

51

Int. Cl. 2:

**G 01 T 1/178**

19 **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

**DEUTSCHES**  **PATENTAMT**

11

## **Auslegeschrift 25 00 510**

21

Aktenzeichen: P 25 00 510.1-33

22

Anmeldetag: 8. 1. 75

43

Offenlegungstag: 15. 7. 76

44

Bekanntmachungstag: 18. 5. 78

30

Unionspriorität:

32 33 31 —

54

**Bezeichnung:** Verfahren zur Selektierung der Kernstrahlung bestimmter gasförmiger, in einem Trägergas in ein Zählrohr gebrachter Radionuklide, unter Diskriminierung nach der Impulsform sowie Anwendung dieses Verfahrens und Verwendung eines Durchflußzählrohres hierzu

71

**Anmelder:** Laboratorium Prof. Dr. Rudolf Berthold, 7547 Wildbad

72

**Erfinder:** Berthold, Fritz, Dipl.-Phys. Dr.rer. nat., 7540 Neuenbürg

56

Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:

DE-AS 15 39 962  
The Review of Scientific Instruments, Bd. 27,  
1956, Nr. 5, S. 300-303  
Nuclear Instruments and Methods, Bd. 96,  
1971, Nr. 3, S. 397-403  
Nuclear Instruments and Methods, Bd. 112,  
1973, Nr. 3, S. 399-404

**DE 25 00 510 B 2**

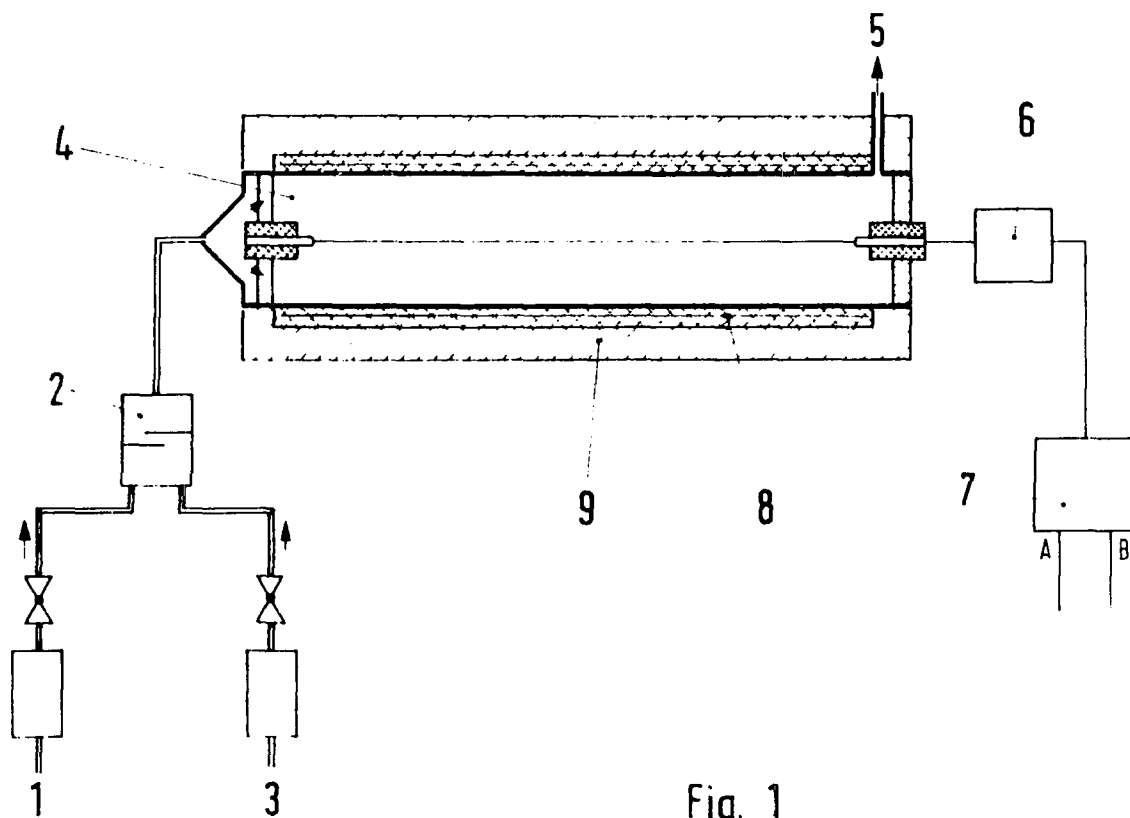


Fig. 1

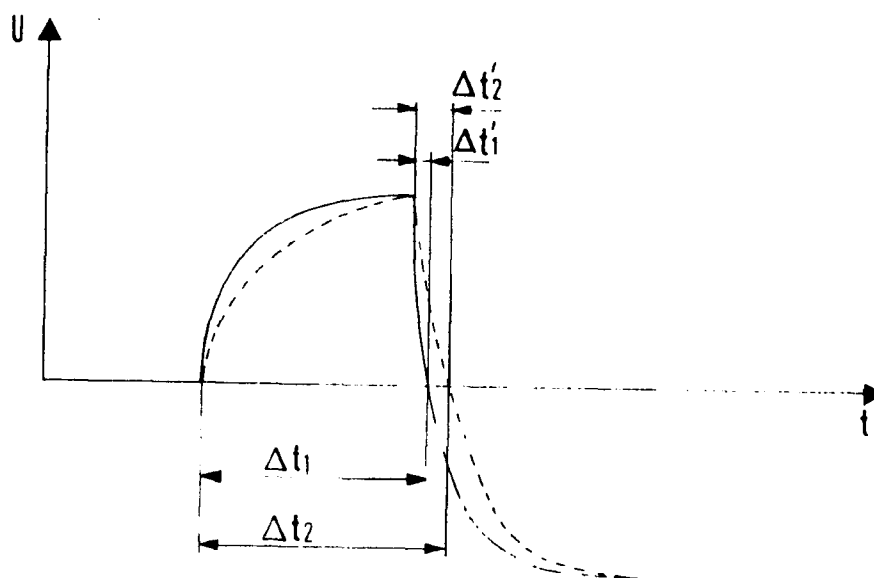


Fig. 2

## Patentansprüche:

1. Verfahren zur Selektierung der Kernstrahlung bestimmter gasförmiger, in einem Trägergas in ein Zählrohr gebrachter Radionuklide, bei dem die Ausgangsimpulse des Zählrohres nach der Impulsform, gegebenenfalls zusätzlich nach der Impulshöhe und/oder der Reichweite, diskriminiert werden, dadurch gekennzeichnet, daß die Radionuklide als Bestandteile eines lufthaltigen Trägergases durch das Zählrohr geleitet werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem aus den Ausgangsimpulsen nach dem Prinzip der Doppel-Delay-Line-Impulsformung ein Nulldurchgangssignal gewonnen wird, dadurch gekennzeichnet, daß die Zeitdifferenz zwischen Reflexionszeitpunkt und Nulldurchgang erfaßt wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsimpulse ausschließlich nach der Impulsform diskriminiert werden.

4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3 mit kanalweiser Zusammenfassung von Ausgangsimpulsen nach ihren Anstiegszeiten, dadurch gekennzeichnet, daß die Differenz der Impulsrate eines Kanals und der mit einem konstanten Faktor multiplizierten Impulsrate eines anderen Kanals gebildet wird.

5. Anwendung des Verfahrens nach einem der Ansprüche 1 bis 4 zur Luftüberwachung auf <sup>125</sup>J.

6. Verwendung eines Durchflußzählrohres mit nur einem Zählraum im Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

Als Radionuklide kommen dabei insbesondere niederenergetische Elektronenstrahler in Frage. Unter Elektronenstrahlern werden nicht nur Beta-Strahler verstanden, sondern auch solche Nuklide, die sekundär zu einer Elektronenemission im Zählrohr führen, z. B. durch Photo-, Compton- oder durch Auger-Effekt.

Bei einem bekannten Verfahren dieser Art («Nuclear Instruments and Methods», Bd. 112, 1973, Nr. 3, S. 399-404) erfolgt die Messung diskontinuierlich, indem in einem Wasserstoff-Trägergas eines Partialdrucks von ca. 670 bis 2000 Pa enthaltenes Tritium mittels einer Töpler-Pumpe in ein Füllzählrohr umgepumpt und Methan als Zählgas auf Atmosphärendruck nachgefüllt wird. Die Diskriminierung erfolgt als Kombination einer Energiediskriminierung mit einer zur Abschwächung des Untergrundes dienenden Impulsanstiegszeitdiskriminierung.

Die beiden im Zählrohr befindlichen Gase H<sub>2</sub> und CH<sub>4</sub> sind dabei beide elektropositive Gase, an denen sich die im Zählrohr entwickelten Elektronen nicht vor Erreichen des Zählrahtes anlagern. Durch Vermeidung elektronegativer Gase, wie Sauerstoff von Luftanteilen, wird somit sichergestellt, daß die hauptsächlich vorgesehene Energiediskriminierung nicht beeinträchtigt wird.

Es ist auch eine Diskriminierung von Ausgangsim-

pulsen von Proportional-Zählrohren nach der Impulsform mit einer elektropositiven 90% Argon/10% Methan-Zählgasfüllung und einer äußeren Quelle von niederenergetischen Röntgenstrahlen bekannt, um in einem Energiespektrum die charakteristische Röntgenlinie aus dem Untergrund besser hervorzuheben («Nuclear Instruments and Methods», Bd. 96, 1971, Nr. 3, S. 397-403).

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, das bekannte Verfahren der eingangs genannten Art zu einem kontinuierlichen Verfahren weiterzuentwickeln.

Diese Aufgabe wird durch die im kennzeichnenden Teil des Anspruchs 1 angegebene Maßnahme gelöst.

Als kontinuierliches Verfahren zur Selektierung insbesondere des besonders bedeutungsvollen Beta-Strahlers Tritium ist es derzeit Standardpraxis, nach der Reichweite der Beta-Strahlung des Tritiums in dem Trägergas zu diskriminieren, welches das Zählrohr erfüllt. Dieses Trägergas setzt sich in der Regel aus einem Luftanteil und einem Zählgaszusatz zusammen. Bei der Diskriminierung nach der Impulsform wird die zeitliche Verlaufsfunktion der Amplitude analysiert, und zwar unabhängig vom Absolutwert der Amplitude bzw. bezogen auf einen normierten Absolutwert der Amplitude. Die Impulsformdiskriminierung ist daher unterschiedlich von der zur Energiediskriminierung wohlbekannten Impulshöhendiskriminierung.

Bei diesem Selektierungsprinzip finden als Detektoren entweder zylinderförmige, konzentrische Zweifachzählrohre oder Dreifach-Sandwich-Großflächenzählrohre (DE-AS 1539962) Verwendung, die von einem Gemisch aus z. B. 30% Meßluft und 70% Zählgas durchströmt werden. Der mittlere Zählraum dient als Meßzähler, der oder die äußeren Zählräume als Schirmzähler. Die Zählräume sind nur durch Kathodengitter voneinander getrennt. Als Maß für die Tritium-Konzentration der Meßluft wird die Rate derjenigen Impulse des Meßzählers genommen, welche nicht gleichzeitig mit einem Impuls im Schirmzähler auftreten. Zur automatischen Unterdrückung der koizidenten Impulse dient eine Antikoinzidenz-Schaltung. Da die Beta-Teilchen von Tritium mittlere Reichweiten von nur 1 bis 2 mm haben, kann nur ein sehr kleiner Bruchteil derselben im Meß- und Schirmzähler gleichzeitig Impulse auslösen. Dagegen werden höherenergetische Beta-Teilchen von Kohlenstoff-14 oder von radioaktiven Edelgasen, durch Gammastrahler aus der Umgebung erzeugte Sekundär-Elektronen, sowie ionisierende Teilchen aus der Höhenstrahlung in der Mehrzahl der Fälle mehrere Zählräume durchdringen und können daher durch die Antikoinzidenz-Schaltung eliminiert werden. Den letzten Entwicklungsstand derartiger Durchflußproportionalzählrohre zur Luftüberwachung stellen Zählrohre mit doppeltem Kathodengitter zwischen Meß- und Schirmzähler dar.

Solche nach dem Prinzip der Reichweitendiskriminierung aufgebauten Zählrohrsysteme zur Unterscheidung von Elektronen-Strahlern verschiedener Energie ergeben jedoch folgende Probleme: Erstens ist der mechanische Aufbau der Zählrohre kompliziert, da sie aus Meßzähler und Schirmzähler bestehen, wobei zumindest der Schirmzähler selbst wiederum ein Vieldrahtzähler ist. Zwischen Meß- und Schirmzähler ist ein Vieldraht-Kathodengitter erforderlich. Zweitens befinden sich nur etwa 25% der Probe im Meßzähler, während der Rest aus konstruk-

tiven Gründen notwendig im Schirmzähler und im Totvolumen verteilt ist. Drittens ist der hohe Zählgasverbrauch von üblicherweise 60 Liter Methan pro Stunde aufwendig, da Meß- und Schirmzähler stets gemeinsam durchströmt werden müssen und die Zählrohre darüber hinaus aufgrund ihrer Konstruktion Toträume aufweisen, die vom Gemisch Zählgas/Luft nur schlecht ausgespült werden.

Es ist auch bekannt («The Review of Scientific Instruments», Bd. 27, 1956, Nr. 5, S. 300–303), im kontinuierlichen Verfahren zur Luftüberwachung auf Tritium ein Methanzählgas mit bis zu 30% Luftanteil im Durchflußbetrieb durch eine Einfachzählrohranordnung zu verwenden. Hierbei handelt es sich jedoch um eine integrale Messung von Tritiumstrahlung, nicht jedoch um eine Diskriminierung nach bestimmten Nukliden. Auch ist die Empfindlichkeit selbst bei optimalen Zählgasen um ein bis zwei Größenordnungen geringer als bei Schirmgitteranordnungen mit Reichweitendiskriminierung unter Antikoinzidenzschaltung. Einfachzählrohre haben nämlich einen zu hohen Nulleffekt, um niederenergetische Elektronenstrahler mit breitem Energiespektrum, wie Tritium, oder auch monochromatische Strahler, wie  $^{125}\text{J}$ , mit ausreichender Empfindlichkeit nachweisen zu können.

Die Erfindung entwickelt gemäß der Aufgabenstellung das gattungsgemäße Verfahren zu einem kontinuierlichen Verfahren weiter und eröffnet damit einen neuen Weg unter den vergleichbaren kontinuierlichen Verfahren. Das erfindungsgemäße Verfahren zeichnet sich dabei durch besondere Einfachheit aus, indem insbesondere elektronegative Gase, insbesondere Sauerstoff aus Luftanteilen oder Wasserdampf, nicht mehr ferngehalten werden müssen. Die Empfindlichkeit ist dabei der bei der Reichweitendiskriminierung mittels Schirmgitteranordnungen vergleichbar. Auch ist das erfindungsgemäße Verfahren mit der Reichweitendiskriminierung hinsichtlich seiner relativen Unempfindlichkeit gegenüber Zählgasverunreinigungen konkurrenzfähig.

Das erfindungsgemäße Verfahren ermöglicht einerseits die Selektierung verschiedener Radionuklide, andererseits aber auch die Unterscheidung eines bestimmten Radionuklids von der Umgebungsstrahlung, um einen besonders niedrigen Nulleffekt zu erzielen.

Das erfindungsgemäße Verfahren läßt sich ebenso wie das Verfahren der Reichweitendiskriminierung vorteilhaft auf die kontinuierliche Luftüberwachung, insbesondere auf Tritium, anwenden. Es hat jedoch auch noch eine ganze Reihe anderer charakteristischer Anwendungsmöglichkeiten, z. B. die Diskriminierung und gegebenenfalls quantitative Messung von  $^{125}\text{J}$ . Die Anwendungsmöglichkeit auf andere niederenergetische Elektronenstrahler, beispielsweise auf Auger-Elektronenemission und Emission nach innerem und äußerem Photoeffekt, wurde bereits oben angesprochen.

Die Erfindung ermöglicht es, ein Durchflußzählrohr mit nur einem Zählraum, also konventionelle Einfach-Durchflußzählrohre im Verfahren gemäß der Erfindung zu verwenden, deren Volumen dann im wesentlichen vollständig als Zählraum genutzt werden kann. Es wird in diesem Falle auch nur so viel Zählgaszusatz benötigt, wie das Zählvolumen des Zählrohrs erfordert. Der spezifische Zählvolumengewinn entspricht etwa dem Faktor 5 gegenüber den bekannten Mehrfach-Zählrohren für die Reichweitendiskri-

minierung. Hierbei läßt sich bereits eine vergleichbare Güte der Selektierung erreichen.

Wegen des Ansprechens der Selektierung beim erfindungsgemäßen Verfahren auf einen von der Reichweite unabhängigen Parameter lassen sich gegebenenfalls die Reichweitendiskriminierung und die Impulsformdiskriminierung parallel miteinander kombinieren, um die Selektierungsgüte noch weiter zu erhöhen. Dies gilt sogar auch in Kombination mit einer Impulshöhendiskriminierung. Eine Kombination mit einer Impulshöhendiskriminierung ist sogar besonders vorteilhaft, um übergroße Impulse und damit eine Übersteuerung der Anlage sicher ausschalten zu können. Eine solche Kombination von zwei oder mehr Verfahren kann auch zur einfachen Selektierung von Interesse sein.

Vorzugsweise werden jedoch die Ausgangsimpulse in neuartiger Weise ausschließlich nach der Impulsform diskriminiert, was eine besonders einfache Auslegung der Anordnung bei befriedigend hoher Empfindlichkeit ergibt.

Es wird schon bei dem gattungsgemäßen bekannten Verfahren die Diskriminierung nach der Impulsform konkret nach der Impulsanstiegszeit vorgenommen. Als Impulsanstiegszeit wird in der Elektronik häufig die Zeit definiert, die zwischen Erreichen von 10 und 90% der maximalen Amplitudenhöhe vergeht. Man kann jedoch auch eine andere typische Zeitspanne zugrundelegen, wie beispielsweise den Zeitraum zwischen 10 und 50%.

Es ist dabei bekannt, Impulsanstiegszeiten nach einem Nulldurchgangsverfahren zu bestimmen. Es ist dabei auch bekannt, aus den Ausgangsimpulsen ein Nulldurchgangssignal nach dem gebräuchlichen Prinzip der Doppel-Delay-Line-Impulsformung zu bilden. In diesem Fall ist bei dem erfindungsgemäßen Verfahren vorzugsweise vorgesehen, daß die Zeitdifferenz zwischen Reflexionszeitpunkt und Nulldurchgang erfaßt wird. Der Reflexionszeitpunkt, d. h. der Ansatzpunkt des Übergangs des deformten Impulses in die umgekehrte Polarität, wird dabei zur Erhöhung der Auflösung als Zeitbezugspunkt zugrundegelegt.

Für die Reichweitendiskriminierung ist eine die diskriminierten Werte gruppenweise zusammenfassende Kanalbildung nach den verschiedenen Zählräumen, nämlich Meß- und Schirmzähler, typisch. Bei der Impulshöhendiskriminierung kann man entsprechend die gemessenen Impulsformen kanalweise zusammenfassen. Dabei kann man die besonders kritischen niederenergetischen Elektronenstrahler, beispielsweise Tritium, in einem durch besonders kurze Anstiegszeiten charakterisierten Kanal erfassen.

Dabei kann man ebenso wie bei der Reichweitendiskriminierung auch bei der Diskriminierung nach der Impulsform die kanalweise selektierten Impulse auch quantitativ zur Bestimmung der Konzentration der spezifischen Radionuklide messen. Entsprechendes gilt für die Messung nach zwei verschiedenen Diskriminierungsverfahren gewonnener Impulse parallel zueinander, die dann automatisch verknüpft werden können.

Bei der Reichweitendiskriminierung ist es bereits bekannt, solche Fehlimpulse höherenergetischer Teilchen, deren Kernstrahlung allein im Meßzähler, beispielsweise annähernd parallel mit den Schirmgittern verläuft, dadurch auszuschalten, daß ein bestimmter Anteil der in Koinzidenz zwischen Meß- und Schirmzähler gemessenen Impulse mit einem Faktor verse-

hen und vom unkorrigierten, durch Antikoinzidenz zwischen Meßzähler und Schirmzählern gewonnenen Meßergebnis subtrahiert wird. Wenn man nun, wie auch bei dem bekannten gattungsgemäßen Verfahren vorgesehen ist, die Ausgangsimpulse nach ihren Anstiegszeiten kanalweise zusammenfaßt, wird entsprechend vorzugsweise die Differenz der Impulsrate eines Kanals und der mit einem konstanten Faktor multiplizierten Impulsrate eines anderen Kanals gebildet.

Die Erfindung wird im folgenden anhand schematischer Zeichnungen an einem Ausführungsbeispiel, mit einigen erörterten Varianten, noch mehr im einzelnen erläutert. Es zeigt

Fig. 1 eine Prinzipmeßanordnung zur Durchführung des Verfahrens nach der Erfindung mit teilweise längsgeschnittenem Durchflußzählrohr und

Fig. 2 ein Diagramm, welches veranschaulicht, wie in besonders vorteilhafter Weise ein Maß für die Anstiegszeit des Impulses nach dem Verfahren der Doppel-Delay-Line-Impulsformung gewonnen werden kann.

An einer Eingangsöffnung 1 angesaugte Luft wird in einer Mischkammer 2 mit durch eine Anschlußleitung 3 zugeführtem Zählgas gemischt und dann in ein zylindrisches, nur einen Zählraum aufweisendes Durchflußzählrohr 4 konventioneller Bauart und Spannungsversorgung geführt. Nach der Messung im Durchflußzählrohr 4 verläßt das Zählgas/Luft-Gemisch das Durchflußzählrohr durch einen Auslaß 5. Das Durchflußzählrohr 4 ist mit einer Heizmanschette 8 umgeben – was bei zylindrischer Zählrohr-Konstruktion besonders leicht durchzuführen ist – damit durch Erwärmung Adsorptionen an der Oberfläche vermieden werden können. Außerdem ist das Zählrohr von einer Bleiabschirmung 9 umgeben.

Die an dem zentral im Durchflußzählrohr verlaufenden Zählrohr abgenommenen Ausgangsimpulse werden zunächst in einem schnellen Vorverstärker 6 (Anstiegszeit  $\leq 20$  ns) verstärkt und anschließend einem Impulsformdiskriminator 7 zugeleitet.

Der Impulsformdiskriminator 7 ist hier folgendermaßen aufgebaut:

Durch Doppel-Delay-Line-Differenzierung bzw. -Impulsformung entsteht die in Fig. 2 ersichtliche Impulsform. In Fig. 2 ist der Impuls als Spannung  $U$  in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  aufgetragen. Der Nulldurchgang des geformten Impulses erfolgt bei größerer Anstiegszeit später, und zwar unabhängig von der Amplitude. Durch den Nulldurchgangsdiskriminator wird ein elektrisches Signal bei Durchgang des Impulses durch die Null-Linie erzeugt.

Man kann nun eine für die Anstiegszeit charakteristische Zeit nach folgenden zwei Methoden gewinnen:

1. Man mißt die Zeitdifferenz  $\Delta t$  zwischen Beginn des Impulses und Nulldurchgang; zur Veranschaulichung sind in Fig. 2 zwei derartige charakteristische Zeitdifferenzen  $\Delta t_1$  und  $\Delta t_2$  entsprechend der ausgezogenen und der gestrichelten Kurve (längere Anstiegszeit) eingezeichnet. Anschließend werden die Impulse entsprechend den gewünschten  $\Delta t$ -Bereichen kanalmäßig sortiert. So kann z. B. ein  $\Delta t$ -Kanal  $A$  von 510 bis 530 ns den niederenergetischen Elektronenstrahlern entsprechen, dagegen ein  $\Delta t$ -Kanal  $B$  von 540 bis 580 ns der höherenergetischen Störstrahlung. Die entsprechenden Kanalausgänge

sind auch in Fig. 1 bei dem Impulsformdiskriminator 7 mit  $A$  und  $B$  bezeichnet.

2. Vorzugsweise wird anstelle von  $\Delta t$  die mit  $\Delta t'$  bezeichnete Zeitdifferenz zwischen dem Beginn der Reflexion nach der Doppel-Delay-Line-Impulsformung und dem Nulldurchgang gemessen. Dabei wirkt sich vorteilhaft aus, daß die relativen Zeitdifferenzen für verschiedene Impulsformen bzw. Anstiegszeiten wesentlich größer werden. So würde der  $\Delta t'$ -Kanal  $A'$  10–30 ns und der  $\Delta t'$ -Kanal  $B'$  40–80 ns betragen, wenn man zur Bildung von  $\Delta t'_1$  und  $\Delta t'_2$ , welche zu  $\Delta t_1$  und  $\Delta t_2$  korrespondieren, dasselbe in Fig. 2 gezeigte Impulsdiagramm zugrunde legt. Bei diesem Verfahren würden Schwankungen der Laufzeit der Verzögerungsleitung, welche zur Impulsformung benutzt wird, unwirksam.

Zweckmäßig wird ein bestimmter Teil der an  $B$  auftretenden Ausgangs-Impulsrate von der bei  $A$  auftretenden abgezogen. Dies dient zur besseren Kompensation bei schwankender höherenergetischer Störstrahlung, die im Kanal  $B$  gemessen wird und von der stets ein kleiner Anteil auch im Kanal  $A$  zusätzliche Impulse hervorruft.

Man benutzt hierzu entweder in bekannter, nicht dargestellter Weise ein Differenz-Ratemeter oder einen Differenzzähler, wobei bei der Subtraktion jeweils der Subtrahent mit einem konstanten Faktor  $K$  multipliziert ist.

Bei einem Zählrohrvolumen von 0,6 Liter läßt sich mit dieser Einrichtung der Nulleffekt für Tritium um mehr als einen Faktor 20 reduzieren. In gleicher Größenordnung liegt die Reduktion der Einstreurate durch höherenergetische Beta-Strahler. Dies entspricht etwa den durch Reichweitendiskriminierung erzielbaren Daten. Bei der verwendeten Impulsformdiskriminierung kann jedoch das Zählrohr in normaler zylindrischer Konstruktion ausgeführt sein. Außerdem wird der Verbrauch an Proben- sowie Zählgas um etwa einen Faktor 5 reduziert.

Die Zählrohrkonstruktion ist nicht auf die zylindrische Bauart beschränkt, sondern es kann beispielsweise auch ein sog. Großflächendurchflußzählrohr mit mehreren parallel gespannten Zählrohren verwendet werden.

Noch größere Selektivität der Messung für die gesuchte Strahlungsart sowie eine weitere Reduzierung der Nulleffekte erhält man, wenn man die Impulsformdiskriminierung mit der Impulshöhen- und/oder der Reichweitendiskriminierung kombiniert. Anhand von Fig. 1 und 2 bedeutet dies bei dem Beispiel der Kombination mit Impulshöhen- und Reichweitendiskriminierung, daß nach dem Vorverstärker zusätzlich und parallel zum Impulsformdiskriminator 7 ein Verstärker mit einem Einkanaldiskriminator den gewünschten Impulshöhenbereich ausblendet, und daß die Ausgangsimpulse des Einkanaldiskriminators mit den Ausgangsimpulsen des Bereiches  $A$  oder  $B$  des Impulsformdiskriminators in Koinzidenz gemessen werden. Entsprechend ist die Verknüpfung der Impulsformdiskriminierung mit der Reichweitendiskriminierung vorzunehmen, d. h. die antikoinzidente Impulsrate des Meßzählers eines dann nötigen Mehrfachzählrohres wird mit dem Ausgang  $A$  oder  $B$  des Impulsformdiskriminators 7 in Koinzidenz gemessen.