

TECHNISCHE UNIVERSITÄT DRESDEN

Institut für Energietechnik Ausbildungskernreaktor



REAKTORPRAKTIKUM

VERSUCH

"Identifikation unbekannter Radionuklide" (γ - Spektrometrie)



Praktikumsanleitung Versuch "Identifikation unbekannter Radionuklide (γ-Spektrometrie)"

Gliederung:

- 1..... Theoretische Grundlagen
- 1.1. . . Einleitung
- 1.2. . . Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie
- 1.3. . . Messung der Strahlungsenergie
- 1.3.1. . Szintillationsdetektoren
- 1.3.2. . Halbleiterdetektoren
- 1.4. . . Bildschirmdarstellung des Vielkanalanalysators
- 2.... Aufgabenstellungen
- 2.1. . . Vergleich der Eigenschaften eines NaJ(Tl)-Szintillators und eines Ge(Li)-Halbleiterdetektors
- 2.2. . . Energiekalibrierung des Spektrometers
- 2.3. . . Untersuchung der zeitlichen Abhängigkeit der Aktivitäten in einem Isotopengemisch
- 2.4. . . Identifizierung eines unbekannten Radionuklids bzw. Radionuklidgemisches
- 2.5. . . Bestimmung der absoluten Effektivität des Ge(Li)-Halbleiterdetektors und Aktivitätsmessung (Bestandteil des erweiterten Experiments)
- 3.... Bedienung des Gammaspektrometers
- 3.1. . . Wesentliche Funktionstasten
- 3.2. . . Berechnung der Peakfläche von Fotopeaks

Stand: 12.05.2011

VERSUCHSZIEL:

Gammaspektrometrie ist eines der grundlegenden Messverfahren der Kerntechnik zur eindeutigen Identifikation radioaktiver Nuklide. Der Versuch soll mit den Grundlagen der Gammaspektrometrie vertraut machen, Unterschiede zwischen den wesentlichen Gammadetektoren verdeutlichen und zeigen, wie mittels Gammaspektrometrie Radionuklide eindeutig identifiziert und die Zusammensetzung von Radionuklidgemischen bestimmt werden können bzw. wie mit einem absolut kalibrierten Gammaspektrometer darüber hinaus die Aktivität eines Radionuklids gemessen werden kann.

1. Theoretische Grundlagen

1.1. Einleitung

In der Strahlungsmesstechnik besteht eine grundsätzliche Aufgabe darin, unbekannte radioaktive Nuklide, die allein oder als Probengemische vorliegen, zu identifizieren und bzgl. ihrer Aktivität oder ihres Anteils im Gemisch zu quantifizieren. Gegenwärtig sind etwa 270 stabile und über 2000 instabile (radioaktive) Nuklide bekannt.

Unter Radioaktivität versteht man die spontane Umwandlung instabiler Atomkerne in stabile unter Abgabe von Energie. Dabei erfolgt eine Änderung der Kernkonfiguration. Die verschiedenen Kernumwandlungsprozesse sind mit der Aussendung ionisierender Strahlung verbunden.

Ein Radionuklid ist bzgl. seiner Radioaktivität durch drei Eigenschaften charakterisiert, die prinzipiell zur Identifizierung benutzt werden können:

- der Art der emittierten Strahlung,
- der Energie der emittierten Strahlung und
- der Halbwertszeit.

Die emittierten Strahlenarten sind:

- Alphastrahlung,
- positive Betastrahlung (d.h. Positronen),
- negative Betastrahlung (d.h. Elektronen) oder/und
- Gammastrahlung.

Da hiermit zur Identifikation bei der existierenden Vielzahl von Radionukliden nur 4 Unterscheidungsgrößen zur Verfügung stehen, bleiben die Möglichkeiten einer eindeutigen Zuordnung sehr beschränkt. Häufig treten die Strahlungsarten nicht einzeln, sondern in Kombinationen auf. Besonders Gammastrahlung finden wir aber fast immer als Begleitung anderer Strahlenarten.

Die Messung der <u>Halbwertszeit</u> bietet weitergehende Möglichkeiten der Identifizierung von Radionukliden (vgl. Versuch "Bildung und Zerfall radioaktiver Isotope"). Trotz des breiten Spektrums von Halbwertszeiten zwischen Sekundenbruchteilen und Zehnerpotenzen von Jahren existieren jedoch Nuklide mit ähnlichen Halbwertszeiten, die im Rahmen der Messfehler nicht mehr unterschieden werden können. Noch komplizierter sind die Verhältnisse bei Radionuklidgemischen, wo eine Überlagerung verschiedener Halbwertszeiten auftritt und eine Separierung der einzelnen Anteile höchstens im Ausnahmefall (z.B. bei wenigen Nukliden mit sich deutlich unterscheidenden Halbwertszeiten) möglich ist.

Die Messung der <u>Energie der emittierten Strahlung</u> bietet hingegen die Möglichkeit einer eindeutigen Zuordnung. Bei einer radioaktiven Umwandlung kommt der instabile Kern mit seinem Energieüberschuss durch Teilchen- oder Quantenemission in das Energieniveau des Folgekerns oder evtl. zunächst auf ein anderes angeregtes Niveau dieses Kerns und erst danach unter Aussendung weiterer Strahlung in den Grundzustand. Die Höhen dieser möglichen Energieniveaus liegen für jeden Kern fest, d.h. beim Übergang werden stets diskrete, konstante Energiemengen frei, die auf die Strahlung übertragen werden. Ein Beispiel für ein solches Zerfallsschema ist in Abb. 1 für Co-60 dargestellt. Die waagerechten Linien charakterisieren die Energieniveaus des Atomkerns, die Übergangslinien dazwischen die Art des radioaktiven



Abb. 1, Zerfallsschema von Co-60

Zerfalls und die Energie der Strahlung. Waagerecht versetzte Linien der Energieniveaus kennzeichnen dabei Ladungsänderungen im Kern, d.h. die Emission geladener Teilchen. Bei senkrecht übereinanderliegenden Energieniveaus werden y-Quanten (ohne Ladung) abgegeben. Da das Zerfallsschema eines jeden Radionuklids individuelle Merkmale aufweist, bietet sich hier die Möglichkeit einer eindeutigen Identifikation durch Messung der Energie der emittierten Strahlung. Da insbesondere praktisch jeder radioaktive Zerfall von y-Strahlung begleitet ist und somit die Spektrometrie dieser Strahlenart bei nahezu allen Nukliden möglich ist, kommt der Methode der y-Spektrometrie bei der Identifikation von Radionukliden eine universelle Bedeutung zu.

1.2. Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie

Die Gammastrahlung ist ihrer physikalischen Natur nach elektromagnetische Strahlung, bestehend aus Gammaquanten (Photonen). Gammaquanten tragen keine elektrische Ladung. Deshalb unterscheidet sich die Wechselwirkung von Gammastrahlung mit Materie von der geladener Teilchen. Die Energieabsorption der Gammaquanten erfolgt durch Foto-, Comptonund Paarbildungseffekt. Durch diese Effekte wird die Bildung von Sekundärelektronen hervorgerufen, die dann mittels einer geeigneten Messanordnung nachgewiesen werden.

Das γ -Energiespektrum ist ein Linienspektrum. Allerdings werden mit γ -Detektoren nicht nur diese reinen Linien gemessen. Das liegt an den unterschiedlichen Reaktionen der γ -Strahlung auf Grund der genannten Wechselwirkungseffekte im Detektor. Eine typische gemessene



Abb. 2, Gemessene Impulshöhenverteilung für das Radionuklid Cs-137

Impulshöhenverteilung für eine einzige γ -Linie (vom Radionuklid Cs-137) ist in Abb. 2 dar gestellt. Bei der vollen Energie E_{γ} entsteht der **Fotopeak**. Hierbei wird das γ -Quant von einem Hüllenelektron des Detektormaterials vollständig absorbiert. Das Quant hört damit auf zu bestehen, und es bildet sich ein Elektron, dessen Energie gleich der Quantenenergie (vermindert um die geringe Ionisierungsenergie des Elektrons) ist.

Wird das Quant nicht absorbiert, tritt nur ein elastischer Stoß mit dem Hüllenelektron auf (**COMPTON-Effekt**). Das Quant überträgt dann nur einen Teil seiner Energie an das Elektron, wird gestreut und verlässt mit verminderter Energie z.B. den Detektor. Die gemessene Impulshöhe entspricht der Energie des angestoßenen Compton-Elektrons. Nach dem Impuls- und Energiesatz beträgt die maximal an das Elektron übertragbare Energie (bei einem Streuwinkel von 180°)

$$E_c = \frac{E_{\gamma}}{\left(1 + \frac{m_0 \cdot c^2}{2 \cdot E_{\gamma}}\right)} \tag{1}$$

(mit $m_0 \cdot c^2 = 511$ keV, Ruhenergie des Elektrons). Dieser Maximalenergie des Comptoneffektes entspricht die **Comptonkante** im Impulshöhenspektrum. Zu niedrigeren Energien schließt sich das Plateau des **Compton-Kontinuums** an, entsprechend der Energieübertragung Quant/Elektron unter anderen Streuwinkeln als 180°.

Bei Quantenenergien von einigen MeV wird die Vollenergiespitze durch den Effekt der **Paarbildung** verursacht. Überschreitet die Photonenenergie die doppelte Ruheenergie eines Elektrons (E > 1,02 MeV), dann kann sich im Coulombfeld des Atomkerns ein Photon in ein Elektron-Positron-Paar umwandeln. Die überschüssige Energie verteilt sich annähernd symmetrisch als kinetische Energie auf das Elektron und Positron. Der Paarbildung folgt stets die Zerstrahlung des erzeugten Positrons, d.h. die Positronen vereinigen sich nach ihrer vollständigen Abbremsung mit Elektronen, wobei Gammastrahlung (Vernichtungsstrahlung) emittiert wird.

Das Verhältnis des Auftretens der einzelnen Effekte zueinander ist von der Quantenenergie und vom Material des Strahlungsdetektors abhängig (vgl. Abb. 3). Der Fotoeffekt ist der dominie-

rende Wechselwirkungsprozess niederenergetischer Photonenstrahlung mit Atomen hoher Ordnungszahl. Der Comptoneffekt tritt besonders bei mittleren Quantenenergien, etwa im Energiebereich 0,4 bis 4 MeV, stark in Erscheinung.

Primäre Quanten können den Detektor auch ohne Wechselwirkung durchdringen und nach der Rückstreuung an Stoffen der Umgebung mit stark verminderter Energie wieder in den Detektor eintreten. Der Absorption rückgestreuter Quanten entspricht im Energiespektrum ein **Rück**streumaximum bei

$$E_R = \frac{E_{\gamma}}{\left(1 + \frac{2 \cdot E_{\gamma}}{m_0 \cdot c^2}\right)}$$
(2)

das sich dem Compton-Kontinuum überlagert.

Treten beim γ -Zerfall eines Nuklides mehrere γ -Energien auf oder liegt ein Gemisch aus mehreren Nukliden vor, kommt es zu einer Überlagerung der diskutierten Spektren. Die Identifikation kann dann beträchtlich erschwert werden.



Abb. 3, Ordnungszahl- und Energiebereiche, in denen Foto-, Compton- und Paarbildungseffekt bevorzugt auftreten

1.3. Messung der Strahlungsenergie

Den prinzipiellen Aufbau eines Gammaspektrometers zeigt Abb. 4. Der Detektor wird jeweils über einen Vorverstärker und einen spektroskopischen Verstärker mit einem Vielkanalanalysator gekoppelt, der die einfallenden Impulse registriert und entsprechend ihrer Impulshöhe, die die Energieinformation beinhaltet, bewertet und in aufeinanderfolgende Impulshöhenkanäle einsortiert. Dabei wird der primäre Ladungsimpuls im ladungsempfindlichen Vorverstärker in einen Spannungsimpuls umgewandelt (Ausgangsspannung ist proportional der Eingangsladung). Im spektroskopischen Verstärker wird der Impuls bis in die Größenordnung von 1...10 V verstärkt, bevor er vom Vielkanalanalysator registriert und der Höhe nach eingeordnet werden kann. Es entsteht ein Impulshöhenspektrum, in dem die von jedem detektierten Gammaquant an den Detektor übertragene Energie durch ein Ereignis in dem jeweiligen Energiekanal dargestellt wird. Es werden jedoch für die diskreten Energien keine scharfen Linien im Spektrum sichtbar, sondern aufgrund statistischer Schwankungen der im Detektor ablaufenden Elementarprozesse sowie in der Verarbeitungselektronik erhält man eine Impulshöhenverteilung in Form einer Gaußschen Glockenkurve (Peak). Die mittlere Impulshöhe entspricht dabei der Energie der Gammaquanten. Mittels eines PC-Programms kann das Spektrum auf einem Bildschirm beobachtet, untersucht und gespeichert werden.

Die erforderliche Hochspannung für den Detektor wird über den Vorverstärker zugeführt.

Da Temperatureinflüsse und Spannungsschwankungen die elektronische Verstärkung des Messsystems und damit die Kanallage der Fotopeaks während der Messung verschieben können, ist bei hochwertigen Spektrometern eine automatische Verstärkungsregelung vorgesehen. Dazu werden während der gesamten Messung in den Eingang des Vorverstärkers von einem Präzisions-Impulsgenerator Spannungsimpulse exakt konstanter Höhe eingespeist. Von der Elektronik des Vielkanalanalysators wird die Verstärkung des Messsystems automatisch jeweils so nachgeregelt, dass der entstehende Generatorpeak stets in gleicher Kanallage gehalten wird. Die Höhe der Generatorimpulse wird dabei so gewählt, dass der entstehende Peak in einen Kanalbereich des Impulshöhenspektrums gelegt wird, in dem keine Fotolinien des zu messenden Präparats zu erwarten sind, üblicherweise ganz ans obere Ende des Impulshöhenspektrums.



Abb. 4, Prinzipieller Aufbau eines Gammaspektrometers

Meist sind die Detektoren von einer Strahlungsabschirmung z.B. aus Blei umgeben, um bei niedrigen γ -Aktivitäten die Einflüsse der Umgebungsstrahlung auf den Messeffekt zu minimieren.

Die Gammaspektroskopie erfolgt üblicherweise mit einem Szintillationsdetektor (z.B. NaJ(Tl)) oder einem Halbleiterdetektor aus Ge(Li) bzw. zunehmend Reinstgermanium (HPGe, englischsprachig für High Purity Germanium).

<u>Szintillationsdetektoren</u> sind relativ unkompliziert zu verwenden und haben eine hohe Nachweiseffektivität. Wird der Detektor als Bohrlochszintillator ausgeführt (d.h. mit einem inneren Kanal zur Einführung der Messprobe <u>in</u> den Detektor versehen), ist eine Messung nahezu in 4π -Geometrie möglich. Nachteilig bei Szintillationsdetektoren ist ihr beschränktes Energieauflösungsvermögen, d.h. die Fähigkeit, eng beieinander liegende γ -Energiepeaks als getrennte Linien zu identifizieren.



Abb. 5, Vergleich von Gamma-Impulshöhenspektren des Radionuklids Co-60, gemessen mit einem NaJ(Tl)-Szintillator (oben) und einem Ge(Li)-Halbleiterdetektor (unten)

Halbleiterdetektoren dagegen haben eine exzellente Energieauflösung und werden aus diesem Grund für anspruchsvolle Laboruntersuchungen fast ausschließlich genutzt. Allerdings ist prinzipiell die Nachweiseffektivität gegenüber Szintillationsdetektoren deutlich niedriger. Hohe Effektivitäten müssen mit rasant stei-Detektorpreisen genden erkauft werden, ohne jedoch die Werte eines Szintillators zu erreichen. Zudem müssen Halbleiterdetektoren (Ge(Li) ständig, HPGe zumindest bei Gebrauch) auf die Temperatur des flüssigen Stickstoff (77 K) gekühlt werden, was einen beträchtlichen Aufwand und weitere Kosten bedeutet.

Impulshöhenverteilungen für ein Radionuklid Co-60 (Gammaenergien von 1173 keV und 1332 keV), jeweils gemessen mit einem NaJ(Tl)-Szintillator und einem Ge(Li)-Halbleiterdetektor sind in Abb. 5 dargestellt. Die Qualität des Halbleiterdetektors dokumentiert sich in der deutlich besseren Auflösung der Fotopeaks. Die Auflösung wird dabei definiert als die Halbwertsbreite eines Peaks, d.h. die Breite des Peaks in seiner halben Höhe (ausgedrückt in Kanälen oder Energieeinheiten). Aus dem englischen Sprachgebrauch hat sich hierfür die Abkürzung FWHM eingebürgert (Full Width at Half Maximum). Die Auflösung charakterisiert die Möglichkeit, auch dicht beeinander liegende Fotopeaks noch als getrennte Peaks identifizieren zu können.

1.3.1. Szintillationsdetektoren

Szintillationsdetektoren bestehen aus einem Leuchtstoff (Szintillator), der von der radioaktiven Strahlung zur Emission von Lichtblitzen (Szintillationen) angeregt wird, und aus einem Sekundärelektronenvervielfacher (SEV), der die Lichtblitze in elektrische Impulse umwandelt (vgl. Abb 6).

Im Szintillator wird ein Teil der absorbierten Energie des γ -Quants durch Anregung des Szintillatormaterials und dessen Rückkehr in den Grundzustand in Licht umgewandelt. Für spektrometrische Untersuchungen muss zwischen der absorbierten Energie und der Zahl der emittierten Lichtquanten Proportionalität bestehen.

Als Szintillatoren zur Spektrometrie von Gammastrahlung haben sich anorganische Einkristalle aus Natriumjodid, die einen geringen Zusatz von Thallium zur Aktivierung der Lichtemission enthalten, bewährt (NaJ(Tl)-Szintillatoren). Sie besitzen infolge der großen Dichte ρ = 3,67 g/cm³ und des hohen Gehalts von 85 Masse-% Jod, dessen Ordnungszahl Z = 53 beträgt, ein starkes Absorptionsvermögen für Quantenstrahlung. Es können glasklare, für das eigene Fluoreszenslicht gut durchlässige und homogen aktivierte Kristalle bis zu großen Abmessungen von z.B. 300 mm Dicke und 400 mm Durchmesser hergestellt werden. In ihnen wird auch energiereiche Quantenstrahlung hinreichend absorbiert. Handelsübliche Kristalle befinden sich in luftdichten Kaspseln (wegen der hygroskopischen Eigenschaften von NaJ) z.B. aus Aluminium, die an der Lichtaustrittsfläche mit einem Glas- oder Kunststofffenster verschlossen sind. Zur Vermeidung größerer Lichtverluste sind alle Flächen des Kristalls außer der Lichtaustrittsfläche nicht poliert und mit einer reflektierenden Schicht z.B. aus MgO umgeben.

Das energetische Auflösungsvermögen von NaJ(Tl)-Kristallen für Quantenstrahlung wird üblicherweise für die γ -Linie des Radionuklids Cs-137 (662 keV) angegeben. Die besten Werte, die mit ausgewählten Spektrometerkristallen und SEV erreichbar sind, liegen bei etwa 6 %. Für nicht ausgesuchte handelsübliche Spektrometerkristalle und SEV ergeben sich im allgemeinen relative Halbwertsbreiten von (8 ... 12) %.

Die Lichtquanten des Szintillators müssen weitgehend verlustlos auf die Fotokatode des Sekundärelektronenvervielfachers (SEV) übertragen werden. Immersionsschichten (z.B. Silikonöl) zwischen dem Szintillator und dem SEV-Fenster vermindern die Totalreflexion. Auf der Fotokatode des SEV entstehen durch fotoelektrischen Effekt einige freie Fotoelektronen. Zwischen Fotokatode und Anode des SEV befinden sich eine Reihe von Zwischenelektroden (Dynoden), an die über einen Spannungsteiler eine gestaffelte Hochspannung angelegt wird. Im Spannungsfeld zwischen jeweils zwei dieser Dynoden werden die Elektronen beschleunigt und reißen an der nächsten Dynode durch Stoßionisation weitere Elektronen heraus. Das Dynodensystem des SEV bewirkt eine rauscharme Vervielfachung der ursprünglichen Elektronenanzahl (Faktor 10⁵ bis 10⁹). Mittels des SEV werden somit die Lichtblitze des Szintillators in energieproportionale elektrische Strom- bzw. Spannungsimpulse umgewandelt und verstärkt. Da Umgebungslicht die schwachen Szintillationen des Detektors bei weitem überdecken und zudem die Fotokatode des SEV zur Elektronenemission anregen würde, muss das gesamte Szintillator/SEV-System lichtdicht gekapselt werden.



Abb. 6, Prinzipieller Aufbau eines Sekundärelektronenvervielfachers mit Szintillationsdetektor

1.3.2. Halbleiterdetektoren

Während in früheren Jahren zur Bestimmung von Spektren zumeist Szintillationsdetektoren eingesetzt wurden, verwendet man heutzutage in den Messlabors nahezu ausschließlich Halbleiterdetektoren. Ihr Hauptvorteil liegt in ihrem hohen energetischen Auflösungsvermögen, das etwa 10 bis 20 mal besser als das eines Szintillators ist. Die Energieauflösung von Halbleiterdetektoren übertrifft die aller anderen Strahlungsdetektoren, weil die zur Bildung eines Ladungsträgerpaares im Germanium notwendige Energie sehr gering ist (ca. 2,96 eV). Man unterscheidet die älteren Ge(Li)-Halbleiterdetektoren und die zunehmend verwendeten Reinstgermaniumdetektoren (HPGe-Detektoren).

Herstellung von Ge(Li)-Halbleiterdetektoren:

In einen p-leitenden Germaniumkristall (Akzeptor Bor) diffundieren bei 400 °C Lithiumatome, so dass an der Oberfläche des Kristalls eine hohe Li-Konzentration entsteht. Die Li-Atome wirken als Donatoren und lagern sich auf Zwischengitterplätzen ab. Es bildet sich ein p-n-Übergang. Schon bei Zimmertemperatur sind die Zwischengitteratome ionisiert, so dass positive Lithiumionen im Kristall vorliegen. Beim Anlegen einer Sperrspannung driften diese Ionen vom n- in das p-Gebiet des Kristalls, solange ihre Konzentration über der der Akzeptoren liegt. Durch die Bildung von Bor- und Lithium-Ionenpaaren entsteht eine hochohmige, eigenleitende Schicht im Kristall, in der die Störstellen durch die Kompensation der negativen Ladungen beseitigt sind (intrinsic-Schicht). Ein solcher Aufbau wird als pin-Struktur bezeichnet. Die i-Schicht wirkt als Sperrschicht mit spannungsunabhängiger Dicke.

Wirkungsweise von Ge(Li)-Halbleiterdetektoren:

An die Kontakte (p und n) wird in Sperrrichtung eine Hochspannung angelegt. Solange kein ionisierendes Teilchen in den Kristall eindringt, fließt im Detektor kein Strom, da die i-Schicht einen hohen ohmschen Widerstand besitzt. Dringt ein Gammaquant in den Kristall ein, erzeugt es längs seiner Bahn infolge Foto-, Compton- oder Paarbildungseffekt Elektron-Defektelektron-Paare, die durch das angelegte Spannungspotential an den entsprechenden Polen gesammelt werden. An diesen entsteht eine kurzzeitige Ladungserhöhung, also eine Spannungsdifferenz, und damit wird ein Stromstoß im Detektorkreis hervorgerufen (Entladung). Der Ladungsimpuls wird im ladungsempfindlichen Vorverstärker in einen Spannungsimpuls umgewandelt (Ausgangsspannung ist proportional der Eingangsladung).

Kühlung:

Ein Nachteil des Halbleiterdetektors ist, dass bereits bei Zimmertemperatur thermische Gitterschwingungen zu Ionisationseffekten im Kristall führen. Deshalb müssen Halbleiterdetektoren für die Messung stark abgekühlt werden. Üblicherweise geschieht das durch Kühlung mit flüssigem Stickstoff (Siedetemperatur 77 K bzw. -196 °C) oder neuerdings auch durch elektrische Kühlung. Ge(Li)-Halbleiterdetektoren müssen sogar bei Nichtbenutzung ständig gekühlt werden, da die Lithiumatome sehr leicht beweglich sind und bei Zimmertemperatur unwiederbringlich aus dem Kristall herausdiffundieren würden und damit der Detektor unbrauchbar würde.



Abb. 7, Kühlprinzip für einen Halbleiterdetektor

Der flüssige Stickstoff befindet sich in einem thermisch gut isolierten Dewar-Gefäß (Funktionsprinzip einer Thermoskanne, vgl. Abb. 7). An den Halbleiterdetektor ist ein Kupferfinger angeflanscht, der in den flüssigen Stickstoff taucht und durch Wärmeleitung die Kälte an den Detektor überträgt. Um Wärmeverluste am Detektor zu verringern, befindet sich dieser nochmals in einer Vakuumkapsel. Da Wärmeverluste jedoch nicht ganz zu vermeiden sind, verdunstet der Stickstoff mit der Zeit und muss regelmäßig nachgefüllt werden.

1.4. Bildschirmdarstellung des Vielkanalanalysators

Die Bildschirmanzeige des Computerprogramms für den Vielkanalanalysator mit einem Beispielspektrum zeigt Abb. 8. Die senkrechten Markierungen im Spektrumsbereich stellen in der Mitte den Cursor zur Auswahl eines bestimmten Kanals im Messspektrum dar, die beiden links und rechts daneben liegenden kennzeichnen den Cursorbereich. Die Nummer des gewählten Cursorkanals wird in der unter dem Spektrum stehenden Zeile angezeigt (Marker). Ist die Kanalachse des Spektrometers bzgl. ihrer Energie kalibriert, wird auch die Energie des Cursorkanals ausgeschrieben. Rechts daneben steht die Zahl der gemessenen Impulse im Cursorkanal (Counts).



Abb. 8, Bildschirmdarstellung des Vielkanalanalysators

U	0		
Display	MCR/Buffer	Darstellung des Spektrums aus dem Messbereich oder aus dem	
		Puffer des Vielkanalanalysators	
	Full/Expand	Darstellung des gesamten Spektrums oder nur der Teil, der durch	
		den Cursorbereich ausgewählt ist	
	Vt	Skalierung der Ordinate	
	Hz	Anzahl der dargestellten Kanäle auf der Abszisse	
Presets	Rl Tm	Vorgabemöglichkeit einer RealTime für die Messung	
	Lv Tm	Vorgabemöglichkeit einer LiveTime für die Messung	
Time	Rl Tm	vergangene RealTime für die Messung	
	Lv Tm	vergangene LiveTime für die Messung	
	Dead Tm	Totzeit des Vielkanalanalysators (in %)	

Wichtige Anzeigen aus der rechts stehenden Spalte im Bildschirm sind:

Einer Erklärung bedürfen die Begriffe RealTime, LiveTime und DeadTime, die sich aus dem englischen Sprachgebrauch eingebürgert haben. RealTime ist dabei die Zeitspanne für eine Messung gemäß normaler Uhrzeit. Während jedoch ein Detektorimpuls im Vielkanalanalysator verarbeitet wird, kann das Gerät keine weiteren Impulse akzeptieren (es ist "busy"). Man spricht davon, dass das Eingangstor des Analysators geschlossen ist. Erst nach Verarbeitung des Impulses wird das Eingangstor wieder geöffnet, und der Vielkanalanalysator kann einen weiteren Detektorimpuls annehmen. Die Zeitspanne, in der das Eingangstor tatsächlich offen ist, heißt LiveTime. Die DeadTime (auch Totzeit genannt) ist dann der Zeitanteil des verschlossenen Eingangstores. Die LiveTime bildet die Grundlage für Absolutmessungen von Spektren oder Aktivitätswerten. Vorzugsweise sollte sie möglichst nahe der RealTime sein, d.h. die Totzeit sollte möglichst klein gehalten werden. Dies lässt sich entweder durch eine schnelle Elektronik des Vielkanalanalysators oder durch geringe Zählraten erreichen.

2. Aufgabenstellungen

2.1. Vergleich der Eigenschaften eines NaJ(Tl)-Szintillators und eines Ge(Li)-Halbleiterdetektors

Mit beiden Detektortypen werden nacheinander die Gammaspektren einer Co-60-Quelle gemessen, die ein Zweilinienspektrum erzeugt.

Den Aufbau des Szintillationsspektrometers zeigt Abb. 9, den des Halbleiterspektrometers Abb. 10. Die elektronischen Einstellungen werden Ihnen vom Versuchsbetreuer vorgegeben. Die wesentlichen Tasten zur Bedienung des Spektrometers sind in Abschn. 3.1 erläutert.



Abb. 9, Messanordnung mit Szintillationsdetektor



Abb. 10, Messanordnung mit Ge(Li)-Halbleiterdetektor

Aufgabe: Positionieren Sie die Gammaquelle Co-60 unmittelbar auf dem jeweiligen Detektor. Diskutieren Sie die Spektrumsformen für die beiden Detektortypen und bestimmen Sie die Auflösung der Fotopeaks. Vergleichen Sie die Messergebnisse mit den am Praktikumsplatz ausliegenden Literaturangaben.

2.2. Energiekalibrierung des Spektrometers mit Ge(Li)-Detektor

Bei der Auswertung von Impulshöhenspektren erhält man primär lediglich die Kanallage der Peaks und die entsprechenden Impulszahlen. Um zu jeder Kanallage auch die zugehörige Energie der Gammastrahlung zu erhalten, ist eine Energiekalibrierung des Spektrometers erforderlich. Dazu werden mit dem Vielkanalanalysator möglichst viele Fotopeaks bekannter Gammaquellen (Kalibrierquellen) ausgemessen und der Zusammenhang zwischen der Gammaenergie und der jeweils ermittelten Kanallage ermittelt. Am Praktikumsplatz stehen dafür üblicherweise die in Tabelle 1 aufgeführten Kalibrierquellen zur Verfügung.

Nuklid	Energie [keV]	
Co-60	1173	
	1332	
Cs-137	662	
Kr-85	514	
Ho-166m	184	
	280	
(Hauptlinien)	411	
	712	
	810	

Tab. 1, Gammastrahlungsenergien für die im Praktikum verwendeten Kalibrierquellen

Aufgabe: Stellen Sie für die gegebenen Gammaquellen den Zusammenhang zwischen Kanallage und Energie der Fotopeaks her und tragen Sie das Ergebnis graphisch in ein Diagramm E = f(K) ein. Welcher funktionale Zusammenhang ist erkennbar ?

Man kann auch den Computer veranlassen, den Zusammenhang zwischen Kanallage und Gammaenergie zu berechnen und die Energiewertigkeit eines jeden Kanals unmittelbar am Bildschirm anzuzeigen. Dazu werden aus dem ermittelten Diagramm E = f(K) zwei Wertepaare (jeweils Kanal und Energie) in das Computerprogramm eingegeben, das aus diesen beiden Punkten einen linearen Zusammenhang ermittelt. Zur Erreichung einer bestmöglichen Genauigkeit empfiehlt es sich, dafür die am weitesten auseinander liegenden Wertepaare (d.h. das unterste und das oberste) zu verwenden.

Die erforderlichen Tastatureingaben sind:

- Bewegen des Cursors auf den Kanal des ersten gewählten Wertepaares	
- Umschalten in PullDown-Menü "Calculate"	Alt-C
- Aktivieren von "Calibrate"	Alt-C
- Eingabe des Energiewertes des gewählten Kanals	<cr></cr>
- Wiederholung der Prozedur mit dem zweiten Wertepaar	
- Eingabe der Maßeinheit für die Energie (keV)	<cr></cr>

Damit ist die Kanalachse energetisch kalibriert. Man erkennt das an der Anzeige des Energiewertes zu jedem Kanal auf dem Bildschirm (vgl. Abb. 8).

Aufgabe: Führen Sie die Kalibrierung des Spektrometers wie angegeben durch. Überprüfen Sie die Energiekalibrierung mit anderen Fotopeaks der Kalibrierquellen.

2.3. Untersuchung der zeitlichen Abhängigkeit der Aktivitäten in einem Isotopengemisch

Das Element Kupfer besteht aus den beiden natürlichen Isotopen Cu-63 und Cu-65 (vgl. Tab. 2). Wird Kupfer (z.B. ein Stück Kupferblech) im Neutronenfeld aktiviert, entstehen die beiden radioaktiven Isotope Cu-64 und Cu-66. Die beiden Isotope zerfallen mit deutlich unterschiedlichen Halbwertszeiten und emittieren dabei Gammastrahlung der in Tab. 2 angegebenen Energien. Eine Halbwertszeitbestimmung durch einfache integrale Impulszählung führt durch Überlagerung der Zerfallskurven zu nicht eindeutigen Ergebnissen (vgl. Experiment "Bildung und Zerfall radioaktiver Isotope"). Mittels Gammaspektroskopie kann man die gemessenen Fotopeaks dagegen dem jeweiligen Isotop zuordnen und die zeitabhängige Intensität isotopenspezifisch verfolgen.

Ele- ment	aktivierba- res Nuklid	Häufigkeit im Element	$\sigma(n_{th},\gamma)$	aktiviertes Nuklid	T _{1/2}	Εγ
Cu	Cu-63	69,1 %	4,3 b	Cu-64	12,8 h	511 keV und 1348 keV
	Cu-65	30,9 %	2,1 b	Cu-66	5,1 min	1039 keV

Tab. 2, Aktivierungsdaten für Kupfer

Aufgabe: Aktivieren Sie eine Kupferprobe etwa 10 min lang im tangentialen Experimentierkanal des AKR bei einer Reaktorleistung von 2 W. Mit dem Ende der Bestrahlung beginnt die Abklingzeit (Zeitnahme mit Stoppuhr !). Geben Sie am Gammaspektrometer eine geeignete gleiche LiveTime für die folgenden Messungen vor (vgl. Abschn. 3.1) und messen Sie für verschiedene Abklingzeiten die Netto-Peakflächen (und damit Intensitäten) der Fotopeaks (vgl. Abschn. 3.2). Ordnen Sie die gemessenen Fotopeaks den beiden Kupferisotopen zu. Tragen Sie die Ergebnisse einschließlich der ebenfalls berechneten Standardabweichungen in eine Tabelle analog Tab. 3 ein und berechnen Sie die Peakflächenverhältnisse der Fotopeaks von Cu-64 / Cu-66. Welche Schlussfolgerungen leiten Sie aus der Messung ab?

Abkling-	Messzeit	Netto-Peakflä	Peakflächen-	
[min]	[s]	kurzlebiges Isotop Cu-66 (5,1 min) Eγ = 1039 keV	langlebiges Isotop Cu-64 (12,8 h) Eγ=511 keV	Cu-64 / Cu-66

Tab. 3, Protokollierung der Flächen der Fotopeaks einer aktivierten Kupferprobe

2.4. Identifizierung eines unbekannten Radionuklids bzw. Radionuklidgemisches

Bei einer Nuklididentifikation einer unbekannten radioaktiven Probe werden die Gammaenergien der Fotopeaks gemessen und mit Literaturangaben verglichen. Durch die Eindeutigkeit des Zerfallsschemas (vgl. Beispiel in Abb. 1) für jedes Radionuklid ist eine eindeutige Identifikation möglich. Daten für alle bekannten Radionuklide sind graphisch oder tabellarisch in Buchform oder digital verfügbar.

Können alle Fotopeaks eines gemessenen Spektrums einem einzigen Nuklid zugeordnet werden, handelt es sich um ein reines Isotop. Werden darüber hinaus weitere Fotopeaks identifiziert, gehören diese zu anderen Nukliden, und es liegt folglich ein Isotopengemisch vor.

Bei einer einfachen Nuklididentifikation, wie sie im Praktikum standardgemäß durchgeführt wird, genügt die Bestimmung der Bestandteile der Probe. Bei einer fortgeschrittenen Auswertung (vgl. Abschn. 2.5.) läßt sich darüber hinaus durch Ermittlung der Peakflächen im Spektrum auch die mengenmäßige Zusammensetzung des Präparates berechnen (unter Einbeziehung der absoluten, energieabhängigen Effektivität des Spektrometers, der Gamma-Emissionswahrscheinlichkeiten und ggf. der Aktivierungsparameter).

Im Praktikum am AKR wird entweder eine unbekannte Probe im Reaktor aktiviert oder ein bereits vorhandenes, langlebiges Material ausgemessen.

Aufgabe: Messen Sie das Gammaspektrum der vom Betreuer vorgegebenen Probe mit dem Ge(Li)-Halbleiterdetektor. Ggf. ist das Präparat vorher in den Experimentierkanälen des AKR zu aktivieren. Die Energien der gemessenen Fotopeaks werden analog Tab. 4 in Spalte 1 protokolliert. Mittels der am Arbeitsplatz zur Verfügung stehenden Tabellenwerke werden die Gammaenergien möglicher Nuklide und die zugehörigen Nuklidbezeichnungen ebenfalls in der Tabelle notiert (Spalte 2 bzw. 3). Um leichte Verschiebungen der Energiekalibrierung zu berücksichtigen, verwenden Sie dazu auch je eine ober- und unterhalb der gemessenen Fotopeaks liegenden Gammaenergie zum Vergleich. Ziehen Sie Ihre Schlussfolgerungen!

gemessene Fotopeaks	mögliche Nuklide gemäß Literaturangaben			
Eγ[keV]	Eγ [keV]	Nuklidbezeichnung		

Tab. 4, Protokolltabelle zur Nuklididentifikation

2.5. Bestimmung der absoluten Effektivität des Ge(Li)-Halbleiterdetektors und Aktivitätsmessung (Bestandteil des erweiterten Experiments)

Die Anzahl der von einer Quelle ausgesandten Gammaquanten einer bestimmten Energie unterscheidet sich von der Anzahl der bei dieser Energie registrierten Impulse, denn

- nicht jedes von der Quelle ausgesandte Gammaquant trifft auf das empfindliche Detektorvolumen (Geometrieeffekt),
- nicht jedes ins Detektorvolumen einfallende Gammaquant tritt mit diesem in Wechselwirkung (Detektoreffektivität),
- nicht jede Wechselwirkung führt zur Abgabe der gesamten Quantenenergie und damit zur Erhöhung des Fotopeaks bei der entsprechenden Energie (vgl. Comptoneffekt).

Mittels der Effektivitätskalibrierung wird ein quantitativer Zusammenhang dafür gefunden, wie viele der von der Quelle ausgesandten Gammaquanten einen Beitrag zur Erhöhung der Zahl der bei der betreffenden Energie aufgezeichneten Impulse liefern. Die Detektoreffektivität ist stark von der Photonenenergie abhängig. Bei niedrigen Gammaenergien werden bedeutend mehr Impulse als bei hohen Gammaenergien registriert. Zusätzlich wird die Effektivität vom Detektormaterial und seinen Abmessungen, der Messgeometrie und dem Abstand zwischen Quelle und Detektor beeinflusst.

Die Anzahl der von der Quelle je Zeiteinheit emittierten Gammaquanten einer Energie beträgt

$$N_{\text{emittiert}} = A \cdot \gamma \tag{3}$$

wobei A die Aktivität der Quelle (also die Anzahl der je Zeiteinheit zerfallenden Kerne) und γ die Photonenemissionswahrscheinlichkeit (oder Intensität) angibt. Unter der Photonenemissionswahrscheinlichkeit versteht man die Anteil von Gammaquanten einer bestimmten Energie, die bei Zerfall eines Kerns des betreffenden Nuklids frei werden. Diese Intensitäten entnimmt man dem Zerfallsschema des Nuklids bzw. entsprechenden Tabellen.

Die Anzahl der vom Detektor je Zeiteinheit registrierten Impulse errechnet man aus der gemessenen Nettopeakfläche und der Livetime.

$$N_{registriert} = \frac{N}{t_L}$$
(4)

Damit erhält man die Effektivität als Quotient zwischen registrierten und emittierten Ereignissen bei der jeweiligen Energie

$$\varepsilon = \frac{N_{registriert}}{N_{emittiert}} = \frac{N}{t_L \cdot \gamma \cdot A}$$
(5)

 ε = Effektivität

N = gemessene Nettopeakfläche

 t_L = Livetime der Messung

 γ = Photonenemissionswahrscheinlichkeit

A = Aktivität der Gammaquelle zum Messzeitpunkt

In der Praxis wird so vorgegangen, dass für bestimmte geometrische Anordnungen (wie z.B. Punktquellen in einem bestimmten Abstand zum Detektor oder genormte Gefäße mit konstantem Volumen für flüssige Proben) die Detektoreffektivität für verschiedene Energien nach dieser Formel bestimmt wird. Wird die Messgeometrie verändert, ist eine erneute Effektivitätskalibrierung erforderlich.

Trägt man die Detektoreffektivität über der Gammaenergie in einem doppelt logarithmischen Diagramm auf, so ordnen sich die Werte in einem weiten Energiebereich auf einer Geraden an. Die Abhängigkeit der Detektoreffektivität von der Quantenenergie kann also durch

$$\ln \varepsilon = a + b \cdot \ln E \tag{6}$$

beschrieben werden. Um den Fehler bei der Effektivitätskalibrierung zu vermindern, ist es vorteilhaft, eine Ausgleichsfunktion durch mehrere Wertepaare legen zu können. Das wird durch die Verwendung von Vielliniennukliden oder speziellen Kalibrierquellsätzen mit mehreren Gammaquellen erreicht. In jedem Fall muss die Aktivität der Quellen zum Zeitpunkt der Kalibrierung bekannt sein.

Sind durch geeignete Kalibrierung die Koeffizienten a und b der Gleichung (6) bekannt, kann aus einem aufgenommenen Gammaspektrum einer unbekannten Probe deren absolute Aktivität durch Umstellen von Gleichung (5) berechnet werden.

Beispiele für Kalibrierquellen sind in Tab. 5 aufgelistet. Die zur Effektivitätskalibrierung benötigten Aktivitätsangaben zum Herstellungszeitpunkt der Quellen sind den jeweiligen Zertifikaten zu entnehmen. Diese müssen unter Beachtung der Halbwertszeit in die zum Messzeitpunkt jeweils vorliegende aktuelle Aktivität umgerechnet werden. Ein Beispiel für eine Energiekalibrierung zeigt Abb. 11.

Kalibrier- quelle	Halb- wertszeit [a]	Gamma- energie [keV]	Intensität [%]	Kalibrier- quelle	Halb- wertszeit [a]	Gamma- energie [keV]	Intensität [%]	
Am-241	432,1	60	35,90	Ho-166m	1200	81 184 216 280	$ \begin{array}{r} 14,00\\100,00\\3,80\\40,79\end{array} $	
Cs-137	30,17	662	89,92				301 411 530	40,79 4,80 15,25 10,00 6,80
Mn-54	0,856	835	99,98			671 712 752	7,00 74,48 16,00	
Co-60	5,27	1173 1332	99,90 99,98			810 831 951 1241	78,66 12,00 3,60 1,20	

 Tab. 5, Beispiele für Gammakalibrierquellen (Gammaenergien und Linienintensitäten)

Aufgabe: Ermitteln Sie die energieabhängige absolute Effektivität des Ge(Li)-Halbleiterspektrometers für eine vorgegebene Geometrie und tragen Sie die Ergebnisse in ein Diagramm analog Abb. 11 ein. Berechnen Sie die Ausgleichsfunktion gemäß Gleichung (6) und geben Sie die ungefähren Energiegrenzen ihrer Gültigkeit an. Ermitteln Sie durch Umstellung von Gleichung (5) mittels des Ergebnisses Ihrer Effektivitätskalibrierung die absolute Aktivität eines vorgegebenen radioaktiven Präparats.



Abb. 11, Beispiel einer absoluten Effektivitätskalibrierung eines Ge(Li)-Halbleiterdetektors

3. Bedienung des Gammaspektrometers

3.1. Wesentliche Funktionstasten

			Taste
Messung	Start		Alt-1
	Stop		Alt-2
	Löschen		Alt-3
Darstellung	Höhenskalierung	des Spektrums	Cursortasten auf/ab
	ganzes Spektrum	/Cursorbereich ansehen	F3
	Messspektrum in	Puffer schieben	Alt-5
	zwischen Messbe	ereich und Puffer wechseln	Alt-6
Cursor	Cursorbewegung	langsam	Cursortasten links/rechts
	"	schnell	PageUp / PageDown
	"	zum Anfang/Ende	Pos1 / Ende
	Cursorbereich	breiter	+ (num. Tastatur)
	"	schmaler	- (num. Tastatur)
Abspeichern	Spektrum in Puff	er schieben	Alt-5
	PullDown-Menü	Alt-F	
	Speichern (Save)	Alt-S	
Dateinamen eingeben (ohne Erweiter		eben (ohne Erweiterung)	
	Kommentar eing	eben (bei Bedarf)	
Vorwahlen	PullDown-Menü	"Presets"	Alt-P
	z.B. LiveTime-V	orwahl	Alt-L

3.2. Berechnung der Peakfläche von Fotopeaks

Der Flächeninhalt eines Peaks ist die Differenz aus seiner Gesamtfläche und dem entsprechenden Untergrund. Als Untergrund werden die Impulse bezeichnet, die nicht zum eigentlichen Peak gehören, aber vom Vielkanalanalysator im Bereich des Peaks gespeichert wurden. Wesentliche Ursachen hierfür sind:

- natürliche Radioaktivität am Messort (z.B. kosmische Strahlung, terrestrische Strahlung),
- künstliche Radioaktivität am Messort (z.B. Betrieb des Reaktors, Lagerung von Strahlungsquellen in der Umgebung des Messortes),
- Untergrund durch Comptoneffekt höher liegender Gammaenergien des vorliegenden Präparates.

Die ersten beiden Untergrundkomponenten lassen sich durch Abschirmung des Gammadetektors (z.B. mit Blei) oder eine möglichst weit entfernte Lagerung anderer Strahlungsquellen minimieren. Treten bei einem auszumessenden Nuklid mehrere Fotopeaks auf, dominiert meist der dritte Effekt, der nicht beeinflussbar ist.



Abb. 12, Prinzip der Netto-Peakflächenberechnung

Zur Korrektur des Untergrundes nimmt man an, dass sein "Dach" linear verläuft (vgl. Abb. 12). Dann gilt:

$$B = \left(\frac{C_1 + C_n}{2}\right) \cdot n \tag{7}$$

$$A_g = \sum_{i=1}^n C_i \tag{8}$$

- 20 -

- B = Flächeninhalt des Untergrundes
- A_{g} = Bruttofläche des Peaks
- A_n = Nettofläche des Peaks
- C_1 = Inhalt des ersten (Start-)Kanals (d.h. Kanalinhalt an linker Peakbegrenzung)

$$A_{n} = A_{g} - B = \sum_{i=1}^{n} C_{i} - \left(\frac{C_{1} + C_{n}}{2}\right) \cdot n$$
(9)

- C_i = Inhalt des i-ten Kanals
- $\dot{C_n}$ = Inhalt des letzten (Stop-)Kanals (d.h. Kanalinhalt an rechter Peakbegrenzung)
- n = Anzahl der Kanäle von START bis STOP

Die Software des Vielkanalanalysators ist in der Lage, Brutto- und Nettopeakflächen (Gross Area bzw. Net Area) sowie die jeweiligen Standardabweichungen, die durch die Zählstatistik hervorgerufen werden, automatisch zu berechnen. Dazu ist die folgende **Tastaturbedienung** erforderlich:

1.	Gemessenes Spektrum in den Puffer verschieben	Alt-5
2.	Pufferinhalt darstellen	Alt-6
3.	Cursor an den linken Rand des Peaks fahren	
4.	Linken Rand des Peakbereichs festlegen	Alt-R, danach Alt-B
5.	Cursor an den rechten Rand des Peakbereichs fahren	
6.	Rechten Rand des Peakbereichs festlegen	Alt-R, danach Alt-E
	(Peakbereich ist jetzt rot markiert)	
7.	Cursor in den Peakbereich hineinfahren	
8.	Nettopeakfläche berechnen	Alt-C, danach Alt-A

Die Peakflächenberechnung durch das PC-Programm erfolgt entsprechend der nachfolgend beschriebenen Methode. Um statistisch geprägte Einzelfehler des gewählten Messwertes an der oberen und unteren Peakbegrenzung auszugleichen, werden zur Berechnung des Untergrundes *B* jeweils die ersten bzw. letzten 3 Kanäle innerhalb des Peakbereiches gemittelt und für die Geradenberechnung des "Daches" verwendet. Damit ergibt sich

$$B = \left(\sum_{i=1}^{l+2} C_i + \sum_{i=h-2}^{h} C_i\right) \cdot \frac{h-l+1}{6}$$
(10)

$$A_b = \sum_{i=l}^h C_i \tag{11}$$

- B = Flächeninhalt des Untergrundes
- l = Kanalnummer der linken Begrenzung der ROI
- h = Kanalnummer der rechten Begrenzung der ROI
- C_i = Inhalt des i-ten Kanals

$$A_{n} = A_{ib} - \left(\sum_{i=l}^{l+2} C_{i} + \sum_{i=h-2}^{h} C_{i}\right) \cdot \frac{h-l-5}{6} = A_{b} - B \cdot \frac{h-l-5}{h-l+1}$$
(12)

- A_b = Bruttofläche des Peaks
- $\vec{A_{ib}}$ = innere Bruttofläche (ohne die drei ersten und letzten Kanäle)
- A_n = Nettofläche des Peaks
- σ_{An} = statistischer Fehler der berechneten Nettopeakfläche