

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

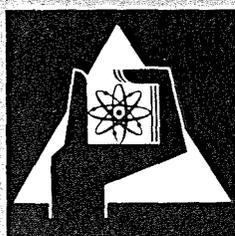
November 1972

KFK 1679

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

Kontinuierliche Messung von Krypton-85 in Anwesenheit von
Argon-41

H. Edelhäuser, H. Fessler, H. Michel



**GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.**

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK-1679

Abteilung Strahlenschutz und Sicherheit

Kontinuierliche Messung von Krypton-85
in Anwesenheit von Argon-41

* H. Edelhäuser, H. Fessler und H. Michel
Kernforschungszentrum Karlsruhe

* jetzt: Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft, Bonn

Gesellschaft für Kernforschung, Karlsruhe

Zusammenfassung

Es wird ein Verfahren zur Messung der Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr in Luft bei Anwesenheit des Störstrahlers ^{41}Ar und von Umgebungsstrahlung beschrieben. Die Meßanordnung besteht aus Dreifachdurchflußzählrohren in Sandwichbauweise, unter Verwendung einer die beiden Meßzählrohre trennenden Absorberfolie, wodurch unterschiedliche Empfindlichkeiten für die β -Strahlungen von ^{85}Kr und ^{41}Ar erzielt werden. Für den Fall, daß nur die β -Strahlung des ^{41}Ar aus dem Meßvolumen kompensiert werden muß, ergibt sich mit der beschriebenen Anlage eine Nachweisgrenze für ^{85}Kr von $1,4 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$. Bei Einfluß äußerer γ -Strahlung aus der ^{41}Ar -Wolke muß das Kompensationsverfahren so modifiziert werden, daß sowohl der Einfluß der γ -Strahlung als auch der β -Strahlung von ^{41}Ar kompensiert wird. Die Nachweisgrenze beträgt dann aber $12,5 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$.

Abstract

Continuous measurement of ^{85}Kr in presence of ^{41}Ar

In this report a method for measuring the activity of ^{85}Kr in air in the presence of ^{41}Ar will be described. The detector system consists of three large area gas flow counters arranged as a sandwich. The two counters, which are provided for the measurement of the ^{85}Kr - and ^{41}Ar - β particles are separated by an absorber foil to get different sensibilitys for the ^{85}Kr - and ^{41}Ar - β radiation. If there is no gamma-background from ^{41}Ar the lower detection limit for ^{85}Kr is $1,4 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$. If ^{41}Ar - γ -radiation from the environment can enter the detectors a modified compensation must be used, so that both gamma- as well as beta-radiation from ^{41}Ar will be compensated. The lower detection limit will then increase to $12,5 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$.

1. Aufgabenstellung

Eine wirtschaftliche Nutzung der Kernenergie ist nur dann möglich, wenn der in abgebrannten Brennelementen verbliebene Spaltstoff zurückgewonnen wird. Zum Zwecke der Rückgewinnung müssen die im Reaktor aktivierten Brennelemente zerkleinert und aufgelöst werden, wobei vorallem gasförmige Spaltprodukte zur Freisetzung gelangen. Durch die 1.SSV0 sind für die Konzentration dieser Stoffe in Luft bestimmte maximal zulässige Werte vorgeschrieben, deren Einhaltung nachgewiesen werden muß. Hierbei ist der Nachweis des radioaktiven Edelgasisotops ^{85}Kr wegen seiner großen Halbwertszeit und der damit verbundenen Gefahr der Anreicherung in der Atmosphäre von besonderem Interesse.

Durch die Inbetriebnahme der Wiederaufarbeitungsanlage für Kernbrennstoffe im September 1971 in Leopoldshafen stellte sich die Aufgabe, die Aktivitätskonzentration von ^{85}Kr in Luft in Anwesenheit von Störstrahlern und von Umgebungsstrahlung zu messen. Als Störstrahler war vorallem das Edelgasisotop ^{41}Ar zu berücksichtigen, das von den auf dem Gelände des Kernforschungszentrums Karlsruhe betriebenen Reaktoren in unmittelbarer Nähe der Wiederaufarbeitungsanlage in die Atmosphäre freigesetzt wird.

2. Kompensation des Einflusses von ^{41}Ar auf die Messung von ^{85}Kr

Wegen seiner geringen γ -Emissionswahrscheinlichkeit von ca. 0,4 % ist das ^{85}Kr praktisch ein reiner β -Strahler. Unter Berücksichtigung seiner maximalen β -Energie von 0,67 MeV ist für eine empfindliche Direktmessung der Aktivitätskonzentration ein dünnwandiger β -Detektor erforderlich.

Das als Störstrahler zu erwartende ^{41}Ar besitzt eine maximale β -Energie von 1,2 MeV und wird von demselben Detektor wesentlich empfindlicher gemessen. Außerdem wächst bei Vergrößerung des Meß-

volumens die Empfindlichkeit für ^{41}Ar stärker als für ^{85}Kr . Daher sollte das Luftvolumen, aus dem β -Teilchen in den Detektor gelangen können, relativ klein bemessen sein.

^{41}Ar ist gleichzeitig auch γ -Strahler, mit einer γ -Energie von 1,29 MeV und einer γ -Emissionswahrscheinlichkeit von 99 %. Dies hat zur Folge, daß bei unabgeschirmten Meßanordnungen der Meßeffect nicht nur durch die ^{41}Ar -Konzentration im Meßvolumen, sondern zusätzlich durch den äußeren Einfluß des ^{41}Ar aus der Abluftfahne erhöht wird.

Ein empfindlicher Nachweis von ^{85}Kr durch Direktmessung ist daher bei Anwesenheit von ^{41}Ar nur dann möglich, wenn Maßnahmen getroffen sind, durch die die Einflüsse der ^{41}Ar -Strahlung aus dem Meßvolumen und aus der Abluftfahne kompensiert werden können.

3. Beschreibung der Meßanordnung

Für Versuchsmessungen mit ^{85}Kr und ^{41}Ar wurde die in Abb. 1 dargestellte Meßanlage benutzt. Das quaderförmige Meßvolumen von ca. 50 l Größe wird an zwei gegenüberliegenden Flächen durch eine Kombination von großflächigen Detektoren begrenzt. Jede Kombination besteht aus drei Großflächendurchflußzählrohren in Sandwichbauweise, von denen eines als Schutzzählrohr durch eine Stahlplatte gegenüber den beiden Meßzählrohren abgeschirmt ist. Die Meßzählrohre wurden durch Absorptionsfolien unterschiedlicher Dicke voneinander getrennt, während das dem Meßvolumen zugewandte Endfenster aus einer aluminiumbedampften Kunststoffolie von $0,9 \text{ mg/cm}^2$ Dicke bestand. Die Impulsausgänge der Meßdetektoren waren in Antikoinzidenz zum Ausgang des Schutzzählrohrs geschaltet. Die Zählrate N_2 des mittleren Detektors wurde zusätzlich in Koinzidenz zur Impulsfolge des an das Meßvolumen anschließenden Detektors 3 gebildet. Bei geeigneter Absorptionsfolie zwischen den beiden Meßdetektoren ist mit dieser Anordnung - aufgrund der unterschiedlichen Maximalenergien - eine getrennte Messung der

β -Strahlungen von ^{41}Ar und ^{85}Kr möglich.

3.1 Messung ohne äußere Einstrahlung von ^{41}Ar

Im folgenden wird die Anwendung des Meßverfahrens zur Bestimmung von ^{85}Kr -Konzentrationen für den Fall beschrieben, daß keine äußere Einstrahlung von ^{41}Ar vorliegt. Dies ist z.B. bei Messung in Abluftanlagen oder bei abgeschirmten Detektoranordnungen der Fall.

Für die mit der in Abb.1 dargestellten Anordnung gemessenen Aktivitätskonzentrationen A_K gelten dann folgende Beziehungen:

$$A_{K\text{ Kr}} = \frac{1}{\eta_{\text{Kr}}^*} \cdot (N_3 - c_{\text{Ar}} \cdot N_2)$$

$$A_{K\text{ Ar}} = \frac{1}{\eta_{\text{Ar}}^*} \cdot (N_2 - c_{\text{Kr}} \cdot N_3)$$

$$\text{wobei } \eta_{\text{Kr}}^* = \frac{\eta_{3\text{Kr}} \cdot \eta_{2\text{Ar}} - \eta_{2\text{Kr}} \cdot \eta_{3\text{Ar}}}{\eta_{2\text{Ar}}}$$

$$\eta_{\text{Ar}}^* = \frac{\eta_{3\text{Kr}} \cdot \eta_{2\text{Ar}} - \eta_{2\text{Kr}} \cdot \eta_{3\text{Ar}}}{\eta_{3\text{Kr}}}$$

$$c_{\text{Ar}} = \frac{\eta_{3\text{Ar}}}{\eta_{2\text{Ar}}}$$

$$c_{\text{Kr}} = \frac{\eta_{2\text{Kr}}}{\eta_{3\text{Kr}}}$$

N_i = β -Nettopulsrate des Detektors i ($i = 2, 3$)

$\eta_{i\text{Ar}}$ = β -Empfindlichkeit des Detektors i für ^{41}Ar

$\eta_{i\text{Kr}}$ = β -Empfindlichkeit des Detektors i für ^{85}Kr

Die Nachweisgrenze für ^{85}Kr ist durch den mittleren statistischen Fehler $\sigma(A_K)$ des Konzentrationswertes gegeben, der sich aus den mittleren statistischen Schwankungen $\sigma(N_{i0})$ der Nullraten $^{+)}$ der Meßdetektoren wie folgt errechnet:

$$\sigma(A_{K\text{ Kr}}) = \frac{1}{\eta_{*K\text{r}}} \sqrt{[\sigma(N_{30})]^2 + C_{\text{Ar}}^2 \cdot [\sigma(N_{20})]^2}$$

$^{+)}$ einschl. der β -Zählratenanteile von ^{41}Ar aus dem Meßvolumen

Mit der in Abb.2 dargestellten Anordnung wurden Versuchsmessungen mit den Edelgasen ^{85}Kr und ^{41}Ar durchgeführt, um die Empfindlichkeiten bei verschiedenen dicken Absorptionsfolien zwischen den Detektoren 2 und 3 zu bestimmen. Aus diesen Werten wurden die in Abb.3 dargestellten Nachweisgrenzen für ^{85}Kr errechnet.

Das Ergebnis zeigt, daß die beschriebene Meßanordnung bei einer Absorptionsfolie von 70-80 mg/cm² Dicke eine untere Nachweisgrenze für ^{85}Kr besitzt, die - unter Zugrundelegung einer Meßzeit von 1 min - ohne Anwesenheit von ^{41}Ar etwa $4,4 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$ beträgt. Bei allseitiger Abschirmung der Detektoranordnung durch 7 cm Blei läßt sich die Nachweisgrenze auf etwa $1,4 \cdot 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$ senken.

3.2 Messung bei äußerer Einstrahlung von ^{41}Ar

Bei Meßanordnungen, die zur Umgebungsüberwachung mit wechselnden Standorten - beispielsweise in Meßfahrzeugen - eingesetzt werden sollen, läßt sich der Einfluß äußerer γ -Strahlung aus der ^{41}Ar -Wolke durch Abschirmung aus Gewichtsgründen nicht mehr vermeiden. Hierfür wären nämlich bei der beschriebenen Anlage etwa 1 bis 1,5t Blei erforderlich.

Unter Berücksichtigung des Einflusses der äußeren γ -Strahlung aus der ^{41}Ar -Wolke ändern sich die im Abschnitt 3.1 genannten Beziehungen wie folgt:

$$A_{K\text{ Kr}} = \frac{1}{\eta_{*K\text{r}}} \cdot [(N_3 + N_{3\gamma}) - C_{\text{Ar}} \cdot (N_2 + N_{2\gamma})]$$

$$A_{K \text{ Ar}} = \frac{1}{\eta_{\text{Ar}}^*} \cdot [(N_2 + N_{2\gamma}) - C_{\text{Kr}} \cdot (N_3 + N_{3\gamma})]$$

wobei $N_{i\gamma}$ = γ -Nettoimpulsrate des Detektors i ($i = 2, 3$)
für äußere Strahlung aus der ^{41}Ar -Wolke

Der Einfluß der ^{41}Ar -Wolke auf die ^{85}Kr -Messung läßt sich jedoch unterdrücken, wenn die Meßanordnung so verändert wird, daß $N_{3\gamma}/N_{2\gamma} = C_{\text{Ar}}$ ist. In diesem Fall sind die ^{41}Ar -Kompensationsfaktoren für β -Strahlung aus dem Meßvolumen und γ -Strahlung aus der Wolke gleich groß.

Hinsichtlich der Nachweisgrenze für ^{85}Kr bleiben jedoch die statistischen Schwankungen der durch die ^{41}Ar -Wolke bedingten γ -Zählraten von Bedeutung. Die Nachweisgrenze für ^{85}Kr ist demnach gegeben durch die mittlere statistische Schwankung

$$\sigma(A_{K \text{ Kr}}) = \frac{1}{\eta_{\text{Kr}}^*} \cdot \sqrt{[\sigma(N_{30} + N_{3\gamma})]^2 \cdot C_{\text{Ar}}^2 \cdot [\sigma(N_{20} + N_{2\gamma})]^2}$$

4. Empfindlichkeit der Meßanordnung für eine homogene ^{41}Ar -Wolke

Um prüfen zu können, wann die in Abschnitt 3.2 genannte Bedingung zur Kompensation des Einflusses der γ -Strahlung aus der ^{41}Ar -Wolke, $N_{3\gamma}/N_{2\gamma} = C_{\text{Ar}}$, erfüllt ist, müssen die Empfindlichkeiten der Meßdetektoren für diesen Fall bei verschiedenen Absorptionsfolien-dicken bestimmt werden. Hierzu wurde angenommen, daß sich die Detektoranordnung im Mittelpunkt einer halbkugelförmigen Wolke von 200 m Durchmesser befindet, die eine homogene ^{41}Ar -Konzentration $A_{K \text{ Ar}}$ besitzt. Der aus einer Halbkugelschale mit den Radien r_i und $r_i + dr_i$ stammende Zählratenanteil eines Meßdetektors läßt sich dann ausdrücken durch

$$dN_{\gamma}(r_i \dots r_i + dr_i) = \frac{2\pi r_0^2}{A} \cdot A_{K \text{ Ar}} \cdot dr_i \cdot \int_{\phi=0}^{90^\circ} N(r_i, \phi) \cdot \sin\phi \cdot d\phi$$

wobei $\frac{2\pi r_0^2}{A}$ = Normierungsfaktor

ϕ = Strahleneinfallswinkel

Zur Bestimmung der Zählraten $N(r_i, \phi)$ wurde die Anlage mit einer ^{60}Co -Quelle, die in Kugeln von annähernd luftäquivalentem Material eingebracht war (entsprechend einer Schichtdicke von 27, 70 und 85 m Luft), unter verschiedenen Einfallswinkeln kalibriert. Die mittlere γ -Energie des ^{60}Co von 1,25 MeV repräsentiert sehr gut die γ -Energie des ^{41}Ar . Außerdem berücksichtigt diese Anordnung den effektiven Schwächungskoeffizienten einer kugelförmigen Luftschicht, der aufgrund von Streueffekten von dem einer ebenen Luftschicht erheblich abweichen kann.

Durch schrittweise Integration über die bei der Kalibrierung gewählten Einfallswinkel ϕ wurde der integrale Zählratenanteil $N(r_i)$ einer Halbkugelschale erhalten, aus der sich die gesamte γ -Zählrate der Halbkugel zu

$$N_{\gamma}(200 \text{ m } \phi) = \frac{2\pi r_0^2}{A} \cdot A_K \cdot \int_{r_i=0}^{100 \text{ m}} N(r_i) \cdot dr_i$$

ergibt.

Die Ergebnisse dieser Bestimmung sind in Abb. 4 dargestellt. Durch Vergleich mit den ebenfalls eingetragenen β -Empfindlichkeiten für ^{41}Ar -Strahlung aus dem Meßvolumen stellt man fest, daß für die beschriebene Anordnung die in Abschnitt 3.2 gestellte Forderung gleicher Kompensationsfaktoren für β - und γ -Strahlung bei einer Absorptionsfoliendicke von ca. 250 mg/cm^2 gegeben ist. Die Nachweisgrenze für ^{85}Kr allein beträgt hierbei jedoch nur $12,5 \times 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$ gegenüber $1,4 \times 10^{-8} \text{ Ci/m}^3$ der in Abschnitt 3.1 beschriebenen Anordnung (Meßzeit 1 min.).

5. Diskussion

Da bei der Bestimmung der γ -Empfindlichkeit aus der ^{41}Ar -Wolke nur die Winkelabhängigkeit aus einer Ebene senkrecht zur Längsausdehnung der Detektoren berücksichtigt wurde, ist das beschriebene Verfahren mit einer bestimmten Richtungsabhängigkeit versehen. Eine wesentliche Verbesserung läßt sich jedoch erzielen, wenn zur Begrenzung des Meßvolumens, sechs Großflächenzählrohre mit quadratischen Oberflächen zu einem Würfel zusammengebaut werden. Es konnte gezeigt werden, daß bei einer solchen rechwinkligen Anordnung benachbarter Detektoren die Richtungsabhängigkeit nur noch $\pm 5\%$ beträgt. Für die Abhängigkeit vom Radius der Wolke ergaben sich bei der Interpretation über den Halbraum ebenfalls keine größeren Abweichungen als $\pm 5\%$ innerhalb der ersten 100 m.

Trotz des labormäßigen Aufbaus kann die Eignung des beschriebenen Verfahrens für die Messung von ^{85}Kr hinsichtlich dessen maximal zulässiger Konzentration auch in Anwesenheit von ^{41}Ar als gegeben angesehen werden.

Abbildungen

- Abb. 1 Messanordnung zur analogen Registrierung der Zählraten
- Abb. 2 ^{85}Kr -Messanordnung, bestehend aus Detektoranordnung mit Kalibrierkreislauf und analog registrierendem Esone-Meßplatz
- Abb. 3 Nachweisgrenzen für ^{85}Kr in Abhängigkeit von der Absorberdicke bei verschiedenen ^{41}Ar -Konzentrationen im Meßvolumen, einem Abschirmfaktor von 10 und einer Meßzeit von 1 min.
- Abb. 4 Detektorempfindlichkeiten in Abhängigkeit von der Absorberdicke

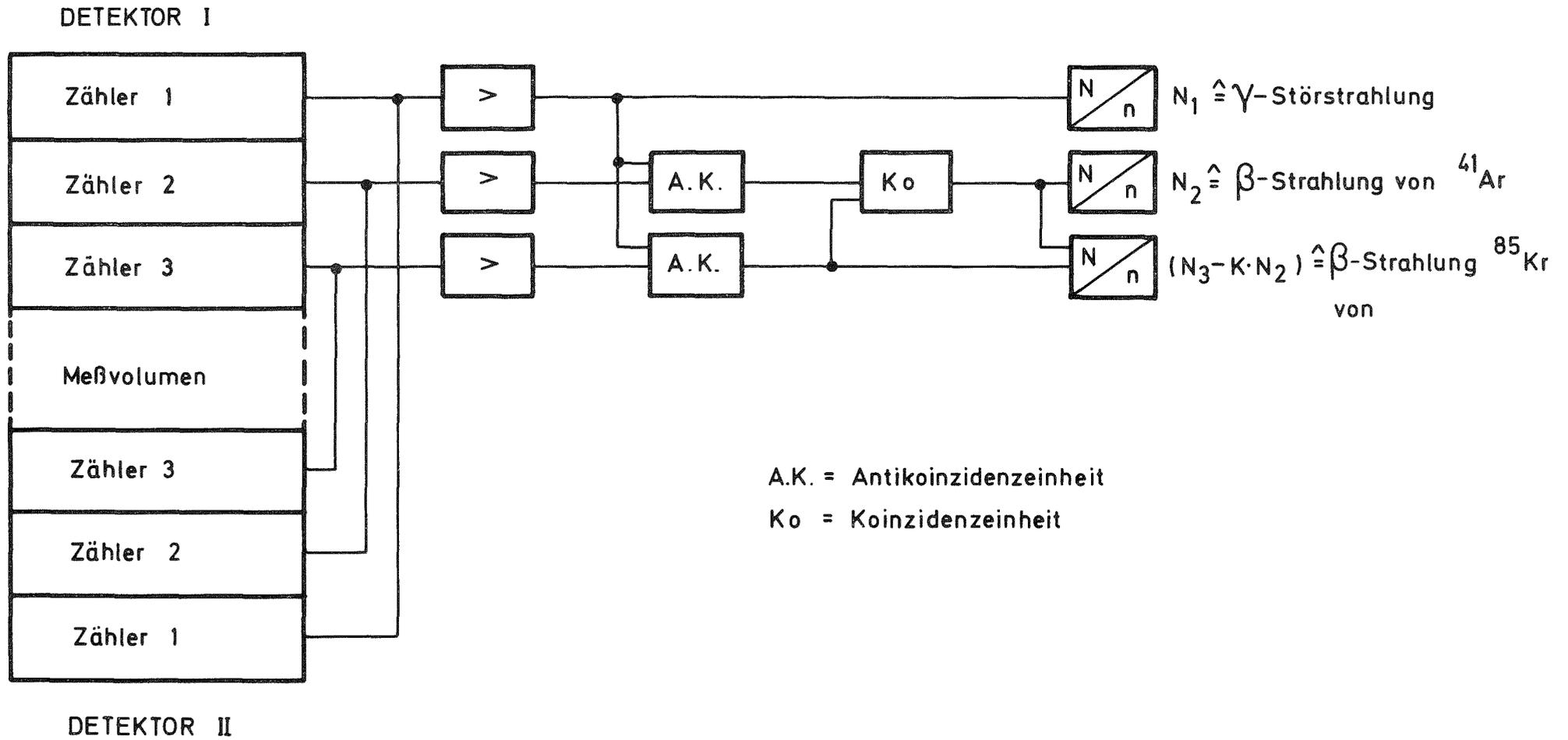


Abb. 1: MESSANORDNUNG ZUR ANALOGEN REGISTRIERUNG DER ZÄHLRATEN

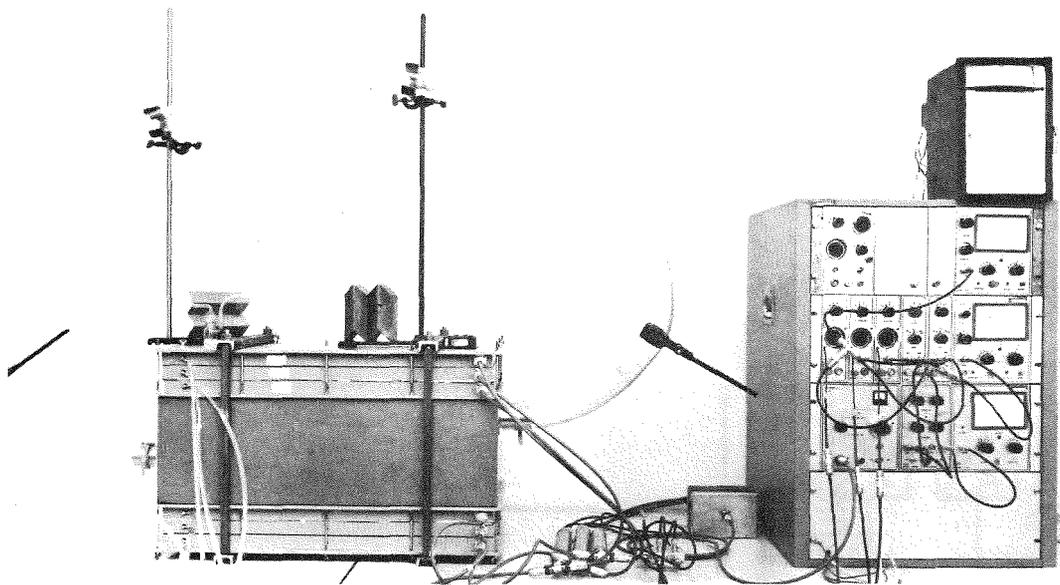


Abb. 2: ^{85}Kr -Meßanordnung, bestehend aus Detektoranordnung mit Kalibrierkreislauf und analog registrierendem Esone-Meßplatz

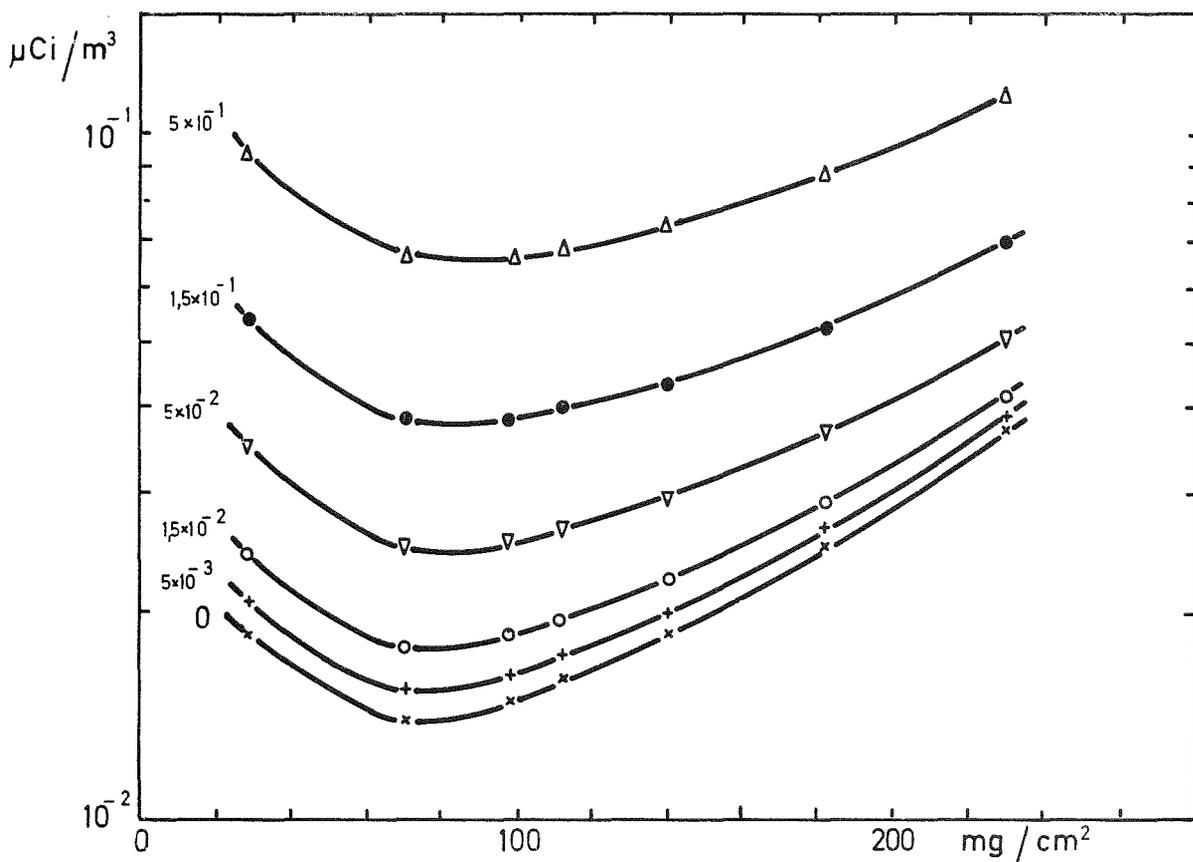


Abb. 3: Nachweisgrenzen für ^{85}Kr in Abhängigkeit von der Absorberdicke bei verschiedenen ^{41}Ar -Konzentrationen im Meßvolumen, einem Abschirmfaktor von 10 und einer Meßzeit von 1 min.

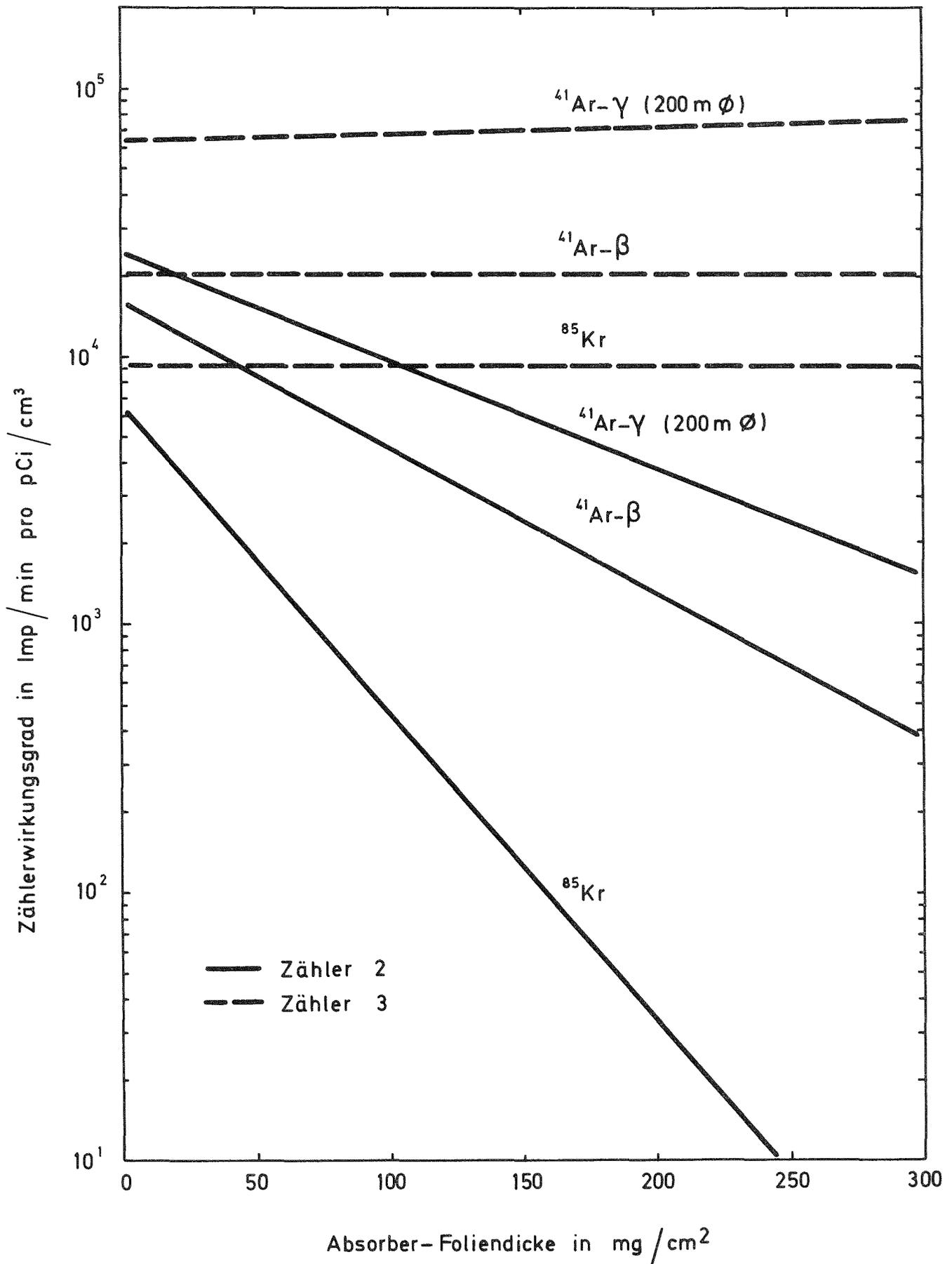


Abb.4: Detektorempfindlichkeiten in Abhängigkeit von der Absorberdicke

