

NOTIZEN

Bestimmung des Kr⁸⁵-Gehaltes der Luft

Von O. GRIESER und A. SITTKUS

Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg
Außenstelle: Freiburg-Schauinsland

(Z. Naturforsch. 16 a, 620—621 [1961]; eingegangen am 2. Juni 1961)

During 1959 and 1960 seven samples of atmospheric krypton have been examined for their content of radioactivity. The Kr⁸⁵ content increased from the middle of 1959 to the end of 1960 from 3.3 to $4.5 \cdot 10^{-12}$ Curie/cm³ Kr. This corresponds to a Kr⁸⁵ activity of the atmosphere of 3.8 and $5.1 \cdot 10^{-18}$ Curie/cm³ air respectively. These data are discussed in connection with the production of the isotope by nuclear fission. It is shown that the main part presumably originates from reactor stations.

Bei der Spaltung schwerer Atomkerne entsteht das langlebige radioaktive Isotop Kr⁸⁵. Die bei Kernexplosionen gebildeten Mengen gelangen vollständig in die Luft. Auch bei der Aufbereitung von Reaktorfüllungen wird wohl nur ein Teil zur weiteren Verwendung aufgefangen, während der Rest in die Atmosphäre entweicht. Das Ziel der Untersuchung war, den derzeitigen Kr⁸⁵-Gehalt der Luft zu messen.

Bei den Messungen wurde Krypton der Gesellschaft für Linde's Eismaschinen* verwendet. Nach der Firmenanalyse enthält das gelieferte Gas mehr als 99,7% Krypton, weniger als 0,1% Xenon, max. 0,2% Stickstoff und weniger als 0,01% Sauerstoff. Das Gas wurde zur Bestimmung der β -Aktivität des Kr⁸⁵ ohne weitere Reinigung in Zählrohren mit bis zu 700 Torr Druck benutzt, wobei jeder Füllung 25 Torr Methan der Badischen Anilin- und Sodaefabriken (99,3% Methan; 0,4% Stickstoff; 0,2% Äthylen und 0,1% Kohlenoxyd) zugesetzt wurden. Da zwischen der Gewinnung der Rohedelgase und der Verarbeitung der einzelnen Chargen auf Krypton und Xenon eine Zeitspanne von einigen Monaten liegt und außerdem zu erwarten ist, daß mit abgetrennte Radiumemanation bei der Xenonfraktion verbleibt, ist die Gefahr einer Verfälschung der Messungen durch die Emanation und ihre Folgeprodukte (α -, β - und γ -Strahler) gering. Durch Betrieb der Zählrohre im Proportionalbereich und passende Wahl des Arbeitspunktes wurde bei den Messungen kontrolliert, daß die Zählrohrfüllung keine α -Strahler und damit keine Emanationsanteile enthielt, deren Aktivität mehr als 0,1% der Kryptonaktivität betrug. Die verwendeten normal gebauten Proportionalzählrohre¹ wurden im Bereich kleiner Gasverstärkung mit hoher Nachverstärkung betrieben. Dabei ergaben sich bei 0,08 mV Eingangsempfindlichkeit im Fülldruckbereich von 400 bis 700

Torr Zählrohrkennlinien mit Plateaulängen von 200 bis 300 Volt und Plateausteigungen um 1% pro 100 Volt. Die Bestimmung des effektiven Zählvolumens der Proportionalzählrohre (Messung der empfindlichen Länge und des effektiven Zählrohrradius) erfolgte aus Messungen mit 2 Zählrohrsätzen von 4,2 und 3,0 cm Innendurchmesser und 30, 45 und 60 cm geometrischer Länge nach ENGELKEMEIR und LIBBY². Zur Messung der Kryptonaktivität wurden die Rohre allseitig mit 10 cm Blei abgeschirmt. Da zur Bestimmung des Nulleffektes kein Kr⁸⁵-freies Kryptongas zur Verfügung stand, wurde der Nulleffekt mit verschiedenen Zählrohrfüllungen (Methan und Argon-Methan) bei verschiedenen Fülldrucken gemessen, wobei sich ergab, daß die Absorption der Gasfüllung innerhalb der Meßfehler keinen Beitrag zum Nulleffekt liefert. Weiter wurde mit Zusatzstrahlung von Radium- und Kobalt-60-Präparaten festgestellt, daß bei den gewählten Arbeitsbedingungen Nachentladungen, verursacht durch angeregte metastabile Kryptonatome, unwesentlich sind.

Das Ergebnis von 7 Aktivitätsbestimmungen ist in Tab. 1 zusammengestellt. Die Genauigkeit der Kryptonaktivitätsbestimmung (Spalte 4) ist im wesentlichen gegeben durch die statistische Genauigkeit der Zählrohrmessung (2%), die Unsicherheit der Bestimmung des effektiven Zählrohrvolumens (1,5%) und den Fehler der Reduktion der Gasfüllung auf Normalbedingungen (1,2%). Die Einzelfehler setzen sich zum mittleren Fehler von 3% zusammen. Bei der Umrechnung der im Reinkrypton bestimmten Aktivität auf die Kr⁸⁵-Aktivität in der Luft wurde der Kryptongehalt der Luft zu $1,14 \cdot 10^{-4}$ Vol.-% angenommen³. Dann ergeben sich die Werte der Spalte 5. Zwischen der 1. und 2. untersuchten Probe (die Proben sind etwa Mitte 1959 und Mitte

Proben-Nr.	Tag der Probenahme	Lieferdatum	Aktivität in Curie/cm ³ Kr Einheit 10^{-12}	Aktivität in Curie/cm ³ Luft Einheit 10^{-18}
1		11. 12. 1959	3,3	3,8
2		12. 9. 1960	4,3	4,9
3		12. 9. 1960	4,1	4,7
4		18. 10. 1960	4,1	4,7
5	15. 5. 1960	12. 11. 1960	4,1	4,7
6	12. 7. 1960	26. 1. 1960	4,2	4,7
7	9. 11. 1960	27. 3. 1960	4,5	5,1

Tab. 1. Messungen der Kr⁸⁵-Aktivität in Kryptonproben, die zu verschiedenen Zeiten in Westdeutschland gewonnen wurden.

* Wir danken für die kostenlose Überlassung der Proben.

¹ E. FÜNFER u. H. NEUERT, Zählrohre und Szintillationszähler, 2. Aufl., Verlag G. Braun, Karlsruhe 1959.

² A. G. ENGELKEMEIR u. W. F. LIBBY, Rev. Sci. Instrum. 21, 550 [1950].

³ E. GLAUKAUF, Compendium of Meteorology, Amer. Meteor. Soc., Boston, Mass. 1951, S. 3.



1960 gewonnen) ist eine deutliche Erhöhung der Kr^{85} -Aktivität eingetreten. Eine kleinere Zunahme erfolgte zwischen dem 12. 7. und dem 9. 11. 1960. Über dem Festland beträgt der mittlere Radiumemanationsgehalt etwa 10^{-16} Curie/cm³ Luft⁴, verglichen mit diesem Gehalt ist die derzeitige Kr^{85} -Aktivität gering. Das Kr^{85} trägt nur unwesentlich zu der durch natürliche radioaktive Isotope und kosmische Ultrastrahlung verursachten Umgebungsstrahlung bei.

Aus der Ende 1960 vorhandenen Kr^{85} -Aktivität ($5,1 \cdot 10^{-18}$ C/cm³ Luft) errechnet sich die Zahl der Kr^{85} -Zerfälle zu $18,9 \cdot 10^{-8}$ Zerfälle/sec cm³ Luft. Da die Halbwertszeit 10,6 Jahre beträgt, folgt, daß zu diesem Zeitpunkt 92 Kr^{85} -Atome/cm³ Luft ($72 \cdot 10^3$ Kr^{85} -Atome/g Luft) vorhanden waren. Mit der Annahme, daß das Kr^{85} zum Zeitpunkt der Probennahme gleichmäßig in der Erdatmosphäre verteilt war, ergibt sich für die gesamte Lufthülle ($5,3 \cdot 10^{21}$ g mit $p = 1,033 \cdot 10^3$ g pro cm³ Luftdruck und $F = 5,1 \cdot 10^{18}$ cm² Oberfläche) ein Kr^{85} -Gehalt von $3,8 \cdot 10^{26}$ Atomen (etwa 53 kg Kr^{85} , etwa 20 MC Kr^{85}).

Die Kr^{85} -Ausbeute bei der Kernspaltung schwankt zwischen 1 und 0,2%, je nachdem welches Isotop gespalten wird und welche Energie die zur Spaltung verwendeten Neutronen haben⁵. Als plausibler Wert für die mittlere Ausbeute beim Betrieb von Reaktoren und bei atomtechnischen Versuchen wurde die Ausbeute zu 0,5% angenommen. Dann ergibt sich aus der Ende 1960 vorhandenen Kr^{85} -Aktivität, daß zu ihrer Erzeugung die Spaltung von $7,6 \cdot 10^{28}$ Atomen notwendig war. Das entspricht einer Menge von ungefähr $30 \cdot 10^6$ g (30 to) spaltbares Material, das durch Spaltung verbraucht wurde. Wegen der zur Zeit nicht kontrollierbaren Annahmen über die Verteilung in der Atmosphäre und

die Spaltausbeute ist die durchgeführte Abschätzung unsicher. Da sie nur ausgeht von der in Westdeutschland Ende 1960 vorhandenen Luftaktivität des Kr^{85} und nicht berücksichtigt, daß ein Teil durch radioaktiven Zerfall seit der Entstehung verschwunden ist, ein Teil des in Reaktoren erzeugten Gases sicher nicht in die Atmosphäre gelangt ist und eventuell eine erhebliche Menge in den Weltmeeren absorbiert wurde, so scheint die Annahme gerechtfertigt, daß die tatsächlich umgesetzte Spaltmaterialmenge größer ist, als hier abgeschätzt wurde.

Bei nuklearen Bombentests wurden bisher Energien entsprechend etwa $6600 \cdot 10^6$ kWh durch reine Spaltung (A-Bomben) und $190\,000 \cdot 10^6$ kWh durch kombinierte Spaltung und Fusion (H-Bomben) erzeugt⁶. Bei einem Verhältnis 1 : 7 für Spalt- und Fusionsenergie ergibt sich, daß bei Kernexplosionen durch Spaltung allein (weit überwiegend bis Ende 1958) ein Energiebetrag von ungefähr 10^{11} kWh freigesetzt wurde. Dies bedeutet die Spaltung von rund 4 to Material (1 kg U^{235} liefert bei der Spaltung $23 \cdot 10^6$ kWh). Der geschätzte Wert ist wegen mangelnder Zuverlässigkeit der zur Verfügung stehenden Angaben sehr unsicher. Der Vergleich mit der aus den Kr^{85} -Bestimmungen ermittelten verbrauchten Spaltmaterialmenge läßt aber doch den Schluß zu, daß der Kr^{85} -Gehalt der Atmosphäre zu einem wesentlichen Teil aus Reaktoranlagen und Verarbeitungsbetrieben in die Luft gelangte.

Die Arbeit wurde aus Mitteln der Schutzkommision der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert. Wir danken Herrn Professor W. GENTNER und Herrn Professor Th. SCHMIDT für die ständige Unterstützung bei der Untersuchung.

⁴ L. LEHMANN u. A. SITTKUS, Naturwiss. **46**, 9 [1959].

⁵ SEYMOUR KATCOFF, Nucleonics **18** (Nr. 11), 201 [1960].

⁶ J. W. GOETHE, Liste über 481 Meldungen über Atomexplo-

sionen von 1945 bis 1958. Dr. J. W. GOETHE u. R. GOETHE, Frankfurt am Main.

⁷ B. RAJEWSKY, Strahlendosis und Strahlenwirkung, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1956.

Winkelverteilung der Wasserstoff- und Argoniumen aus einer Hochfrequenzionenquelle

Von H. LÖB und S. PEYERIMHOFF

Physikalisches Institut der Universität Gießen
(Z. Naturforsch. **16 a**, 621–624 [1961]; eingegangen am 5. Juni 1961)

Bei früheren Untersuchungen¹ wurde festgestellt, daß die Ionen aus einer HF-Ionenquelle unter einem größeren Winkel austreten als bei den meisten anderen Ionenquellen. Diese Tatsache ist für die Konstruktion von Nachbeschleunigungslinsen wichtig, weil nur solche Ionen fokussiert werden, die durch den halben Öffnungswinkel der ersten Nachbeschleunigungslinse durchgetreten. Nach Messungen von REIFENSCHWEILER² beträgt

der halbe Öffnungswinkel des Ionenbündels aus einer HF-Ionenquelle 10 bis 20 Grad; der Austrittswinkel für Atomionen und Molekülionen von Wasserstoff ist etwas verschieden³. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die Winkelverteilung der Ionen, insbesondere in Abhängigkeit von den Betriebsbedingungen und der Geometrie, genauer zu untersuchen. Bei der Erklärung der Ergebnisse werden – im Gegensatz zu früheren Untersuchungen – auch Ionen berücksichtigt, die im Gebiet zwischen Plasmagrenze und Extraktionskathode durch Umladung entstehen.

Die Messungen wurden an Argon- bzw. Wasserstoffionen durchgeführt, da die Energieverteilung und damit der Entstehungsort dieser Ionen aus früheren Untersuchungen genau bekannt ist⁴. Die von der Plasmagrenze kommenden Ionen werden als Plasmaionen be-

¹ D. KAMKE, Handb. d. Phys. XXXIII, Springer-Verlag, Berlin 1956.

² O. REIFENSCHWEILER, Ann. Phys., Lpz. **14**, 33 [1954].

³ O. REIFENSCHWEILER, Proc. 4th Int. Conf. on Ionization Phenomena in Gases, II E 541, 1960.

⁴ H. LÖB, Z. Naturforsch. **16 a**, 67 [1961].