



(12) Ausschließungspatent

(11) DD 289 440 A7

Erteilt gemäß § 18 Absatz 2

Patentgesetz der DDR

vom 27.10.1983

in Übereinstimmung mit den entsprechenden

Festlegungen im Einigungsvertrag

5(51) G 01 T 1/167

DEUTSCHES PATENTAMT

(21) DD G 01 T / 210 240 1

(22) 28.12.78

(45) 02.05.91

(71) siehe (72)

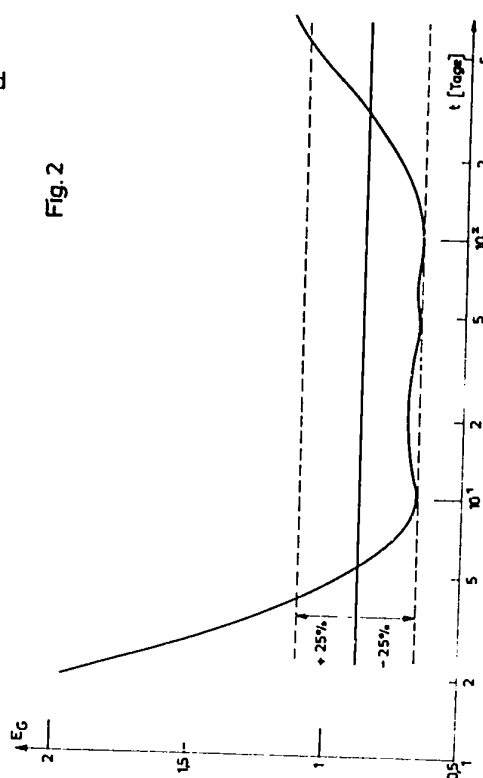
(72) Schillinger, Klaus, Dr. sc. nat.; Weber, Karl-Heinz, Dr. rer. nat.; Gerhardt, Klaus, Dipl.-Phys.; Henniger, Jürgen, Dipl.-Phys.; Pertermann, Wolfgang, Dr. rer. nat., DE

(73) Robotron-Meßelektronik „Otto Schön“ Dresden, Lingnerallee 3, PSF 211, O - 8012 Dresden, DE

(74) siehe (73)

(54) Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen

(57) Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen. Diese Gemische können bei Havarien an Kernreaktoren und beim Einsatz von Kernwaffen entstehen und eine Kontamination lebensnotwendiger Güter verursachen. Ziel der Erfindung ist es, ein einfaches und in Feldgeräten anwendbares Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen bei hohem Gamma-Untergrund zu schaffen, das eine schnelle und zuverlässige Entscheidung über die Verwendbarkeit von mit Spaltprodukten kontaminierten Nahrungs- und Futtermitteln unabhängig vom Alter des Spaltproduktgemisches gestattet. Die Aufgabe der Erfindung sieht vor, daß bei dem eingangs genannten Verfahren der zur Anzeige gelangende Meßwert direkt proportional zu der bei Inkorporation auftretenden relativen biologischen Gefährdung ist. Erfindungsgemäß werden Meßproben mit betasatter Schichtdicke und ein beta-empfindlicher Detektor mit einer Dicke der empfindlichen Zone von 25 bis 70 mg/cm² verwendet. Die Diskriminatorenergie wird gleich dem Produkt aus der Dicke der empfindlichen Zone des Detektors und dem minimalen Bremsvermögen der Betateilchen im Detektormaterial gewählt. Fig. 2 stellt die Erfindung am besten dar. Fig. 2



Erfindungsanspruch:

Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen bei erhöhtem Gamma-Untergrund durch Messung der aus der Oberfläche der Meßprobe je Zeiteinheit austretenden Beta-Teilchen, unter Verwendung bekannter Aktivitätsmeßanordnungen, **gekennzeichnet dadurch**, daß Meßproben mit betasatter Schichtdicke und ein betaempfindlicher Detektor, mit einer Dicke der empfindlichen Zone von 25 bis 70 mg/cm² verwendet werden und daß die Diskriminatorenergie der verwendeten Meßanordnung gleich dem Produkt aus der Dicke der empfindlichen Zone des Detektors und dem minimalen Bremsvermögen der Beta-Teilchen im Detektormaterial gewählt wird.

Hierzu 2 Seiten Zeichnungen

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen, insbesondere ein Verfahren zur altersunabhängigen Bestimmung der durch Inkorporation von mit Spaltproduktgemischen kontaminierten Wasser und Nahrungsmitteln verursachten biologischen Gefährdung bei erhöhtem Gamma-Untergrund. Unter der sogenannten relativen biologischen Gefährdung G wird dabei der Quotient aus der Aktivitätskonzentration oder der spezifischen Aktivität A der Probe und dem vom Alter t des Spaltproduktgemisches abhängigen zulässigen Konzentrationsgrenzwert K (t) verstanden:

$$G = A/K(t) \quad (1)$$

Bei Havarien an Kernreaktoren und insbesondere beim Einsatz von Kernwaffen können die gebildeten Spaltprodukte in die Biosphäre gelangen und verursachen dadurch eine Kontamination lebensnotwendiger Güter, wie Wasser, Milch, Lebens- und Futtermittel.

Die Inkorporation, d.h. die Aufnahme kontaminierter Stoffe in den menschlichen oder tierischen Körper, kann infolge der Radioaktivität der Spaltprodukte zu biologischen Schäden führen. Um die schädigende Wirkung möglichst gering zu halten oder zu vermeiden, muß die in den Körper gelangende Aktivität begrenzt werden. Hierzu ist es erforderlich, die Aktivitätskonzentration oder die spezifische Aktivität A, das ist die pro Volumen- oder Masse-Einheit in der Probe vorhandene Aktivität, der zum Verbrauch bestimmten Nahrungsgüter zu messen und den gemessenen Wert mit dem zulässigen Konzentrationswert K zu vergleichen. Die Entscheidung über die Verwendbarkeit wird anhand des Wertes der durch die Beziehung (1) definierten relativen biologischen Gefährdung G getroffen:

Für $G < 1$ können die betreffenden Nahrungsgüter verwendet werden, für $G > 1$ sind sie nicht verwendbar.

Die Anwendung der Erfindung erfolgt daher bei der Beurteilung der Verwendbarkeit lebensnotwendiger Nahrungsgüter, die mit Spaltprodukten kontaminiert sind, nach Reaktorhavarien und insbesondere beim Einsatz von Kernwaffen in der Zivilverteidigung und im militärischen Bereich.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Zur Messung der Aktivitätskonzentration von mit Spaltprodukten kontaminierten Proben kommen alle für Aktivitätsmessungen bekannten Anordnungen und Verfahren zur Anwendung, wobei in der Regel die aus der Oberfläche der Meßprobe pro Zeiteinheit austretenden, von den Spaltprodukten emittierten Beta-Teilchen oder Gamma-Quanten gemessen werden. Einfache Vorrichtungen, die insbesondere in tragbaren Geräten Anwendung finden, bestehen aus einem Kernstrahlungsdetektor, einem Impulsverstärker, einem Impulshöhen Diskriminator und einer Vorrichtung zur Impulszahl- oder Impulsdichte-Messung. Die gemessene Impulsdichte, d.h. die Zahl der Impulse pro Zeiteinheit, ist ein Maß für die in der Meßprobe enthaltene Aktivität. Es sind weiterhin komplizierte Anordnungen und Verfahren bekannt, bei denen zur Unterdrückung der vom Detektor herrührenden Rauschimpulse Koinzidenzverfahren oder zur Herabsetzung des Nulleffektes Antikoinzidenzabschirmungen oder Antikoinzidenzanordnungen in Verbindung mit Anordnungen zur Impulsformdiskriminierung angewendet werden (vgl. z.B. H. Kiefer und R. Maushart, Strahlenschutzmeßtechnik, Verlag G. Braun Karlsruhe).

Bei der Anwendung auf Spaltproduktgemische besitzen die bekannten Verfahren den Nachteil, daß sie eine Entscheidung über die Verwendbarkeit des untersuchten Meßgutes nur dann gestatten, wenn das Alter des Spaltproduktgemisches bekannt ist. Diese Voraussetzung ist im allgemeinen nur bei Reaktorunfällen erfüllt. Unter den Bedingungen eines Kernwaffenkrieges ist jedoch das Alter der Spaltproduktgemische nicht immer bekannt.

Da der zulässige Konzentrationsgrenzwert eines Spaltproduktgemisches, mit zunehmendem Alter sich ändert, kann eine Entscheidung über die Verwendbarkeit von Nahrungsgütern nur dann getroffen werden, wenn außer der Aktivitätskonzentration oder der spezifischen Aktivität auch das Alter des Spaltproduktgemisches bekannt ist.

Altersbestimmungen von Spaltproduktgemischen sind jedoch unter feldmäßigen Bedingungen problematisch und erfordern einen zusätzlichen Meß- und Zeitaufwand.

Dieser Nachteil wird teilweise vermieden durch das im DD-WP 59342 vorgeschlagene Verfahren, das eine Messung der Gamma-Dosisleistung über der Meßprobe mittels eines Detektors mit bestimmter Energieabhängigkeit der Gamma-Dosisempfindlichkeit vorsieht. Dieses Verfahren ist jedoch nur bis zu einem Spaltproduktalter von 100 Tagen anwendbar;

für die Zivilverteidigung und für militärische Anwendungen sind jedoch auch ältere Spaltproduktgemische mit einem Alter bis zu 1 Jahr von Interesse.

Ein weiterer Mangel dieses Verfahrens besteht darin, daß Aktivitätsmessungen in einem Strahlungsfeld mit hohem äußeren Gamma-Untergrund nicht oder nur durch Abschirmung des Detektors und der Meßprobe mit großen und schweren Abschirmanordnungen durchführbar sind.

Ziel der Erfindung

Ziel der Erfindung ist es, ein einfaches und in Feldgeräten anwendbares Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen bei hohem Gamma-Untergrund zu schaffen, das eine schnelle und zuverlässige Entscheidung über die Verwendbarkeit von mit Spaltprodukten kontaminierten Nahrungs- und Futtermitteln unabhängig vom Alter des Spaltproduktgemisches gestattet. Im Vergleich zu den bekannten Verfahren der Aktivitätsmessung soll insbesondere die Beurteilung der Verwendbarkeit kontaminierter Stoffe durch Verzicht auf zusätzliche Auswertehilfsmittel, wie Vorrichtungen zur Altersbestimmung und Tabellen mit vom Alter abhängigen Konzentrationsgrenzwerten, wesentlich vereinfacht werden. Schließlich soll das Verfahren nach der Erfindung auch auf ältere Spaltproduktgemische mit einem Alter bis zu 1 Jahr und bei hohem Gamma-Untergrund anwendbar sein.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, unter Verwendung bekannter Anordnungen ein Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen in Trinkwasser, Milch sowie in Nahrungs- und Futtermitteln zu schaffen, bei dem der zur Anzeige gelangende Meßwert M direkt proportional zu der bei Inkorporation auftretenden relativen biologischen Gefährdung G ist, die gemäß Beziehung (1) durch den Quotienten aus der Aktivitätskonzentration oder spezifischen Aktivität A und dem zulässigen Konzentrationsgrenzwert K definiert ist. Insbesondere soll die Empfindlichkeit E_G , definiert durch

$$E_G = M/G \quad (2)$$

in einem möglichst großen Altersbereich bis zu einem Alter von 1 Jahr innerhalb bestimmter Fehlergrenzen unabhängig vom Alter des Spaltproduktgemisches sein. Schließlich soll das Verfahren zur altersunabhängigen Bestimmung der relativen biologischen Gefährdung von Spaltproduktgemischen auch bei hohem äußeren Gamma-Untergrund anwendbar sein. Die bekannten Anordnungen und Verfahren zur Aktivitätsmessung erfüllen die Forderung nach einer altersunabhängigen Bestimmung der relativen biologischen Gefährdung nicht, da bei diesen Verfahren keine speziellen Maßnahmen vorgesehen sind, um die zur Erfüllung der genannten Forderung notwendige definierte Abhängigkeit der Aktivitätsmeßempfindlichkeit $E_A = M/A$ vom Alter zu realisieren.

Das im DD-WP 59342 vorgeschlagene Verfahren erfüllt die Forderung nach altersunabhängiger Messung nur bis zu einem Alter von 100 Tagen, da es technisch nicht möglich ist, die Abhängigkeit der Gamma-Dosisempfindlichkeit der bekannten Detektoren von der Quantenenergie so zu gestalten, daß auch für ältere Spaltproduktgemische die durch die Beziehung (2) definierte Empfindlichkeit unabhängig vom Alter ist. Da der bei diesem Verfahren verwendete Detektor eine hohe Gamma-Empfindlichkeit besitzen muß, um auch geringe Aktivitäten zu messen, wird bei einem hohen äußeren Gamma-Pegel ein großes Störsignal erzeugt. Dadurch ist dieses Verfahren für Aktivitätsmessungen bei hohem Gamma-Untergrund nicht oder nur bedingt geeignet. Die Aufgabe wird mit einem Verfahren zur Bestimmung der Aktivitätskonzentration von Spaltproduktgemischen bei erhöhtem Gamma-Untergrund durch Messung der aus der Oberfläche der Meßprobe je Zeiteinheit austretenden Beta-Teilchen, unter Verwendung an sich bekannter Aktivitätsmeßanordnungen, dadurch gelöst, daß zur Erzielung einer altersunabhängigen Bestimmung der bei Inkorporation auftretenden relativen biologischen Gefährdung Meßproben mit betasatter Schichtdicke und ein betaempfindlicher Detektor mit einer Dicke der empfindlichen Zone von 25 bis 70 mg/cm² verwendet werden und daß die Diskriminatorenergie gleich dem Produkt aus der Dicke der empfindlichen Zone des Detektors und dem minimalen Bremsvermögen der Beta-Teilchen im Detektormaterial gewählt wird. Bei den bekannten einfachen Anordnungen zur Messung von Beta-Aktivitäten, auf die das Verfahren nach der Erfindung angewendet werden kann, wurde ein Probenschälchen, in dem sich die zu untersuchende, mit Spaltproduktgemischen kontaminierte Meßprobe mit einer Füllhöhe von 8 mm, entsprechend der Sättigungsdicke befand, unter einem für Beta-Strahlung empfindlichen Detektor angeordnet, der die Beta-Teilchen in elektrische Impulse umwandelt, deren Amplitude proportional zu der im Detektor absorbierten Teilchenenergie ist. Die vom Detektor abgegebenen Impulse gelangen nach Verstärkung auf einen Diskriminator. Am Ausgang des Diskriminators erscheinen nur solche Impulse, deren Amplituden eine bestimmte, durch die Diskriminatorspannung einstellbare Schwelle überschreiten. Infolge des linearen Zusammenhanges zwischen der Impulsamplitude und der im Detektor absorbierten Energie existiert eine bestimmte Diskriminatorenergie. Sie ist identisch mit dem kleinsten Energieverlust eines Beta-Teilchens, das am Ausgang des Diskriminators gerade noch einen Impuls erzeugt. Die Ausgangsimpulse des Diskriminators gelangen auf einen Impulsdichtemesser oder einen Impulszähler mit Zeitvorwahl. Der Meßeffekt M , d. h. die gemessene Impulsdichte, ist proportional der aus der Oberfläche der Meßprobe je Zeiteinheit austretenden Beta-Teilchen und damit proportional zur Aktivitätskonzentration bzw. zur spezifischen Aktivität A der Meßprobe:

$$M = A E_A(t), \quad (3)$$

wobei E_A die Aktivitätsmeßempfindlichkeit der Anordnung bedeutet. Die Aktivitätsmeßempfindlichkeit hängt von der Energie bzw. vom Energiespektrum der auf den Detektor auftreffenden Beta-Teilchen ab. Da sich das Energiespektrum der Beta-Strahlung eines Spaltproduktgemisches in gesetzmäßiger Weise mit seinem Alter t ändert, ist E_A eine Funktion des Alters t .

Aus den Beziehungen (1) und (3) erhält man für den Meßeffect

$$M = G E_A(t) K(t).$$

Der Meßeffect ist daher proportional der relativen biologischen Gefährdung G . Der Proportionalitätsfaktor, der gemäß Beziehung (2) durch

$$E_G = M/G = E_A(t) K(t) \quad (4)$$

gegeben ist, hängt im allgemeinen vom Alter t des Spaltproduktgemisches ab. Die Abhängigkeit des Konzentrationsgrenzwertes K vom Alter des Spaltproduktgemisches ist eine vorgegebene Funktion. Zur Lösung der technischen Aufgabe, d. h. zur Erzielung einer altersunabhängigen Messung der relativen biologischen Gefährdung G , ist es daher erforderlich, die Funktion $E_A(t)$ so zu wählen, daß in einem möglichst großen Altersbereich die Empfindlichkeit E_G innerhalb bestimmter Fehlergrenzen unabhängig vom Alter ist. Gemäß Beziehung (4) muß daher die Forderung

$$E_G = E_A(t) \cdot K(t) = \text{const.} \quad (5)$$

erfüllt werden.

Die Funktion $E_A(t)$ weist gemäß Figur 1, Kurve 2, ein Minimum bei einem Alter von 5 bis 10 Tagen auf. Der Vergleich mit der in Figur 1, Kurve 1, dargestellten Abhängigkeit des Konzentrationsgrenzwertes $K(t)$ zeigt, daß für Alter größer als 7 Tage die Funktion $E_A(t)$ zunimmt, während die Funktion $K(t)$ abnimmt, so daß durch geeignete Wahl der Funktion $E_A(t)$ die Forderung innerhalb bestimmter Fehlergrenzen erfüllbar ist.

Die Abhängigkeit der Aktivitäts-Meßempfindlichkeit $E_A(t)$ vom Alter kann durch folgende Maßnahmen beeinflusst werden: Mit zunehmender Schichtdicke der Meßprobe nimmt der Minimalwert von E_A ab, dadurch verläuft die Funktion $E_A(t)$ links und rechts vom Minimum steiler.

Es wurde gefunden, daß die Schichtdicke der Meßprobe annähernd gleich der Beta-Sättigungsdicke sein muß, um die Forderung (5) zu erfüllen. Diese Sättigungsdicke wird erreicht, wenn die Schichtdicke der Meßprobe etwa gleich der Reichweite der Beta-Teilchen in der Meßprobe ist. In diesem Fall wird die Aktivitäts-Meßempfindlichkeit E_A am größten. Praktisch reichen Schichtdicken von 7 bis 10 mm, entsprechend einer Flächenmasse von 0,7 bis 1 g/cm², aus.

In ähnlicher Weise kann die Funktion $E_A(t)$ durch die Wahl der Diskriminatorenenergie beeinflusst werden. Mit zunehmender Diskriminatorenenergie weist die Funktion $E_A(t)$ einen steileren Verlauf auf.

Der zur Erfüllung der Forderung (5) optimale Wert der Diskriminatorenenergie hängt von der Dicke der empfindlichen Zone des Detektors ab. Prinzipiell ist für die Anwendung des Verfahrens nach der Erfindung jeder für Beta-Strahlung empfindliche Detektor geeignet, der eine energieproportionale Impulsamplitude liefert, z. B. Halbleiter- und Szintillations-Detektoren sowie Proportional-Zählrohre.

Zur Messung geringer Beta-Aktivitäten bei hohem äußeren Gamma-Untergrund sind Sperrschicht-Halbleiterdetektoren besonders geeignet. Die Dicke der empfindlichen Zone ist in diesem Fall durch die Dicke der Sperrschicht bestimmt. Bei Szintillations-Detektoren ist die Dicke der empfindlichen Zone gleich der Dicke des verwendeten Szintillators. Der Energieverlust der Beta-Teilchen im Detektor ist proportional dem Produkt aus der Dicke der empfindlichen Zone d und dem Elektronenbremsvermögen S des Detektormaterials.

Das Bremsvermögen S hängt bekanntlich von der Energie der Beta-Teilchen ab; der kleinste Wert $S_{\min}$ tritt bei Elektronenenergien im Bereich zwischen 1 und 2 MeV auf.

Zur Lösung der technischen Aufgabe, d. h. zur Erfüllung der Forderung (5), muß nach der Erfindung die Diskriminatorenenergie E_D und/oder die Dicke der empfindlichen Zone d des Detektors so gewählt werden, daß E_D gleich dem Produkt aus der Dicke der empfindlichen Zone d und dem Minimalwert des Bremsvermögens $S_{\min}$ ist:

$$E_D = S_{\min} d.$$

Eine für praktische Zwecke ausreichende Genauigkeit der altersunabhängigen Bestimmung der relativen biologischen Gefährdung kann erreicht werden, wenn die Diskriminatorenenergie im Bereich $(0,7 \dots 1,2) S_{\min} d$ liegt.

Zur Bestimmung der relativen biologischen Gefährdung von Spaltproduktgemischen bei hohem äußeren Gamma-Untergrund darf die Dicke der empfindlichen Zone des Detektors zur Erzielung einer hohen Beta-Empfindlichkeit einerseits nicht zu klein sein, andererseits darf sie nicht zu groß gewählt werden, da die Gamma-Empfindlichkeit des Detektors und damit die Störimpulsdichte und der Meßfehler mit wachsender Schichtdicke zunehmen. Es wurde gefunden, daß der optimale Wert der Dicke der empfindlichen Zone im Bereich $(25 \dots 70) \text{ mg/cm}^2$ liegt.

Ausführungsbeispiel

Das Verfahren nach der Erfindung soll anhand der folgenden Diagramme an einem Ausführungsbeispiel erläutert werden. In den zugehörigen Zeichnungen zeigen:

Fig. 1: die Abhängigkeit des Konzentrationswertes K (Kurve 1) und der Aktivitäts-Meßempfindlichkeit E_A (Kurve 2) vom Alter für ein Spaltproduktgemisch von ²³⁵U,

Fig. 2: die Abhängigkeit der Empfindlichkeit E_G für die Messung der relativen biologischen Gefährdung vom Alter.

Für die Messung der in Fig. 1 durch Kurve 2 dargestellten Aktivitäts-Meßempfindlichkeit E_A wurde ein Sperrschicht-Halbleiterdetektor mit einer Dicke der empfindlichen Zone von ca. 0,2 mm, entsprechend einer Flächenmasse von etwa 47 mg/cm^2 , verwendet. Das Produkt aus der Dicke d und dem Minimalwert $S_{\min}$ des Bremsvermögens, der ungefähr bei $2 \text{ KeV cm}^2/\text{mg}$ liegt, beträgt ca. 95 KeV.

Die Messung der Impulsdichte und der Aktivitätsmeßempfindlichkeit erfolgte bei einer Diskriminatorenenergie E_D von 100 KeV. Als Spaltproduktgemisch wurde eine Lösung von ^{235}U verwendet, das mit Reaktorneutronen gespalten wurde. Die Lösung befand sich in einem Probenschälchen, wobei die Füllhöhe entsprechend der Sättigungsdicke 8 mm betrug.

Aus den Werten für $K(t)$ und $E_A(t)$ gemäß Fig. 1, Kurven 1 und 2, wurde nach der Beziehung (5) die Empfindlichkeit E_0 für die Messung der relativen biologischen Gefährdung berechnet. Wie Fig. 2 zeigt, weicht die Empfindlichkeit E_0 für Spaltproduktalter im Bereich von 4 ... 500 Tagen nur um ca. $\pm 25\%$ vom Mittelwert ab. Diese Genauigkeit reicht für praktische Zwecke aus.

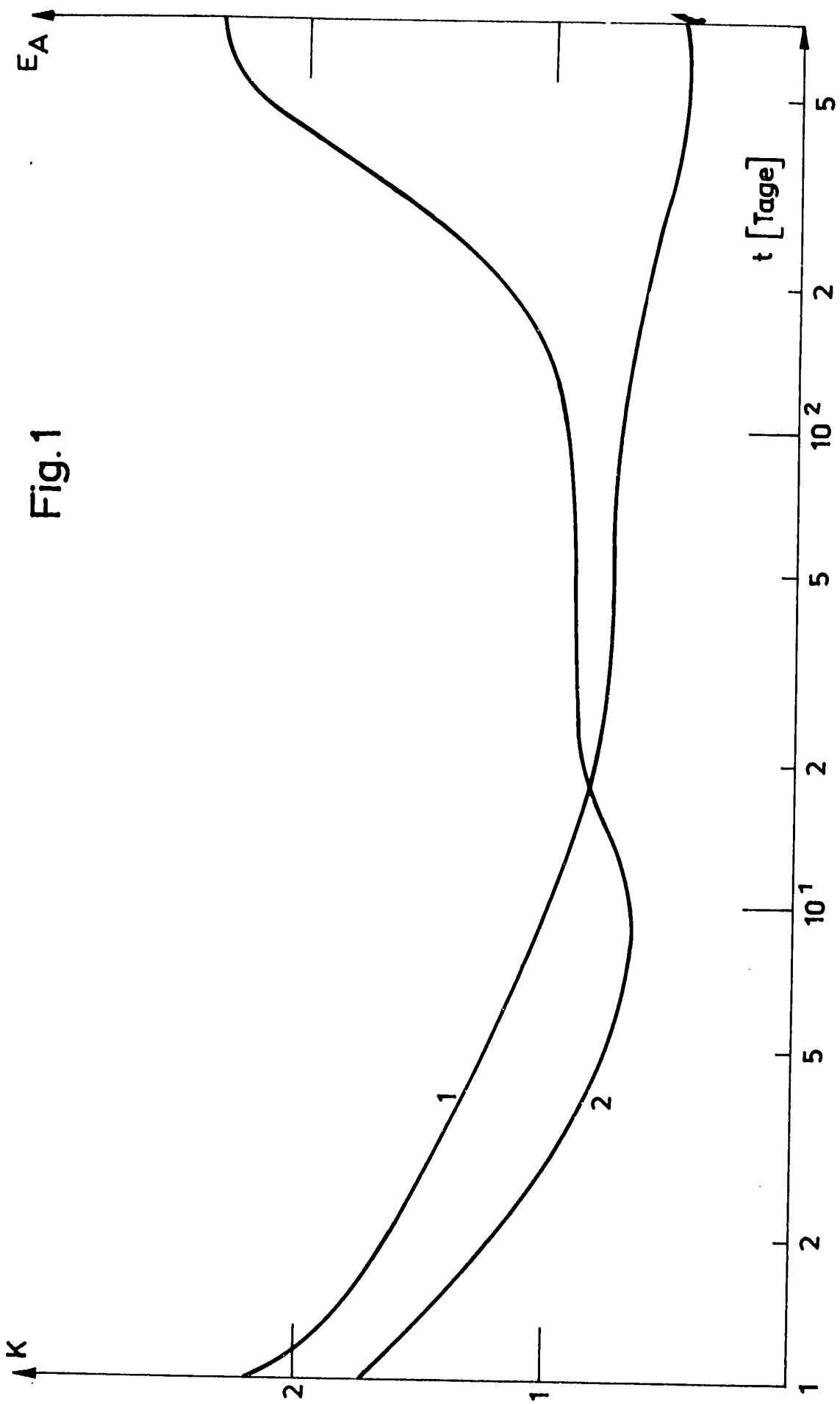


Fig.1

289 440

-5-

Fig. 2

