 8 bis 10 Stunden. Dann kann man den Alarmwert entsprechend tiefer setzen, da sich nach 8 bis 10 Stunden auf dem Filter auch weniger natürliche Aktivität angereichert hat. Dadurch erhält man für gleiche Konzentrationen künstlicher Aktivität eine frühere Alarmgabe. Andererseits gibt es jetzt im Gegensatz zu einer unendlich langen Saugzeit, bei der theoretisch jede noch so kleine langlebige Aktivität erfaßt werden kann, eine Minimalaktivität, die innerhalb der Saugzeit nicht genügend Aktivität auf das Filter bringt, um zu einer Alarmgabe auszureichen. Dies ist vor allem dann der Fall, wenn die künstliche Aktivität erst während der Saugperiode in die Luft gelangte und nicht schon von Beginn an vorhanden war. Um diesen Fall anzudeuten, sind in Abb. 1 noch drei weitere gestrichelte Kurven eingezeichnet, die einem Beginn der künstlichen Aktivitätskonzentration in der Luft 10 Minuten nach Beginn der Saugzeit entsprechen.

Das gleiche gilt auch für kontinuierlich bewegte Filterbänder. Dort entspricht der Filterwechselzeit die Zeit, die ein Filter-

element in der Bestäubungskammer verbringt. Bei Überwachung mit kontinuierlichen Anlagen gibt es also eine Schwellwert-Konzentration in Luft, unterhalb welcher keine Anzeige erfolgt.

Wenn man vom Einfluß der Schwankungen der natürlichen Aktivität absieht, dann ließe sich eine Empfindlichkeitssteigerung auf einfache Weise noch dadurch erzielen, daß man die Alarmschwelle zeitlich kontinuierlich verändert, so daß sie sich immer im gleichen Abstand von der jeweils auf dem Filter vorhandenen natürlichen Aktivität bewegt. Das kann mit einer mechanischen Vorrichtung, z. B. einer Kurvenscheibe und einem Uhrwerk, ohne weiteres erreicht werden. Schwankungen der natürlichen Aktivität lassen sich aber auch hierdurch nicht ausgleichen.

Man kann bei der Wahl der Alarmschwellen auch statt der maximal zu erwartenden natürlichen Aktivitätskonzentration eine mittlere Aktivitätskonzentration zugrunde legen, wodurch man dann in Kauf nimmt, daß bei Schwankungen der natürlichen Aktivität ab und zu auch eine Alarmgabe erfolgt, ohne daß dies durch künstliche Aktivität bedingt wäre. Es bedarf dann jedesmal im Einzelfall einer Untersuchung, wodurch der Alarm zustande kam.

Durch eine höhere Saugleistung kann keine frühere Alarmgabe erreicht werden, da ein höherer Luftdurchsatz durch das Filter an jeder Stelle der hier betrachteten Kurven am Verhältnis zwischen natürlicher und künstlicher Aktivität nichts ändern würde, sondern lediglich für beide die Absolutaktivität auf dem Filter gleichmäßig heraufsetzt. Der einzige Vorteil bestünde in einer günstigeren Statistik, deren Einfluß aber gegenüber den zu erwartenden Schwankungen der natürlichen Aktivität nicht ins Gewicht fällt. Ein höherer Luftdurchsatz hat jedoch dann Vorteile, wenn man die auf dem Filter gesammelte künstliche Aktivität analysieren will, sei es bereits während der Messung selbst, sei es auch auf einem nach dem Besaugen abgeklungenen Filter. In diesem Fall ist es wichtig, eine hohe Absolutaktivität auf dem Filter zu haben.

Bevor nun zu den einzelnen Meßverfahren übergegangen wird, die den Einfluß der natürlichen Aktivität herabsetzen können, soll noch kurz diskutiert werden, wie weit sich in einem Labor die natürliche Aktivität durch Filterung der Zuluft verringern läßt, um so das Meßproblem von vornherein zu vereinfachen. Solche Methoden werden z. B. bei Ganzkörperzählern angewandt. Man saugt die Zuluft durch »Absolutfilter«, die die Folgeprodukte des Radon und Thoron weitgehend ausfiltern. Die beiden Gase selbst gehen jedoch durch die Filter hindurch und bilden im Laborraum wieder Folgeprodukte. Einen so hohen Luftwechsel vorausgesetzt, daß die gesamte Raumluft innerhalb 1 Minute erneuert wird, stellt sich eine RaA-Konzentration von etwa 20%, eine RaB-Konzentration von etwa 0,6% und eine RaC-Konzentration von 0,02% der Gleichgewichtsaktivität ein. Innerhalb der Thoronreihe ließe sich theoretisch eine Reduktion der ThB-Konzentration um mehrere Größenordnungen erzielen. In der Praxis dürfte dies aber daran scheitern, daß die zur Raumluftfilterung benutzten Filter nach unseren Messungen einen Abscheidegrad von nicht mehr als 90% für die natürliche Aktivität besitzen¹. Wichtig ist in diesem Zusammenhang auch die Höhe der Ansaugstelle für die Zuluft. Bei einer Luftentnahme über Dach (etwa 20 m hoch) ist erfahrungsgemäß die Konzentration der

¹ Z. B. wird in der Karlsruher Ganzkörper-Meßanlage bei 15-fachem Luftwechsel in der Stunde die (RaB + RaC)-Konzentration um den Faktor 13, die (ThB + ThC)-Konzentration um den Faktor 8 reduziert.

Rn- und Tn-Folgeprodukte um mindestens den Faktor 3 geringer als bei Luftentnahme unmittelbar über der Bodenoberfläche.

Überblick über die Meßverfahren

I. Trennung von natürlicher und künstlicher Aktivität bei der Staubsammlung

1. Verfahren, welche die Erfahrungstatsache ausnützen, daß künstliche Radioaktivität meist an gröbere Stäube gebunden ist als die Radon- und Thoron-Zerfallsprodukte.

a) Impaktorverfahren [1—3, 17]: Schwere Staubteilchen werden durch Trägheitskräfte aus dem Luftstrom ausgeschieden und auf eine geeignet präparierte Fläche niedergeschlagen. Hauptsächliche Anwendung: Plutonium-Messung.

b) Grobsieb-Verfahren [4]: Die Luft wird nacheinander durch ein grobes und ein feines Filter gesaugt. Das Grobfilter hält von der natürlichen Aktivität einen bestimmten, konstanten Bruchteil der Gesamtaktivität zurück, der Rest bleibt im Feinfilter. Künstliche Aktivität soll völlig im Grobfilter bleiben. Eine Störung des Verhältnisses der Meßwerte von Fein- und Grobfilter zeigt daher künstliche Aktivität an. Hauptsächliche Anwendung: Plutonium-Messung.

2. Verfahren, die zwei Zuluftwege benützen, wobei in beiden Fällen die natürliche Radioaktivität gleich sein soll, während die eine Zuluft zusätzlich künstliche Aktivität enthalten kann. (Zweifilter-Verfahren [5, 18]): Zwei Anlagen, jeweils für Außenluft und Laborluft, mit gleichem Filtermaterial und gleichem Luftdurchsatz werden in Differenz betrieben. Hauptsächliche Anwendung: Allgemeine Laborüberwachung.

II. Meßtechnische Trennung von natürlicher und künstlicher Aktivität durch Ausnützung von Strahlungseigenschaften

1. Verfahren, die davon ausgehen, daß das Verhältnis von α - zu β -Komponenten der natürlichen Zerfallsreihen bei Gleichgewicht der einzelnen Glieder konstant ist (Verhältnismessung).

a) Gleichzeitige Messung von α - und β -Strahlung mit einem Detektor [6] (Proportionalzähler), elektrische Diskriminierung der Impulshöhen und Verhältnisbildung mittels zweier logarithmischer Zählratenmesser.

b) Gleichzeitige Messung der α - und β -Strahlung mit zwei getrennten Detektoren [7, 8] (Proportionalzähler oder Geiger-Müller-Zähler oder Szintillations-Zähler), Verhältnisbildung wie bei a). Hauptsächliche Anwendung: allgemeine Laborüberwachung.

2. Verfahren, welche die natürliche Radioaktivität getrennt messen und von der Gesamtaktivität abziehen (Differenzverfahren).

a) Messung der natürlichen Aktivität über eine charakteristische γ -Linie (NaJ-Szintillationszähler). Die so erhaltene Impulsrate wird, mit einem entsprechenden Faktor versehen, entweder von der Gesamt- β - oder der Gesamt- α -Impulsrate abgezogen. Hauptsächliche Anwendung: Allgemeine Laborüberwachung.

b) Messung von α - β -Pseudokoinzidenzen als Maß für die natürliche Aktivität [9, 10] (Proportionalzähler, Szintillationszähler). Die Koinzidenzrate, mit einem bestimmten Faktor versehen, wird von der Gesamt- α -Impulsrate abgezogen. Hauptsächliche Anwendung: Plutonium-Messung.

c) Messung der natürlichen Aktivität durch α -Energie-Diskriminierung [2, 9, 11, 19] (CsJ-Szintillationszähler). Die von α -Teilchen mit Energien von mehr als 6 MeV herrührende

Impulsrate wird, mit einem entsprechenden Faktor versehen, von der Gesamt- α -Impulsrate abgezogen. Hauptsächliche Anwendung: Plutonium-Messung.

d) Messung der natürlichen Aktivität durch α -Energie-Diskriminierung (Absorberschicht) [12]. Die hinter der Absorberschicht registrierte α -Impulsrate wird, mit entsprechendem Faktor versehen, von der Gesamt- α -Impulsrate abgezogen. Hauptsächliche Anwendung: Uran-Messung.

3. Verfahren, die eine spezielle künstliche Radioaktivität getrennt messen.

a) Messung einzelner γ -Strahler durch γ -Energie-Analyse (NaJ-Szintillationszähler). Hauptsächliche Anwendung: Umgebungsüberwachung.

b) Messung von ^{239}Pu durch α -Röntgen-Koinzidenz (Proportionalzähler). Hauptsächliche Anwendung: Plutonium-Messung bei Anwesenheit von Störstrahlern (Plutonium-Identifizierung).

c) Messung von ^{239}Pu durch α -Spektroskopie (Halbleiter-Detektor [13], Ionisationskammer [20]).

III. Meßtechnische Trennung von natürlicher und künstlicher Aktivität durch Halbwertszeit-Analyse

Auf diese Möglichkeit soll nur der Vollständigkeit halber hingewiesen werden, sie fällt jedoch nicht mehr in den Rahmen der vorliegenden Arbeit.

Auf die rein mechanischen Verfahren (I) der Trennung bei der Staubsammlung, die sowohl für sich als auch in Kombination mit den meßtechnischen Trennverfahren Anwendung finden, kann hier nicht näher eingegangen werden. Dagegen sollen zu den verschiedenen meßtechnischen Verfahren (II) im folgenden noch einige Erläuterungen gegeben werden.

Verhältnismessung (II, 1a und 1b)

Aus dem in Abb. 1 dargestellten Verlauf der α - und β -Aktivität läßt sich das Verhältnis beider Aktivitäten auf dem Filter in Abhängigkeit von der Saugzeit berechnen. In Abb. 2 sind solche Verhältniskurven gezeigt. Man sieht, daß nach einer Einstellzeit von etwa 30 min das Verhältnis bis auf einige Prozent konstant bleibt. Es scheint zunächst so, als ob man mit Hilfe dieses Verhältnisses einen Alarm unabhängig von der Schwankung der natürlichen Aktivität und damit empfindlicher steuern könnte als durch einfache Messung der α - oder β -Rate allein. Als weiterer Vorteil käme hinzu, daß man sowohl für eine beliebige zusätzliche α - als auch für eine beliebige zusätzliche β -Aktivität zwei verschiedene Alarme je nach der Richtung des Ausschlags erhalten könnte. Bei genauer Überlegung zeigen sich jedoch Schwierigkeiten.

Wenn die natürliche Aktivität um beispielsweise den Faktor 10 zunimmt, so bleibt zwar das Verhältnis (abgesehen wiederum von der notwendigen Einstellzeit) konstant. Da aber auch die α - und β -Einzelimpulsraten jeweils für sich um den Faktor 10 zugenommen haben, so braucht man für eine gleiche Verhältnisänderung, die ja den Alarm steuern muß, auch die 10fache künstliche Aktivität wie vorher. Bei einer Zunahme der natürlichen Aktivität um einen bestimmten Faktor geht die Empfindlichkeit um den gleichen Faktor zurück. Ein auftretender Alarm sagt also nichts aus über die Höhe der künstlichen Aktivität, solange nicht auch die Höhe der natürlichen Aktivität ebenfalls bekannt ist. Man kann nicht vermeiden, daß bei hoher natürlicher Aktivität der Alarm genauso spät oder sogar später erfolgt als bei Benutzung der Einzelraten. Einen Zeitgewinn für die Auslösung des Alarms erreicht man nur bei niedriger Aktivität.

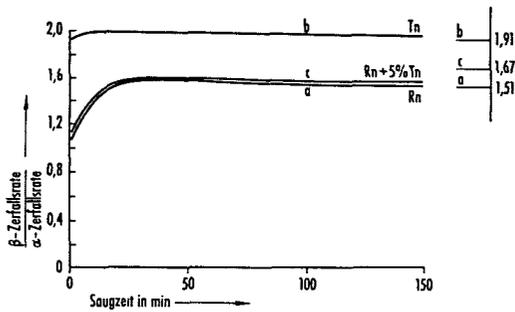


Abb. 2: Berechneter Verlauf des β/α -Verhältnisses verschiedener Rn-Tn-Gemische im Gleichgewicht mit ihren kurzlebigen Folgeprodukten. Rechts oben sind die Gleichgewichtswerte angegeben.

Dieses Empfindlichkeitsverhalten steht im Gegensatz zu der einfachen Messung der Einzelraten, bei der ein Alarm um so früher kommt, je höher die natürliche Aktivität ist, da hier nur noch die Differenz bis zu einem festen Wert aufgefüllt werden muß.

Eine weitere Schwierigkeit besteht darin, daß die theoretisch berechneten Kurven Gleichgewicht der ganzen Zerfallskette in der Luft voraussetzen, was in Wirklichkeit durchaus nicht immer gegeben ist. Ebenso bringen Änderungen im Radon-Thoron-Verhältnis Schwankungen des β/α -Verhältnisses, die in der Theorie nicht berücksichtigt wurden.

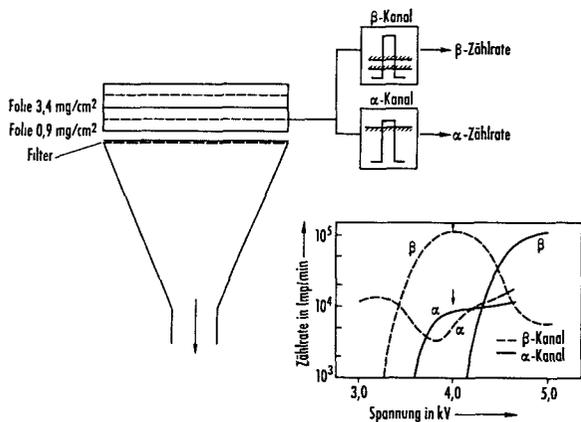
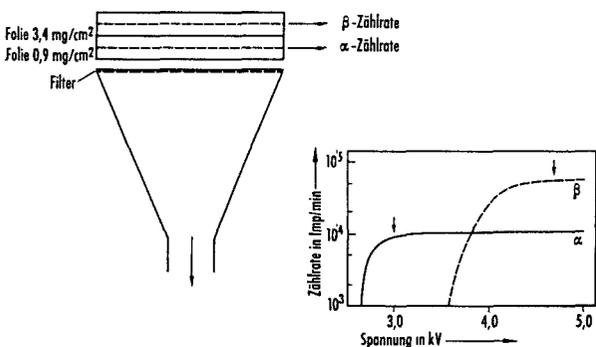


Abb. 3: Anordnungen zur gleichzeitigen getrennten Messung von α - und β -Aktivität.

a) Großflächen-Proportionalzähler mit anschließender elektronischer Impulshöhendiskriminierung. Plateaumessungen mit flächig verteilten α - und β -Strahlern zeigen, daß eine Einstreuung von α -Impulsen in den β -Kanal nicht vermieden werden kann. Wir erhielten einen α -Wirkungsgrad von 14%, einen β -Wirkungsgrad von 57% und eine α -Streurrate von 53%.



b) Zweistufen-Großflächen-Proportionalzähler, der α - und β -Strahlung in zwei getrennten Zählräumen mißt. Die Trennung von α - und β -Strahlung ist sauber durchführbar. α -Wirkungsgrad 17%, β -Wirkungsgrad 29%, Streurrate 0%.

Um die Anwendbarkeit der berechneten Kurven für die Praxis zu überprüfen und um gleichzeitig von seiten der Meßtechnik her festzustellen, ob die Verwendung von einem einzigen Proportionalzähler oder von getrennten α - und β -Zählern größere Vorteile bringt, wurde von uns mit kommerziell gefertigten Großflächenzählern² eine experimentelle Anordnung zur Messung des β/α -Verhältnisses auf einem Luftfilter von 20 cm Durchmesser aufgebaut. Die beiden Meßanordnungen sind schematisch in Abb. 3a und 3b dargestellt, in der auch die α - und β -Plateaus wiedergegeben wurden. Aufgrund dieser Messungen ist für die folgenden Versuche der Zähler mit getrenntem α - und β -Zählraum verwendet worden.

Es wurden im wesentlichen 2 Versuchsreihen durchgeführt:

1. Registrierung des β/α -Verhältnisses in belüfteten und unbelüfteten Laboratorien;
2. Untersuchung des Einflusses eines raschen Anstiegs der Radon-Konzentration in der Luft im Gleichgewicht mit den Radonfolgeprodukten und ohne Folgeproduktgleichgewicht.

Die Ergebnisse waren, kurz zusammengefaßt, folgende:

Versuchsreihe 1. Es ist bekannt [14, 15, 18], daß die natürliche Radioaktivität in Bodennähe in den frühen Morgenstunden ein ausgeprägtes Maximum aufweist. Bei Messungen in einem zwangsbelüfteten Labor, dessen Zuluft unmittelbar über Boden angesaugt und nur durch Grobfilter gereinigt wird, zeigte sich der Anstieg der natürlichen Aktivität während der Nacht sehr stark (Abb. 4, Kurve a). Ein ähnliches, wenn auch schwächer ausgeprägtes Erscheinungsbild ergab sich im gleichen Labor bei abgestellter Lüftung, aber geöffnetem Fenster (Abb. 4, Kurve b). Zum Vergleich wird schließlich noch der Verlauf der natürlichen Aktivität bei völlig abgeschlossenem Raum wiedergegeben (Abb. 4, Kurve c). Das langsame Ansteigen der Aktivität ist in diesem Falle auf Emanation aus den Wänden des Raumes zurückzuführen. Das β/α -Verhältnis schwankt, abgesehen von der Anlaufzeit, jedesmal nicht mehr als um den Faktor 2, zeigt jedoch im Falle c) einen etwas anderen Verlauf.

Versuchsreihe 2. In Abb. 5 sind die für eine kurzzeitige Radonkonzentrationserhöhung berechneten Verhältnisswerte mit den gemessenen verglichen. Es zeigt sich, daß bei raschen Änderungen des Radon-Gehalts die Abweichungen vom Gleichgewichtsverhältnis erhebliche Werte annehmen können. In solchen Fällen würde auch durch die natürliche Aktivität ein α -Alarm ausgelöst werden, wobei der Effekt um so stärker wird, je mehr sich das zusätzliche Radon vom Gleichgewicht mit seinen Folgeprodukten entfernt hat. Umgekehrt könnte durch die starke Verschiebung des Gleichgewichts nach der α -Seite ein β -Alarm verzögert oder ganz verhindert werden.

Eine Abweichung der gemessenen Kurven von den berechneten tritt weiterhin dadurch auf, daß der β -Zähler bereits durch die natürliche Umgebungsstrahlung einen Nulleffekt vorgegeben hat. Zu Beginn des Saugens ist das Verhältnis daher extrem nach der Seite der β -Impulse abgelenkt. Die Einstellzeit ist daher wesentlich länger bis zu einigermaßen konstanten Verhältnissen, als dies aus den theoretischen Kurven zu erwarten ist. Dies ließe sich dadurch vermeiden, daß man dem α -Zähler einen »künstlichen« Nulleffekt vorgibt, der zum β -Nulleffekt im gleichen Verhältnis steht, wie später die α -Impulsrate der natürlichen Aktivität zur β -Impulsrate. Eine zweite Möglichkeit ist die, den Luftdurch-

² Firma Münchener Apparatebau für elektronische Geräte, Dr.-Ing. H. Kimmel, München 23, Osterwaldstraße 69.

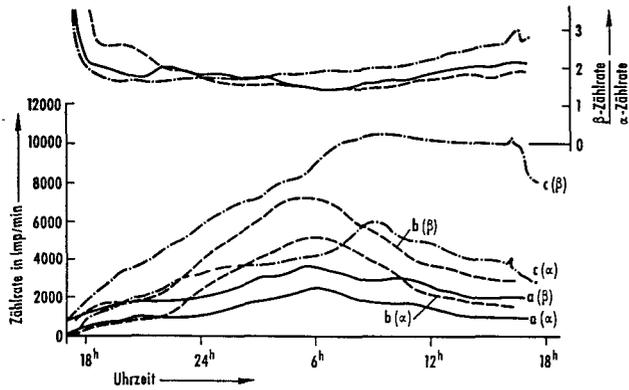


Abb. 4: Gemessene Zählraten und β/α -Verhältnisse in einem Labor unter verschiedenen Bedingungen.

Kurven a: Zwangsbelüftung, Zuluft grob gefiltert, Ansaugstelle über Boden, Luftwechsel 20 mal pro Stunde;

Kurven b: Ohne Lüftung, Fenster geöffnet;

Kurven c: Ohne Lüftung, Fenster und Türen verschlossen. Um 16.00 Uhr sind die Fenster wieder geöffnet worden.

satz sehr hoch zu wählen, damit man möglichst schnell mit der Meßimpulsrate über die Nulleffektsimpulsrate hinauskommt.

Die Bildung des β/α -Verhältnisses stellt eine einfache Weiterführung der Messung der α - und β -Einzelimpulsraten dar. Sie läßt sich mit relativ geringem elektronischem Aufwand durchführen und bringt dann in gewissen Fällen eine, wenn auch nicht sehr große, Steigerung der Empfindlichkeit. Eine zuverlässige Aussage über den Anstieg der künstlichen Aktivität läßt sich nur bei gleichzeitiger Beobachtung des β/α -Verhältnisses und der α - und β -Einzelraten treffen.

Differenzverfahren mit γ -Diskriminierung (II, 2a)

Man kann, was unseres Wissens bisher noch nicht angewendet wurde, als Maß für die Höhe der natürlichen Aktivität auf dem Filter die Messung der charakteristischen γ -Linien des RaC bzw. ThC'' mit 1,76 bzw. 2,6 MeV benutzen. Es ist zweckmäßig, aus den vorhandenen γ -Linien diese hochenergetischen Linien zu wählen, da dort am wenigsten Störungen durch γ -Linien von künstlicher Radioaktivität zu befürchten sind.

In Abb. 6 ist schematisch eine Ausführungsmöglichkeit für diese Art von Anlage angedeutet. Durch den notwendigen

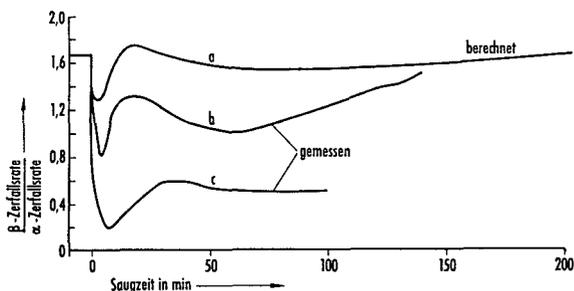


Abb. 5: Berechnetes (Kurve a) und gemessenes (Kurven b und c) β/α -Verhältnis bei kurzzeitiger Erhöhung des Radongehaltes in der Luft. Kurve a gilt für eine 5minütige Erhöhung der Radonkonzentration im Gleichgewicht mit den kurzlebigen Folgeprodukten auf das 100fache. Für die Messung wurde versucht, dieses Bedingungen so gut wie möglich anzunähern, indem eine bekannte Radonmenge in einem geschlossenen Raum freigesetzt und nach 5 min durch starke Lüftung wieder entfernt wurde. Bei Kurve b befand sich das Radon im Gleichgewicht mit seinen kurzlebigen Folgeprodukten, während bei Kurve c das Gleichgewicht durch Absolutfiltration des eingeblasenen Radons gestört wurde. Kurven b und c sind auf den Anfang der Kurve a normiert.

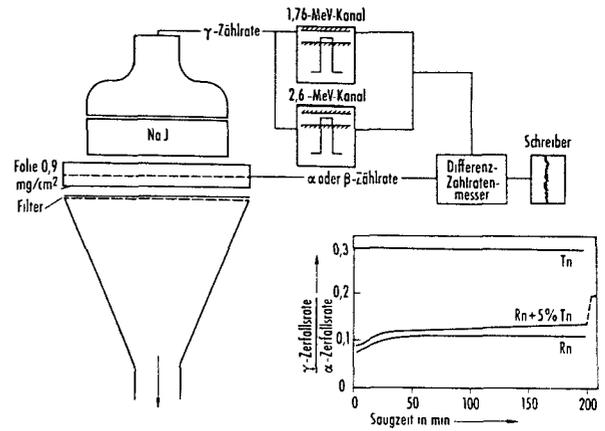


Abb. 6: Differenzverfahren mit γ -Diskriminierung. Die Kurven stellen das berechnete β/α -Verhältnis der Aktivität auf den Filtern für Radon, Thoron und Radon + 5% Thoron dar. Durch meßtechnische Maßnahmen müssen die beiden Verhältnisse von Radon und Thoron auf den gleichen Wert gebracht werden, damit das resultierende Verhältnis möglichst konstant wird.

NaJ-Kristall wird die Anlage zwar gegenüber anderen aufwendiger, man hat aber den Vorteil, daß der NaJ-Kristall gleichzeitig mit zur Identifizierung eventuell vorhandener anderer γ -strahlender Radionuklide benutzt werden kann. In Abb. 6 ist für die beiden Zerfallsreihen das β/α -Verhältnis auf dem Filter über der Saugzeit aufgetragen. Um zu einer möglichst guten Kompensation für die Gesamt- α -Rate zu kommen, muß der Endwert der beiden Verhältnisse auf die gleiche Zahl normiert werden. Das läßt sich beispielsweise durch geeignete Wahl der Breite der beiden Energiekanäle bei der γ -Messung oder durch elektronische Vervielfachung einer der beiden γ -Impulsraten erreichen.

Differenzverfahren mit α/β -Pseudokoinzidenzen (II, 2b)

Als Maß für die natürliche Aktivität auf dem Filter ist die Messung von α/β -Koinzidenzen zwischen RaC und RaC' bzw. ThC und ThC' vorgeschlagen worden. Es handelt sich jedoch insofern um keine echten Koinzidenzen, als man die Zerfälle von zwei aufeinanderfolgenden Zerfallsprodukten in zeitliche Beziehung setzt. Wenn die Koinzidenzzeit der Meßanordnung der Halbwertszeit des Folgeprodukts entspricht, erhält man im Mittel die Hälfte aller Zerfälle als Koinzidenzen. Im Interesse einer guten Ausbeute muß man daher bei der Rn-Zerfallsreihe (Halbwertszeit des RaC' $1,5 \cdot 10^{-4}$ sec) eine Koinzidenzzeit von mehreren 100 μ sec wählen. Das bedingt aber auch, vor allem bei hohen Impulsraten auf dem Filter, bereits eine hohe Anzahl von störenden zufälligen Koinzidenzen. Die Normierung der beiden Koinzidenzraten aus jeder Zerfallsreihe auf denselben Betrag, die hier ebenso erforderlich ist wie beim vorhergehenden Verfahren, kann durch Wahl der Koinzidenzzeit erfolgen.

Die gemeinsame Koinzidenzrate wird mit einem gewissen Faktor versehen und, je nachdem, ob man α - oder β -Aktivität überwachen will, von der α - oder β -Impulsrate abgezogen. Man muß zu Beginn des Saugens eine gewisse Anlaufzeit warten, bis die Radon-Folgeprodukte auf dem Filter im Gleichgewicht stehen. Das Verfahren ist insofern meßtechnisch einfach, als man auch hier, genau wie beim Verhältnissverfahren, mit der einfachen α - und β -Messung auskommt, wobei die erhaltenen Impulse zusätzlich elektronisch verarbeitet werden. In der Praxis hat das Verfahren jedoch deshalb einen beschränkten Gebrauchswert, weil infolge der häufigen zufälligen Koinzidenzen z. B. hohe β -Aktivitäten leicht eine Zunahme der α -Aktivität maskieren können.

Differenzverfahren mit α -Spektroskopie (II, 2c und d)

Dieses Verfahren nützt zur Bestimmung der natürlichen Aktivitätskomponente die Eigenschaft aus, daß die in den natürlichen Zerfallsreihen auftretende α -Strahlung eine relativ hohe Energie besitzt, nämlich 7,7 MeV vom RaC' und 8,8 MeV vom ThC'. Man kann daher, da die zu erwartenden künstlichen Strahler alle niederere α -Energien besitzen, die in einem α -Energie-Band über 6 MeV auftretenden Impulse als Maß für die natürliche Aktivität benutzen. Meßtechnisch läßt sich das entweder durch eine echte α -Spektroskopie, meist mit CsJ-Kristallen, oder durch eine Reichweitemessung erreichen, indem man Absorptionsschichten benutzt, die 6-MeV-Alphaeteilchen gerade noch durchlassen. Dazu wird ein metallenes Band als Träger für die niedergeschlagene Aktivität benutzt, dessen Dicke genau der sättigungsdicken Schicht für 6-MeV-Alphaeteilchen entspricht. Eine Schwierigkeit besteht darin, daß es nicht möglich ist, die Alpha-Energien sauber zu trennen. Von den höherenergetischen Alphaeteilchen fällt bei der Messung immer noch ein gewisser Bruchteil in den niederen Energiebereich, sei es durch Schrägdurchgang durch das Band oder die Abdeckfolie des Zählers, sei es durch Selbstabsorption in dem niedergeschlagenen Staub. Dadurch wird die Methode auch anfällig gegenüber der Menge der abgeschiedenen Substanzen auf dem Filter, so daß sie bisher nur für bewegte Filterbänder benutzt wurde.

Messung einzelner Strahler durch γ -Spektroskopie (II, 3 a)

Die jetzt folgenden Verfahren gehen nicht davon aus, die natürliche Radioaktivität zu bestimmen und dann von der Gesamtaktivität abzuziehen, sondern sie messen charakteristische Strahlungen von künstlichen Isotopen, die überwacht werden sollen. Selbstverständlich wird dadurch die Einsatzmöglichkeit eingeengt. Das Verfahren, mittels γ -Spektroskopie einzelne γ -Linien der Nuklide auf dem Filter zu messen, hat außer seiner Selektivität in der praktischen Anwendung auch andere Nachteile. Im Labor sind meistens größere Mengen der gleichen Aktivität vorhanden, die in Spuren in der Luft nachgewiesen werden sollen. Man muß den Kristall daher gut abschirmen, um sicher zu sein, daß die erfaßte γ -Strahlung wirklich nur von der Aktivität auf dem Filter herührt. Aus diesem Grund hat sich dieses Verfahren im Laborbetrieb nicht eingeführt. Es ist dagegen für eine Überwachung der Auswirkungen von Laboratorien auf die Umgebung wertvoll. Man kann durch gleichzeitige Messung in mehreren Energiekanälen auch Aussagen über das Verhältnis der Häufigkeit einzelner Isotope zueinander treffen und damit Anhaltspunkte über die Art eines Zwischenfalls oder einer Betriebsstörung gewinnen, durch welche diese Isotope in die Luft gelangt sein können.

Messung von ^{239}Pu durch α -Röntgen-Koinzidenz (II, 3 b)

Die bisher besprochenen Methoden zur α -Messung in Luft können zwar auf ^{239}Pu angewandt werden, sind aber in keinem Fall für Plutonium spezifisch, sondern sprechen auch auf andere α -Strahler an. Eine spezifische Messung von ^{239}Pu bei Anwesenheit von weniger gefährlichen α -Strahlern im Überschuß, z. B. Uran, kann über den Nachweis der L-Röntgenstrahlung erfolgen, die von dem beim Plutonium-Zerfall entstehenden Uran 235 in etwa 4% der Zerfälle ausgesandt wird. Ein zur Messung der Röntgenstrahlung geeigneter Proportionalzähler ist bereits an anderer Stelle beschrieben [16]. Seine Anwendungsmöglichkeit wird aber in manchen Fällen durch Störstrahlung hoher Intensität eingeschränkt, die sowohl aus der Probe als auch aus der Umgebung stammen

kann und eine Anwesenheit von Plutonium vortäuscht. Dieser Störeffekt und damit auch der Einfluß der natürlichen Aktivität auf dem Filter wird völlig ausgeschaltet, wenn man zur Messung des ^{239}Pu die Koinzidenz zwischen den Plutonium-Alphaeteilchen und den Röntgenquanten des angeregten Tochterkerns benutzt. Eine dazu geeignete Meßanordnung ist in Abb. 7 schematisch dargestellt.

Orientierende Untersuchungen mit dem erwähnten Dreistufen-Proportionalzählrohr ergaben für ein Plutonium-Präparat in 1 cm Abstand vom Zähler einen Koinzidenz-Wirkungsgrad von etwa 15%, d. h. 15% der ohne Koinzidenz registrierten Röntgenquanten werden in Koinzidenz noch gezählt, wobei ein Koinzidenz-Nulleffekt von weniger als 0,1 Imp/min über die Fläche von 300 cm² ohne Abschirmung erreicht wurde. Weder die Beimischung von 0,1 μC Natururan zur Plutonium-Probe noch ein äußeres γ -Feld von 10 mrem/h konnte diesen Nulleffekt merklich erhöhen. Der Verlust an Empfindlichkeit für die Plutonium-Messung, der infolge der Koinzidenz auftritt, wird demnach durch die Kleinheit, Stabilität und Störunanfälligkeit des Nulleffekts mehr als aufgehoben.

Ein Zähler der in Abb. 7 gezeigten Bauweise würde für eine ^{239}Pu -Aktivität in der Probe von 1 nc eine Koinzidenzrate von 2 Imp/min liefern. Da Fremdaktivitäten praktisch ohne Einfluß bleiben, wäre eine solche Meßanordnung z. B. her-

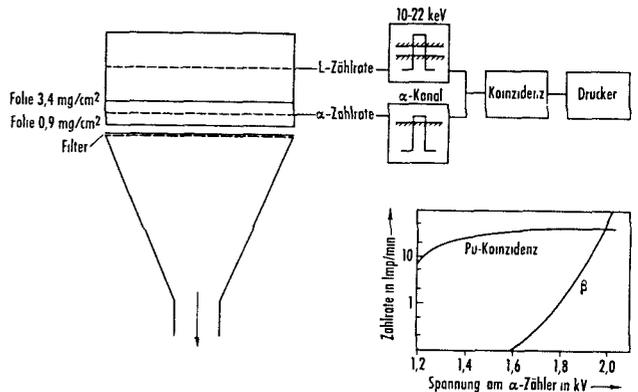


Abb. 7: α -Röntgen-Koinzidenz-Verfahren zur Plutonium-Messung. Die Kurve gibt die ^{239}Pu -Koinzidenzrate und die β -Rate eines Uran-Präparates in Abhängigkeit von der Spannung wieder.

vorrangend geeignet, um die gesamte Abluft mehrerer Laboratorien zusammen, in denen mit ^{239}Pu , aber auch mit anderen Strahlern gearbeitet wird, spezifisch auf den Gehalt an Plutonium zu überwachen. Auch an Stellen, wo hohe äußere Strahlungsfelder auftreten können, ist die α -Röntgen-Koinzidenz für eine sichere Alarmgabe beim Auftreten von Plutonium-Staub eine besonders zweckmäßige Methode.

Schluß

Wie die vorliegende Arbeit zeigt, kann nicht ein bestimmtes Verfahren zur Laborluftüberwachung allgemein empfohlen werden. Die Wahl hängt nicht nur von der Überwachungsaufgabe, sondern auch in hohem Maße von der tatsächlich vorhandenen Höhe und Schwankungsbreite der natürlichen Radioaktivität ab, die in jedem einzelnen Labor unter den dort herrschenden Lüftungs- und Arbeitsbedingungen ermittelt werden sollten, bevor Geräte zur Luftüberwachung zum Einsatz kommen.

Besonderen Dank schulden wir Herrn E. Baumgärtner für seine Mitarbeit beim Aufbau der Meßgeräte und bei der Durchführung der Messungen.

(Eingegangen am 27. 8. 1962)

Literatur

- [1] Defferding, L. J.: Bericht HW-54219 (1958)
- [2] Clarke, N. T.: Nuclear Electronics III. Wien: IAEA 1962, S. 403
- [3] Tait, C. W. G., und J. Beal: Seventh Meeting of the Health Physics Society, Chicago 1962, P/26
- [4] Billard, F., G. Miribel und J. Pradel: Bericht CEA-2085 (1961)
- [5] Buchner, W.: Atompraxis 3, 382 (1957)
- [6] Schröck-Vietor, W.: Atomwirtschaft 7, 474 (1962)
- [7] Spaa, J. H.: Genfer Konferenz P/1473 (1958)
- [8] Kowalski, E.: Atomwirtschaft 7, 481 (1962)
- [9] Iredale, P., und G. Hinder: Bericht AERE-R-3783 (1962)
- [10] Brown, D. P., M. O. Rankin, W. G. Spear, und C. D. Boyne: Seventh Meeting of the Health Physics Society, Chicago 1962, P/27
- [11] Chubakov, A. A., u. a.: Progress in Nuclear Energy, Series XII, Health Physics, Vol. 1. London: Pergamon Press 1959, S. 206
- [12] Cottini, C., E. Catti und A. Malvicini: Nuovo Cimento, Serie 10, 9, Suppl. 2, 381 (1958)
- [13] Phillips, W. A., und C. L. Lindeken: Seventh Meeting of the Health Physics Society, Chicago 1962, P/28
- [14] Schumann, G.: Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, I. Strahlenschutz, Heft 6. München: Gersbach & Sohn 1958, S. 31
- [15] Vogt, K. J., H. W. Jensen, A. Maas, und R. Tzschaschel: Jahresbericht der Kernforschungsanlage Jülich, Nr. 21, 93 (1960)
- [16] Fessler, H., H. Kiefer, und R. Maushart: Atompraxis 7, 402 (1961)
- [17] Mestre, E.: Bull. d'Informations scientifique et technique 1960, Nr. 43, 32.
- [18] Perry, K. E. G.: Bericht AERE-EL/R-1753 (1955)
- [19] Sawle, D. R.: Bericht UCRL-4556 (1955)
- [20] Winogradoff, N.: Bericht UKAEA-8008 (1959)
- [21] Nielsen, Th.: Kerntechnik, 2, 201 (1960)