



### ${\bf Fortgeschrittenen praktikums versuch}$

# Aktivitätsbestimmung (AK)

Institut für Kern- und Teilchenphysik -Fakultät Mathematik-Naturwissenschaften an der Technischen Universität Dresden

Alexander Domula (alex\_do@gmx.net)Juni 2015TU Dresden, Institut für Kern- und TeilchenphysikVersion 2.2

# Inhalt

Inhalt2				
1 Zielstellung des Versuches 4				
2 Aufgabens	stellng 4			
3 Grundlage	en der Aktivitätsbestimmung 5			
3.1 Funktion	nsweise von Photonendetektoren für Gamma-strahlung6			
3.1.1 Wech	selwirkung zwischen Photonen und Materie6			
3.1.2 Erzeu	gung des Messeffektes8			
3.2 Verwend	ung von HP-Ge Detektoren			
3.3 Analyse	von HP-Ge Spektren9			
3.4 Aktivität	tsbestimmung14			
3.5 Geometr	ische- und Selbstabsorptionseffekte19			
4 Versuchsv	vorbereitung / Fragen zum Experiment21			
5 Literatur.				
Anhang - A	Radioaktivität24			
Anhang - B	Strahlungs-Detektoren28			
Anhang - C	Verwendung von HP-Ge Detektoren32			
Anhang - D	Einsatzbereich von HP-Ge Detek-toren –Probleme der Gamma-Spektrometrie			
Anhang - E	Koinzidenzsummation41			
Anhang - F	Ansprechvermögen44			
Anhang - G	Zerfallschemata46			

# Einleitung

Radioaktivität spielt in allen Bereichen der Umwelt eine Rolle. Das Leben auf der Erde wurde schon immer durch ionisierende Strahlung, die u.a. in Folge von Radioaktivität auftritt, beeinflusst. Die Strahlenexposition des Menschen rührt zum größten Teil aus seiner Eigenaktivität, der Umweltaktivität sowie der Höhenstrahlung.

Die in der Umwelt vorkommenden Radionuklide lassen sich in verschiedene Gruppen einteilen:

- Primordiale Nuklide sind aufgrund ihrer langen Halbwertszeit seit der Elemententstehung vorhanden. (<sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>232</sup>Th)
- Radiogene Nuklide sind Zerfallsprodukte anderer Nuklide u.a. von primordialen Nukliden. (<sup>214</sup>Bi, <sup>212</sup>Bi, <sup>220</sup>Rn)
- Kosmogene Nuklide werden in Folge von Höhenstrahlung oder direkt in der Atmosphäre erzeugt. (<sup>7</sup>Be, <sup>14</sup>C, <sup>3</sup>H, <sup>60</sup>Co, <sup>68</sup>Ge)
- Durch den Menschen erzeugte Nuklide. (<sup>137</sup>Cs, <sup>128</sup>I, <sup>60</sup>Co)

Die Bestimmung von Aktivitäten kann zur Verfolgung wissenschaftlicher Ziele (u.a. in Niederniveau-Experimenten) oder zur Überwachung der Umweltradioaktivität erfolgen. Bei letzterem kann der Einfluss menschlichen Handelns zu starken Inhomogenitäten und Erhöhungen führen. Die wesentlichen Ursachen dafür liegen in:

- bergbaulicher Tätigkeit, insbesondere im Bereich von Uran- und anderen Schwermetallvorkommen,
- Fallout und Kontaminationen in Folge des Reaktorunglücks in Tschernobyl 1986 sowie weiterer Unfälle,
- globaler Fallout in Folge atmosphärischer Kernwaffenversuche bis in die sechziger Jahre,
- mögliche Emissionen aus der Medizin,
- Betrieb von Beschleunigern,
- planmäßiger (genehmigter) Eintrag radioaktiver Substanzen in die Umwelt bei der Wiederaufarbeitung, beim Betrieb von Reaktoren und anderen kerntechnischen Anlagen.

Der qualitative und quantitative Nachweis von Gamma-Strahlung kann zur Bestimmung der Aktivität für viele Radionuklide herangezogen werden.

# 1 Zielstellung des Versuches

Aufgrund der Natur von Gamma-Strahlung, die in Folge von Radioaktivität auftreten kann (Anhang - A), ist die Energie dieser vom Kern ausgesandten Photonenstrahlung für ein Nuklid charakteristisch. Der quantitative Nachweis von Gammastrahlung lässt damit Rückschlüsse auf das entsprechende Mutternuklid zu. Eine genaue Kenntnis der Detektorcharakteristiken erlaubt weiterhin die Bestimmung der entsprechenden Aktivität.

Im Versuch wird ein *High-Purity Germanium Detektor (HP-Ge)* zur gammaspektrometrischen Untersuchung von Umweltproben eingesetzt. Nach Bestimmung der Detektorcharakteristiken stehen verschiedene Proben für die Aktivitätsanalyse zur Verfügung. Der Versuch befasst sich mit dem Gegenstand Radioaktivität und soll ein leistungsfähiges Verfahren zur Aktivitätsbestimmung vorstellen.

# 2 Aufgabenstellng

- 1. Machen Sie sich mit dem Versuchsaufbau, dem Impulshöhenspektrum mit dessen Strukturen und den Funktionen der Auswertungssoftware *GammaVision32* vertraut. Entwickeln Sie anhand der durch die Peak-Auswertungssoftware bestimmbaren Daten eine Messwerttabelle diese soll die benötigten Messgrößen mit entsprechenden Unsicherheiten enthalten.
- 2. Mit den Kalibriernukliden <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co und <sup>152</sup>Eu ist eine Detektorkalibrierung durchzuführen. Die Messzeit für die Kalibriermessungen soll  $t_{\rm L} = 600 {\rm s}$ betragen. Durch die Auswertung charakteristischer Linien der Kalibriernuklide Energiekalibrierung E(K)wird die sowie das Absolute-Vollenergie-Ansprechvermögen  $\varepsilon(E)$ (Kapitel 3.4) bestimmt. Welche Messgrößen sind dafür relevant? Zur Kalibrierung sind circa 15Vollenergiepeaks heranzuziehen. Beachten Sie dass eine möglichst gleichmäßige Auswahl, die einen großen Energiebereich abdeckt, getroffen werden sollte. In die Auswahlkriterien sollten auch statistischen Aspekte einfließen. Wie lassen sich entstehende Messunsicherheiten  $\operatorname{mit}$ einer geschickten Vorabauswahl optimieren?

3. An verschiedenen Umweltproben werden gammaspektrometrische Messungen vorgenommen Durch die Energiekalibrierung lassen sich gegebenenfalls enthaltene Radionuklide anhand ihrer charakteristischen Linien identifizieren; mit Kenntnis des Vollenergieansprechvermögens wird für das gegebene Nuklid anhand einer jeden Linie die Aktivität bestimmt.

Treffen Sie eine Auswahl von drei interessanten Umweltproben, die auf dem Detektor "gezählt" werden. Beachten Sie bei der zeitlichen Planung, dass in diesem Arbeitsschritt die Messung sowie die Auswertung (u.a. auch die der Kalibrierung) nach einer Absprache mit dem Betreuer optimiert werden können. Welche Kriterien ziehen Sie dabei in Betracht?

Identifizieren Sie die in den Umweltproben enthaltenen Nuklide und bestimmen Sie anhand der Auswertung des Gammaspektrums die entsprechende Aktivität.

4. Fertigen Sie eine kurze Diskussion der einzelnen Messungen sowie der dabei aufgetretenen Probleme der Gammaspektrometrie an. Ordnen Sie damit sowie anhand der Unsicherheiten die Genauigkeit der im Versuch bestimmten Aktivitäten ein.

## 3 Grundlagen der Aktivitätsbestimmung

Um eine Aktivität zu bestimmen, ist die Beobachtung der bei einem Kernzerfall bzw. einer Kernumwandlung emittierten Teilchen oder der Folgestrahlung notwendig. Die primär emittierten Teilchen können u.A.  $\alpha$ -,  $\beta$ <sup>-</sup>- oder  $\beta$ <sup>+</sup>- Teilchen sein. Der entstehende Tochterkern befindet sich danach meist in einem angeregten Zustand. Die Elektronenhülle verbleibt oft ebenfalls angeregt. In Folge dessen werden Photonen in Form von  $\gamma$ - und charakteristischer Röntgenstrahlung oder Elektronen in Form von Konversions- und Augerelektronen emittiert (*Anhang - A*).

Einer Aktivitätsbestimmung geht immer eine Analyse der entsprechenden Umwandlungs- bzw. Zerfallsschemata voraus. Diese geben u.a. Kenntnis über die Art der Zerfallsprozesse, die darauf folgenden Abregungen, Kaskadierungen, Fraktionen von Reaktionskanälen, Photonenintensitäten und über die Lebensdauer der entsprechenden Zustände. Die Eignung entsprechender Messverfahren für die Aktivitätsbestimmung kann daraus abgeleitet und entsprechende Korrekturen können bestimmt werden.

### 3.1 Funktionsweise von Photonendetektoren für Gammastrahlung

#### 3.1.1 Wechselwirkung zwischen Photonen und Materie

Zum qualitativen und quantitativen Nachweis von Photonen wird deren ionisierende Wirkung genutzt. In Folge von Photonenwechselwirkung mit dem Detektormaterial wird die Energie der indirekt ionisierenden Photonen auf direkt ionisierende Elektronen übertragen. Dabei treten Effekte auf, bei denen entweder ein Teil der Energie (inkohärente Streuung) oder die gesamte Energie (Photoeffekt, Paarbildungseffekt) übertragen wird.

- *Photoeffekt*: Trifft ein Photon auf ein Elektron, kann es zum vollständigen Energieübertrag auf das Elektron kommen. Ist die übertragene Energie größer als die Bindungsenergie des Elektrons im Atom, so ist dieses nicht mehr an das Atom gebunden und kann sich frei bewegen.
- *Inkohärente Streuung:* Die inkohärente Streuung beschreibt die Streuung von Photonen an gebundenen Elektronen. Dabei überträgt das Photon einen Teil seiner Energie, wobei sich dessen Bewegungsrichtung ändert.
- Paarbildungseffekt: Ist die Photonenenergie E größer als die doppelte Ruheenergie eines Elektrons, so kann aus einem Photon im elektrischen Feld des Atomkerns (E > 1022 keV) oder Atomhülle (E > 2044 keV) ein Elektron-Positronpaar ( $e^{-}/e^{+}$ ) entstehen. Die Energie die nicht zur Bildung des  $e^{-}/e^{+}$ Paares aufgewendet wird, steht Positron und Elektron jeweils zu gleichen Teilen als kinetische Energie zur Verfügung.

Die durch die drei Effekte entstandenen primären Ladungsträger verfügen nun über die Energie der initialen Photonen. Durch Sekundärionisationen wird die Energie auf das umgebende Material übertragen. Es entstehen Sekundärladungsträger deren Anzahl proportional zur Energie des Ausgangsteilchens, des initialen Photons ist.

Ein Maß der Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von Wechselwirkungsprozessen ist durch entsprechende Wechselwirkungsquerschnitte gegeben, die von der Photonenenergie E, der Ordnungszahl Z, sowie Massenzahl A und Dichte  $\rho$  abhängen (Abbildung 2).



**Abbildung 1** Die verschiedenen Photonen-Wechselwirkungsquerschnitte (Beispiel Germanium) zeigen eine starke Energieabhängigkeit und dominieren in unterschiedlichen Energiebereichen.



Abbildung 2 Die energieabhängigen Wechselwirkungsquerschnitte werden besonders durch die Ordnungszahl, Massenzahl und Dichte des entsprechenden Mediums bestimmt.

#### 3.1.2 Erzeugung des Messeffektes

Um aus den Sekundärladungsträgern einen Messeffekt zu erzeugen, der in seiner Stärke der Anzahl dieser Ladungsträger proportional ist, werden die Eigenschaften Nichtoder Halbleitern ausgenutzt. Die einfachste von Form eines Strahlungsdetektors, die Ionisationskammer, besteht im Wesentlichen aus einem Plattenkondensator, über dem eine Spannung anliegt. Zwischen den Kondensatorplatten kann kein Strom fließen, da dort freie Ladungsträger fehlen. In Wechselwirkung ionisierender Strahlung Folge können Ladungsträger der werden, die dann zu einem kurzen bereitgestellt Stromfluss führen. Die angeschlossene Elektronik erzeugt daraus einen Spannungspuls, welcher in seiner Höhe proportional zu der Anzahl ursprünglich gebildeter Ladungsträger und damit zur Energie des initialen Photons ist. Der Impuls wird durch einen spektroskopischen Hauptverstärker verstärkt und geformt, sodass dessen Höhe von einem Analog-/Digitalkonverter digitalisiert werden kann. Das Ergebnis ist ein Impulshöhenhistogramm, in dem jedes detektierte Ereignis anhand der zugehörigen Pulshöhe und damit der im Detektorvolumen deponierten Energie gezählt wird. Für das Impulshöhenhistogramm ist auch der Begriff Gammaspektrum gebräuchlich (Abbildung 4).

### 3.2 Verwendung von HP-Ge Detektoren

Ein weitaus größeres Ansprechvermögen kann mit Detektionsmedien höherer Dichte sowie einer größeren Ordnungszahl erreicht werden. Dafür eignen sich unter anderem Halbleitermaterialien, mit denen sich Detektoren nach dem vorangegangen beschriebenem Prinzip durch Konstruktion einer Diode realisieren lassen. Wird diese in Sperrrichtung betrieben, so bildet sich eine ladungsträgerverarmte Sperrschicht aus die das aktive Detektorvolumen realisiert.

Germanium") Detektoren HP-Ge ("High Puritybesitzen einige für die Aktivitätsanalyse hervorragende Eigenschaften. Bei einer eher durchschnittlichen Ladungsträgermobilität ist die mittlere Energie, der ein Elektron-Loch-Paar bedarf mit  $\omega = 2.95$  eV vergleichsweise klein. Aus hochreinem Germanium lassen sich Dioden mit besonders großen aktiven Volumina fertigen, welche durch das Prinzip einer p-i-n Diode realisiert werden (Abbildung 3). Gegenüber anderen Materialien, die für ein aktives Detektorvolumen vergleichbare Eigenschaften aufweisen, sind die Photonenwechselwirkungsquerschnitte bei Germanium mit Z = 32 entsprechend höher (Abbildung 2).



Abbildung 3 Der Photonennachweis im typischen Energiebereich von Gammastrahlung basiert auf Vollenergiedepositionen, die weniger durch Einzelprozesse sondern vielmehr durch eine Wechselwirkungskette realisiert werden.

Mit diesen Eigenschaften zeichnen sich HP-Ge Detektoren durch ein besonders hohes Energieauflösungsvermögen und ein großes Ansprechvermögen aus. Sie sind somit zur hochauflösenden Spektroskopie von Photonenstrahlung im Energiebereich von wenigen keV bis zu einigen MeV hervorragend geeignet.

Um den Rahmen dieser Anleitung nicht zu sprengen wird an dieser Stelle auf Anhang - C, Anhang - D und Anhang - E verwiesen, in dem näher auf Gammaspektrometrie mit HP-Ge Detektoren, Messaufbauten sowie die auftretenden Probleme eingegangen wird.

### 3.3 Analyse von HP-Ge Spektren

#### Strukturen des Spektrums

Um auf die Struktur des Impulshöhenspektrums eines HP-Ge Detektors einzugehen, wird das quasi-monoenergetische Spektrum einer <sup>137</sup>Cs Quelle (Abbildung 4) diskutiert. Bei der Abregung des Tochterkerns <sup>137</sup>Ba wird mit einer zerfallsbezogenen Emissionswahrscheinlichkeit von  $\nu = 85,1$  % ein Photonen der Energie 661,657 keV emittiert (vgl. Abbildung 19).

Photonen, die mit dem Detektormaterial in Wechselwirkung treten und zu einem Messeffekt führen, lassen sich in drei Gruppen einteilen.

• Photonen, die ihre Energie erst teilweise außerhalb des Detektors und danach in der aktiven Zone deponieren

Durch eine inkohärente Streuung in der Detektorumgebung wird (Abbildung 3) ein Teil der Eingangsenergie des Photons auf ein Comptonelektron übertragen.

Das gestreute Photon wird im Detektor nachgewiesen. Dieses trägt eine Energie von

$$E = E' \cdot \frac{1}{1 + \frac{E'}{m_c c^2} \cdot (1 - \cos(\vartheta))}$$

$$3.1$$

und kann diese im Detektor deponieren. Die Energie des Eingangsphotons wird mit E' und die Energie des gestreuten Comptonphotons mit E bezeichnet. Das Photon kann dabei nicht seine gesamte Energie übertragen. Der maximale Energieübertrag findet bei Rückstreuung ( $\mathcal{G} = 180^{\circ}$ ) statt. Die im Impulshöhenspektrum durch die Rückstreuphotonen entstehende Struktur wird als Rückstreupeak bezeichnet (Abbildung 4  $\mathbb{O}$ ). Mit wachsender Photonenergie im Eingangskanal strebt die Rückstreuenergie gegen

$$E(E' \to \infty) = \frac{m_e c^2}{2} = 255,5 \text{ keV}$$
 3.2

Der Rückstreupeak liegt im Impulshöhenspektrum stets unterhalb dieser Energie.

• Photonen, die ihre Energie erst teilweise im Detektor und danach außerhalb der aktiven Detektorzone deponieren

Durch eine inkohärente Streuung im Detektormaterial wird ein Teil der Eingangsenergie des Photons auf ein Comptonelektron übertragen. Danach verlässt das Photon den Detektor. Der Energieübertrag auf das Comptonelektron ist

$$E_{e} = E' \cdot \left( 1 - \frac{1}{1 + \frac{E'}{m_{e}c^{2}} \cdot (1 - \cos(\vartheta))} \right)$$
 3.3

Die im Impulshöhenspektrum entstehende Struktur wird als Compton-Kante bezeichnet (Abbildung 4<sup>(2)</sup>).

Die zwei Strukturen bilden das Comptonkontinuum und enthalten den Großteil der zu einer Photonenenergie gehörenden, detektierten Ereignisse. Von zentraler Bedeutung ist jedoch der Vollenergiepeak: • Photonen, deren gesamte Energie in der aktiven Zone des Detektors deponiert wird

Die durch das ursprüngliche Photon ausgelöste Wechselwirkungskette führt dazu das die gesamte Photonenenergie in der aktiven Zone des Detektors deponiert wird und dort der Erzeugung von Ladungsträgern dient. Diese Ereignisse bilden im Impulshöhenspektrum eine Häufung. Die Struktur kann bei großer Ereigniszahl durch eine Gaußfunktion angenähert werden und wird als Vollenergiepeak (Abbildung 4 ③) bezeichnet.



**Abbildung 4** Das Impulshöhenspektrum einer <sup>137</sup>Cs Quelle illustriert die Typischen Strukturen eines Gammaspektrums: Rückstreupeak (1), Comptonkante (2) und Vollenergiepeak (3).

Das Messspektrum eines Nuklids welches mehrere Linien emittiert setzt sich aus Vollenergiepeaks und den dazugehörigen Compton-Kontinua zusammen.

Des Weiteren weist das reelle Spektrum einen Messuntergrund auf, welcher in Folge von natürlicher Radioaktivität sowie der atmosphärischen Höhenstrahlung entsteht (Abbildung 5). Die Messuntergründe bilden einen Spektrenuntergrund. Diese Effekte sind besonders eindrucksvoll in einem Spektrum des natürlichen Untergrundes zu sehen.



**Abbildung 5** Das typische Untergrundspektrum ( $ORTEC \ GEM-20190-P$  in 5 cm Blei) zeigt Linien aus dem natürlichen Untergrund, sowie vom Menschen erzeugte Radionuklide.

### Spektrenuntergrund und Messuntergrund

Ein Radionuklid kann durch Gammaspektrometrie nur quantitativ nachgewiesen werden, wenn dessen Zählung im entsprechenden Vollenergiepeak  $N_{\text{Net}}$  größer ist als die statistische Unsicherheit des Spektrenuntergrundes. Damit ergibt sich bei gegebenem Detektoraufbau eine Aktivitäts-Nachweisgrenze.

Weiterhin kann es vorkommen, das der Messuntergrund zu einem Vollenergiepeak innerhalb des Spektrenbereiches beiträgt, in dem der erwartete Peak des nachzuweisenden Nuklides liegt, so dass sich beide Vollenergiepeaks überlappen oder gar überlagern (Abbildung 6).

Durch die Kenntnis der Halbwertsbreite bei entsprechender Energie können die Nettopeakflächen von überlagernden Peaks bestimmt werden (Abbildung 6). Für die Analyse überlappender Peaks kann zum Beispiel eine vom Nuklid des Messuntergrundes emittierte Linie zum Untergrundabzug herangezogen werden.

Bei Überlagerung zweier Peaks, deren Ursprung in Aktivitäten der Probe mit unterschiedlicher Halbwertszeit liegt, kann auch der zeitliche Verlauf des Spektrums aufgezeichnet werden (List-Mode). Die zeitliche Änderung der Netto-Peakfläche wird über der Messzeit aufgetragen und durch ein mehrkomponentiges Zerfallsgesetz approximiert. Sind die Halbwertszeiten bekannt lassen sich die zu einem gemeinsamen Vollenergiepeak beitragenden Aktivitäten ermitteln.



**Abbildung 6** Bei der gammaspektrometrischen Analyse von <sup>7</sup>Be in einer Bodenprobe besteht die Schwierigkeit darin, das der Vollenergiepeak bei einer Energie von  $E_{\gamma} = 477,595$  keV von einer Vielzahl von Linien aus dem natürlichen Untergrund begleitet und von einer von <sup>228</sup>Ac emittierten Linie direkt überlagert wird.

#### Hinweise zur Auswertung von Spektren

Für eine erfolgreiche Analyse der Spektren sollten folgende Punkte beachtet werden:

- Durch eine präzise Energiekalibrierung wird die Abweichung zwischen realer und gemessener Peakenergie minimiert. Schätzen Sie die maximal möglichen Abweichungen schon während der Kalibrierung ab, um das Energieintervall für unbekannte Peaks möglichst eng einzugrenzen.
- Die Messzeit muss an die Aktivität der Proben angepasst werden. Erst oberhalb bestimmter Impulszahlen im Peak (Netto-Peakfläche) besteht eine ausreichende statistische Sicherheit. Berechnen Sie immer den statistischen Fehler der Messungen und legen Sie einen akzeptablen Fehler fest und passen notfalls die Messzeit an.
- Für die Zuordnung eines Nuklids zu einer Peakenergie stellt die Internet-Bibliothek Table of Isotopes unter http://ie.lbl.gov/toi ein nützliches Werkzeug dar. Die Table of Isotopes enthält auch viele weitere Nukliddaten wie Emissionswahrscheinlichkeiten, Zerfallsschemata etc. Damit lassen sich verschiedene Nuklide die Gammastrahlung im gesuchten Energieintervall emittieren ausschließen:

Wird anhand eines auftretenden Peaks ein Nuklid vermutet, sollte im Emissionsspektrum kontrolliert werden, welche wichtigen Emissionen noch auftreten müssten. Zumindest solche mit derselben oder höherer Emissionswahrscheinlichkeit sollten dann im Spektrum sichtbar sein.

• Sehr viele Nuklide haben nur eine kurze Halbwertszeit. Aus diesem Grund können sie meistens ausgeschlossen werden. Ausnahmen bilden "frische" Proben (jünger als 10 Halbwertszeiten) sowie alle Nuklide der Zerfallsreihen, welche aus den Mutternukliden nachgebildet werden.

### 3.4 Aktivitätsbestimmung

Die mit dem HP-Ge Detektor aufgenommenen Spektren, insbesondere entsprechende Vollenergiepeaks dienen als Grundlage für eine sowohl qualitative als auch quantitative Aktivitätsanalyse. Grundvoraussetzung dafür ist die genaue Kenntnis der Detektorcharakteristika

- Energiekalibrierung
- Ansprechvermögen
- Energie-Auflösungsvermögen

Die Energiekalibrierung ermöglicht zunächst die qualitative Analyse und damit eine Nuklididentifikation. Unter Kenntnis von Ansprech- und Auflösungsvermögen der zugeordneten Linien bekannter Emissionswahrscheinlichkeiten ist eine qualitative Kenntnis möglich. Darüber Analyse hinaus erlaubt die des Energie-Auflösungsvermögens eine Identifikation und Analyse überlagerten von Vollenergiepeaks (Abbildung 6).

Entsprechend 3.1.2 erzeugt Photonenstrahlung der Energie E einen Vollenergiepeak dessen Mitte im Kanal K liegt. Mit Nukliden bekannter  $\gamma$ -Energie wird eine Energie-Kanal Zuordnung E(K) - die Energiekalibrierung erstellt. Mit der zugehörigen Halbwertsbreite der Peaks (Full Width at Half Maximum) wird das Energieabhängige Auflösungsvermögen bestimmt.

Der Inhalt der entsprechenden Vollenergiepeaks bzw. deren Zählung  $N(\gamma_i)$  wird zur Bestimmung des Ansprechvermögens zugrunde gelegt. In diesem Versuch wird sich auf eine spezielle Definition des Ansprechvermögens - das absolute Vollenergieansprechvermögen (VEAV) beschränkt (vgl. folgender Abschnitt, Anhang - F). Dieses gibt die Wahrscheinlichkeit an, das ein von einem Quellpunkt ausgesandtes Photon seine gesamte Energie im Detektor deponiert und im Vollenergiepeak registriert wird.



Abbildung 7 Vollenergiepeaks lassen sich aufgrund der statistischen Natur ihrer Entstehung durch eine Gaußfunktion annähern. Die im Beispiel zum linear angenommenen Untergrund addierte Gaußfunktion ist durch Peaklage  $E_{\text{center}}$ , Halbwertsbreite *FWHM* und Peakfläche  $N_{\text{Net}}$  definiert.

Die Aktivitätsbestimmung erfolgt nach den Arbeitsschritten:

- Aufnahme von Kalibrierspektren
  - ➢ Energiekalibrierung
  - Bestimmung des absoluten oder relativen Vollenergieansprechvermögens (Summenkorrektur [Sem90]) sowie des totalen Ansprechvermögens
- Aufnahme eines Untergrundspektrums
- Aufnahme von Messspektren
- Qualitative- und quantitative Analyse
  - $\succ$  Untergrundkorrektur
  - $\succ$  Summationskorrektur
  - ▶ Korrektur von Selbstabschirmung und geometrischen Effekten

Die Energiekalibrierung und das Bestimmung des Vollenergieansprechvermögens sind in Anhang - F beschrieben.

#### Bestimmung des absoluten Vollenergieansprechvermögens

Das absolute Vollenergieansprechvermögen

$$\varepsilon(E_{\gamma}) = \frac{\text{registrierte Ereignisse}}{\text{mögliche Ereignisse}} = \frac{N(\gamma_i)}{A \cdot t_L \cdot v(\gamma_i)}$$
 3.4

stellt die in der totzeitkorrigierten Messzeit  $t_{\rm L}$  im Peak gezählten Ereignisse  $N(\gamma_i)$  der Anzahl von einer Quelle der Aktivität A tatsächlich emittierten Photonen  $\gamma_i$  mit der Emissionswahrscheinlichkeit  $\nu(\gamma_i)$  gegenüber.

Der Vollenergiepeakinhalt kann auch zugrunde gelegt werden, um Aktivitäten relativ zu den zugehörigen bekannten Standards (<sup>60</sup>Co, <sup>56</sup>Mn, <sup>22</sup>Na,...) in entsprechender Geometrie und Materialbeschaffenheit zu bestimmen. Damit wird ein relatives relative Ansprechvermögen definiert (vgl. Anhang - F). Da viele der u.A. in Aktivierungsexperimenten erzeugten Aktivitäten sehr kurzlebig sind, existieren zu den meisten Radionukliden keine Kalibrierstandards. Für eine genaue daher Aktivitätsbestimmung von beliebigen Nukliden ist das absolute Vollenergieansprechvermögen Bedeutung. Unter Kenntnis des von der entsprechenden Zerfallschemata wird das totale Ansprechvermögen (TAV) zur Korrektur von Summationseffekten herangezogen (Anhang - F).

Die Bestimmung des absoluten Vollenergieansprechvermögens erfolgt mit Kalibrierquellen einer Punkt oder Volumengeometrie. Für das Kalibriernuklid <sup>137</sup>Cs, das im wesentlichen nur eine Linie emittiert, ist die Bestimmung des TAV sowie des absoluten VEAV klar: Als Grundlage für das TAV dient die Zählung des Compton-Kontinuums mit dem Vollenergiepeak, beim VEAV wird lediglich der Vollenergiepeak zugrunde gelegt.

Für Kalibriernuklide bei denen Summationseffekte in Folge kaskadierender Linien auftreten ist die Bestimmung von TAV und VEAV schwieriger. Mit Hilfe unterschiedlicher experimenteller Verfahren oder einer Monte-Carlo Simulation der Detektoranordnung lassen sich beide Detektor-Charakteristiken aus den Kalibrierspektren linienweise gewinnen. Für wenige Kalibriernuklide einzelner und HP-Ge Detektortypen sind tabellierte Standardgeometrien Werte für Konversionsfaktoren zwischen relativen- und absoluen-Vollenergieansprechvermögen zur Korrektur der Koinzidenzsummation in der Literatur zu finden.

Das VEAV und TAV nehmen mit abnehmender Photonenenergie erst zu wie aus den Wechselwirkungsquerschnitten für Photonen (Abbildung 1) zu erwarten ist (Abbildung 8). Da der Wechselwirkungsquerschnitt mit abnehmender Energie stark ansteigt wird das Photonenfeld nicht nur durch Wechselwirkung im Detektor sondern auch im Strahlungs-Eintrittsfenster sowie den inaktiven Schichten des Detektorkristalls zunehmend geschwächt. Das sind gegenläufige Effekte die zu einer starken Abnahme des VEAV sowie der Ausbildung des Knies bei 100..200 keV führen. Das zusammenwirken aller Prozesse ist zu Komplex, um eine physikalische Grundlage für einen formalen Zusammenhang zu liefern.

Die Approximation einer analytischen Funktion aus diesen Messwerten gestaltet sich sehr unterschiedlich. Für die Region des "Knies" existieren verschiedene analytische Funktionen. In guter Näherung ist für die Approximation im Energiebereich oberhalb des "Knies" eine Exponentialfunktion zweiter Ordnung möglich. Oberhalb einer Photonenenergie von ca. 2 MeV gestaltet sich der analytische Zusammenhang aufgrund des einsetzenden Paarbildungseffektes wieder schwieriger.



Abbildung 8 Der energieabhängige Verlauf des Vollenergieund des totalen HP-Ge Detektors Ansprechvermögens eines spiegeln die Energieabhängigkeit der Wechselwirkungsquerschnitte für Photonen wieder: Die mit abnehmender Photonenenergie stark steigende Absorption im aktiven Detektorvolumen führt neben einem steigenden VEAV auch zu einer verstärkten abschirmenden Wirkung von Eintrittsfenster und Totschicht des HP-Ge Kristalls – die gegenläufigen Effekte führen zu einer Abnahme des VEAV mit weiter abnehmender Energie.

#### Analyse des Messspektrums

Um alle Untergrundeffekte des Proben-Messspektrumspektrums zu erfassen, sollte die Untergrundmessung länger als die eigentliche Aufnahme des Probenspektrums erfolgen. Die darin enthaltenen Vollenergiepeaks und Strukturen mit deren Lage und Ursprung sind zu analysieren.

Sind die in einer Probe enthaltenen Radionuklide bekannt, so ist bei der Aufnahme des entsprechenden Impulshöhenspektrums darauf zu achten, das die Messdauer je nach der verlangten Messunsicherheit optimiert wird. Unbekannte Radionuklide müssen anhand der gemessenen Photonenstrahlung identifiziert werden. Gibt es eine Überlagerung von Vollenergiepeaks mit Linien aus dem Untergrundspektrum, so ist eine Untergrundkorrektur nötig.

Für die Vollenergiepeaks werden Funktionen Analyse der eines Spektren-Auswertungsprogramms (GammaVision32, GENIE2000, FitzPeaks, etc.) oder Peakanalyse Routinen gebräuchlicher Analysesoftware (ROOT, Origin,...) genutzt. Unabhängig von der Form des Untergrundes auf den ein Peak aufsitzt (z.B. Compton Kontinuum), lässt sich die Anzahl der im Vollenergiepeak enthaltenen Ereignisse mit ihrer statistischen Unsicherheit angeben (Netto-Peakfläche).

Je nach Kalibriergeometrie ist bei ausgedehnten Proben unter Umständen auch eine Korrektur notwendig, die der Selbstabsorption sowie der geometrischen Ausdehnung Rechnung trägt notwendig.

Wird die Aktivität aus den Nettopeakflächen durch das absolute Vollenergieansprechvermögen berechnet, so ist oft eine Summationskorrektur erforderlich. Die Konversionsfaktoren sind ebenfalls von Kalibrier- und Messgeometrie sowie den entsprechenden Geometrischen- und Absorptions-Eigenschaften abhängig (siehe Kapitel 3.5, Anhang - D).

Mit dem für die jeweilige Messung angewandten Ansprechvermögen  $\varepsilon(E_{\gamma})$  wird unter Verwendung eines Korrekturenfaktors bezüglich Summation  $\kappa(\gamma_i)$  bzw. Selbstabsorption und Geometrie  $\zeta(E_{\gamma})$  (siehe Gleichung **3.6**, **3.7** bzw. Kapitel 3.5) die Aktivität

$$A = \frac{N(\gamma_i)}{\varepsilon(E_{\gamma}) \cdot t_L \cdot \nu(\gamma_i)} \cdot \zeta(E_{\gamma}) \cdot \kappa(\gamma_i)$$
3.5

entsprechend Gleichung **3.4** anhand der Linie  $\gamma_i$  mit der Emissionswahrscheinlichkeit  $\nu(\gamma_i)$  berechnet. [1] [5] [6] [7] [10]

#### 3.5 Geometrische- und Selbstabsorptionseffekte

Gammaspektrometrische Messungen werden von der Beschaffenheit des Probenmaterials sowie dessen geometrischer Anordnung zum Detektor beeinflusst. Ein Teil der vom Probenmaterial ausgesandten Photonenstrahlung erreicht den Detektor nicht, da sie in Folge der Eingangs beschriebenen Wechselwirkungseffekte vom Probenmaterial absorbiert wird. Der Grad der Schwächung durch diese Selbstabsorption ist von der Energie der Strahlung, der Elementzusammensetzung des Probenmaterials (effektive Ordnungszahl Z) und dessen Massendichte abhängig. Des Weiteren ist die geometrische Anordnung des Probenmaterials relativ zum Detektor (effektiver Raumwinkel) ausschlaggebend.

Mit Hilfe von experimentellen oder rechnerischen Verfahren ist dennoch eine genaue Aktivitätsbestimmung von Volumenproben möglich. Die Detektorantwort kann bei gegebener Messgeometrie durch Monte Carlo Programme simuliert werden, wodurch sich Konversionsfaktoren bestimmen lassen.

• Durch Koinzidenzsummation (Anhang - D) kommt es zu verminderten oder überhöhten Zählungen im jeweiligen Vollenergiepeak  $\gamma_i$ . Bei gegebener Messgeometrie wird das Verhältnis der verfälschten Zählung  $N_{\text{Mess}}(\gamma_i)$  und den tatsächlich registrierten Vollenergieereignissen  $N_{\text{Korrigiert}}(\gamma_i)$  durch den Konversionsfaktor

$$\kappa(\gamma_i) = \frac{N_{Korrigiert}(\gamma_i)}{N_{Mess}(\gamma_i)}$$
3.6

beschrieben.

• Eine Möglichkeit der Selbstabsorption und Geometrischen Effekten Rechnung zu tragen lässt sich in einem Konversionsfaktor

$$\zeta(E_{\gamma}) = \frac{\varepsilon_{Mess}(E_{\gamma})}{\varepsilon_{Punkt}(E_{\gamma})}$$

$$3.7$$

beschrieben, der in diesem Beispiel das Ansprechvermögen einer nahezu absorptionsfreien Kalibrier-Punktquelle  $\varepsilon_{Punkt}(E\gamma)$  dem der reellen Messgeometrie  $\varepsilon_{Messt}(E_{\gamma})$  gegenüberstellt. Für experimentelle Methoden eignet sich die Herstellung von Kalibrierquellen der gewünschten Messgeometrie bzw. Probenbeschaffenheit, mit denen die Kalibrierung eines relativen Ansprechvermögens durchgeführt wird (Anhang - F). Durch die Kombination beider Verfahren lässt sich die Kalibrierung optimieren.



**Abbildung 9** *Links:* eine Punktquelle an verschiedenen Orten veranschaulicht die geometrische Abhängigkeit des Detektor-Ansprechvermögens. *Rechts:* Bei einer ausgedehnten Messgeometrie kommt es zusätzlich zur Absorption der Photonenstrahlung in der Probe selbst.

### 4 Versuchsvorbereitung / Fragen zum Experiment

Der Versuch ist dahingehend vorzubereiten, das die Wechselwirkung von Photonenstrahlung mit Materie, die Entstehung eines Messsignals und das Zustandekommen des Impulshöhenspektrums verstanden sind. Setzen Sie sich mit den beiden Detektorcharakteristiken Energiekalibrierung und dem absoluten Vollenergieansprechvermögen auseinander, so dass Sie Detektorkalibrierung und Aktivitätsbestimmung nachvollziehen können. Konversionsfaktoren für die Korrektur von Koinzidenz-Summation, von Geometrie- und Selbstabsorptionseffekten werden Ihnen vom Betreuer zur Verfügung gestellt – die Effekte werden im Versuch besprochen.

Die folgenden Fragen sollen bei der Versuchsvorbereitung helfen:

- 1. Nennen Sie drei Prozesse die durch Radioaktivität beschrieben werden.
- 2. Nennen Sie drei Teilchen, die bei radioaktiven Prozessen emittiert werden können.
- 3. Nennen Sie zwei Eigenschaften, durch die sich Gammastrahlung gegenüber anderen bei radioaktiven Prozessen emittierten Strahlungen zur Aktivitätsbestimmung auszeichnet.
- 4. Nennen Sie das radioaktive Zerfallsgesetz. Eine Messprobe enthält ein Radionuklid dessen Halbwertszeit drei Jahre beträgt, mit einer Aktivität von  $A_0 = A(t = 0) = 400$  Bq. Berechnen Sie die Aktivität zum Zeitpunkt t = 12 a.
- 5. Nennen Sie drei Prozesse die die Wechselwirkung zwischen Photonen und Materie beschreiben. Ordnen Sie diese in Ihrer Reihenfolge entsprechend ihrer Dominanz in unterschiedlichen Energiebereichen.
- 6. Beschreiben Sie kurz die Entstehung eines Messeffektes bei der Detektion von Gammastrahlung mit HP-Ge Detektoren und das Zustandekommen eines Impulshöhenspektrums.
- 7. Wie ist das absolute Vollenergieansprechvermögen definiert? Versuchen Sie neben der formalen Notation eine verbale Formulierung zu finden. Beschreiben Sie kurz die zur Berechnung des absoluten Vollenergieansprechvermögens notwendigen Messgrößen.
- 8. Wie lässt sich bei der Kalibrier-Messung auf die Unsicherheit des absoluten Vollenergieansprechvermögens Einfluss nehmen.
- 9. Nennen Sie die im Impulshöhenspektrum vorkommenden Strukturen.

# 5 Literatur

[1]	K. DEBERTIN, R.G. HELMER "Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors" North-Holland Amsterdam-Oxford-New York-Tokyo (1988)
[2]	GLENN F. KNOLL <i>"Radiation detection and measurement"</i> second Edition, John Wiley&Sons New York-Chichester-Brisbane-Toronto- Singapore (1989)
[3]	G. GILMORE, J. D. HEMINGWAY <i>"Practical Gamma-Ray Spectrometry"</i> John Wiley&Sons New York-Chichester-Brisbane-Toronto-Singapore (2004)
[4]	O.C. ALLKOFER: "Teilchendetektoren" Verlag Karl Thiemig (1971)
[5]	M. KORUN, R. MARTINČIČ "Coinciddence summing in gamma and X-ray spectrometry" Nuclear Instruments and Methods A325 (1993) 487-484 North-Holland
[6]	T. M. SEMIKOW, G. MEHMOOD, P. P. PARKEH, M. VIRGIL "Coincidence Summing in Gamma Ray Spectroscopy" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A290 (1990) 437-444 North-Holland
[7]	R. J. GEHRKE, R. G. HELMER, R. C. GREENWOOD "Precise Relative -Ray Intensities for Calibration of Ge Semiconductor Detectors" Nuclear Instruments and Methods 147 (1977) 405-423 North-Holland
[8]	O.C. ALLKOFER: "Teilchendetektoren" Verlag Karl Thiemig (1971)
[9]	W. MEILING "Kernphysikalische Elektronik" Akademie-Verlag Berlin (1975)
[10]	G. J. MC CALLUM G. E. COOTE "Influence of Source-Detector Distance on relative Intensity and angular Correlation Measurements with Ge(Li) Spectrometers" Nuclear Instruments and Methods 130 (1975) 189-197 North-Holland
[11]	H. IBACH, H. LÜTH "Festkörperphysik" Springer-Verlag (1990)
[12]	E. M. Pell J. Appl. Phys. Vol. 31 (1960)

[13]	G. GILMORE, J. D. HEMINGWAY "Practical Gamma-Ray
	$Spectrometry" \  \  {\rm John} \  \  {\rm Wiley} \& {\rm Sons} \  \  {\rm New} \  \  {\rm York-Chichester-Brisbane-}$
	Toronto-Singapore (2004)
[14]	NuDat 2.4, National Nuclaear Data Center, Brookhaven National Laboratory, ENSDF and Nuclear Wallnet Cards
[15]	J. E. MARTIN "Physics for Radiation Protection", John Wiley&Sons (2000)

## Anhang - A Radioaktivität

Radioaktivität beschreibt das Phänomen der spontanen Kernumwandlung. Ein instabiler Kern wandelt sich mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit spontan über verschiedene Prozesse unter Energiegewinn in einen anderen Kern um. Das kann durch  $\alpha$ -Emission,  $\beta^+$  bzw.  $\beta^-$ Umwandlung oder Elektroneneinfang geschehen.

 ${}^{A}_{Z}X_{N} \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}Y_{N-2} + {}^{4}_{2}He$   $\alpha$ -Emission  ${}^{A}_{Z}X_{N} \rightarrow {}^{A}_{Z+1}Y_{N-1} + e^{-} + \bar{v}_{e} \qquad \beta^{-}$ -Umwandlung  ${}^{A}_{Z}X_{N} \rightarrow {}^{A}_{Z-1}Y_{N+1} + e^{+} + v_{e} \qquad \beta^{+}$ -Umwandlung  ${}^{A}_{Z}X_{N} + e^{-} \rightarrow {}^{A}_{Z-1}Y_{N+1} + \bar{v}_{e} \qquad \text{Elektroneneinfang}$ 

Ist der entstehende Kern weiterhin instabil, so entsteht eine Zerfallskette über mehrere Stufen, in denen es dann auch unterschiedliche konkurrierende Zerfallswege geben kann.

Selten befindet sich der entstehende Tochterkern im Grundzustand, vielmehr verbleibt er zunächst in einem angeregten Zustand und geht dann unter Aussendung von  $\gamma$ -Strahlung oder durch innere Konversion in den Grundzustand über. Die innere Konversion ist ein mit der  $\gamma$ -Abregung konkurrierender Prozess, bei dem sich der Kern in einem einstufigen Prozess durch Übertrag von Energie auf ein Hüllenelektron abregt.

Weiterhin entstehen beim Elektroneneinfang sowie durch innere Konversion Vakanzen in den Elektronenschalen. Diese werden durch Elektronen aus den darüber liegenden Schalen unter Aussendung von Röntgenstrahlung oder Augerelektronen aufgefüllt.

In Abbildung 10 ist die Umwandlung von  ${}^{57}\mathrm{Co}$  zu ${}^{57}\mathrm{Fe}$  durch Elektroneneinfang und die anschließende Abregung dargestellt.

Dieser findet nahezu Vollständig in den zweiten angeregten Zustand des Tochterkerns  $^{57}$ Fe (99,8%) statt; andere Zerfallskanäle sollen hier außer Acht gelassen werden. Die

Abregung erfolgt durch innere Konversion, sowie die Aussendung eines Photons ( $\gamma_i$ ). Sie vollzieht sich direkt oder indirekt über den ersten angeregten Zustand in den Grundzustand. Der direkte Weg ( über  $\gamma_3$ &ce ) erfolgt in 12% der Umwandlungen und der indirekte (über  $\gamma_2$ &ce bzw.  $\gamma_1$ &ce) zu 87,62%.

Im linken Modell ist nur die Abregung durch  $\gamma_1$  und den dazugehörigen Konversionsprozessen veranschaulicht. Anhand des Zerfallsschemas und *Tabelle 1* lässt sich die Darlegung nachvollziehen.



**Abbildung 10** Der Elektroneneinfang von <sup>57</sup>Co findet zum Großteil in den zweiten angeregten Zustand von des Tochterkerns <sup>57</sup>Fe statt (rechts). Dieser regt sich unter Aussendung von Gammastrahlung und Konversionselektronen ab. In Folge der entstehenden Vakanzen wird Röntgenstrahlung bzw. werden Augerelektronen emittiert (links).

Photonen [14]			El	Elektronen [14, 15]		
$E \; [{ m keV}]$	<b>v</b> [%]	Zuordnung	$E \; [{ m keV}]$	v [%]	Zuordnung	
14,413	9,16	$\gamma_1$	7,3	71,1	${\rm CE}{\rm K}\gamma_1$	
$122,\!0614$	$85,\! 6$	$\gamma_2$	$114,\!9$	$1,\!83$	${\rm CE}~{\rm K}~\gamma_2$	
$136,\!4743$	$10,\!68$	γ <sub>3</sub>	129,4	$1,\!3$	${\rm CE}~{\rm K}~\gamma_3$	
6,404	$32,\!9$	$K_{\alpha 1}$	$13,\!6$	$7,\!36$	${\rm CE} \mathrel{\rm L} \gamma_1$	
$6,\!391$	$16,\! 6$	$K_{\alpha 2}$	121,2	$0,\!192$	${\rm CE} \mathrel{\rm L} \gamma_2$	
7,058	$3,\!91$	$K_{\beta 1}$	122	$0,\!0317$	${\rm CE}~{\rm M}~\gamma_2$	
7,058	$2,\!00$	$K_{\beta 3}$	$5,\!62$	105,1	Auger KLL	
			$0,\!67$	251	Auger KLM	

Eine wesentliche Eigenschaft des radioaktiven Zerfalls ist die statistische Natur der Ereignisse. Jeder instabile Kern besitzt unabhängig von seiner Vorgeschichte die gleiche Umwandlungswahrscheinlichkeit, wobei der Zeitpunkt seiner Umwandlung unbestimmt ist. Bekannt ist nur die Wahrscheinlichkeit, mit der das Ereignis innerhalb eines vorgegebenen Zeitintervalls eintritt. Daher ist für sehr viele zum Zeitpunkt t vorhandene, gleichartige, instabile Kerne N die Anzahl der im Mittel auftretenden Umwandlungen dN anhand des Zerfallsgesetzes

$$dN = -\lambda \cdot N \cdot dt \tag{5.1}$$

berechenbar, wobe<br/>i $\lambda$ die nuklidspezifische Zerfallskonstante darstellt. Daraus folgt das exponentielle Umwandlungsgesetz in der Form

$$N(t) = N_o e^{-\lambda \cdot t}$$
5.2

N(t) ist die Zahl der Kerne zum Zeitpunkt t und  $N_0$  die Zahl der Kerne zum Zeitpunkt t = 0 s. Die Lösung der *Gleichung* 4 für den Fall  $N(t)=1/2 \cdot N_0$  ergibt die sogenannte Halbwertszeit  $T_{1/2}$  entsprechend der Beziehung

$$T_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \tag{5.3}$$

Umwandlungsrate oder die Aktivität  $\operatorname{Zahl}$ Die A  $\operatorname{ist}$ die  $\operatorname{der}$ spontanen Kernumwandlungen pro Zeiteinheit und zur Anzahl der instabilen Kerne proportional. Es gilt somit

$$A(t) = -\frac{dN}{dt} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \cdot N(t)$$
 5.4

und daraus

$$A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t} = A_0 \cdot \left(\frac{1}{2}\right)^{t/T_{1/2}}$$
 5.5

wobei  $A_0 = A(0)$  die Aktivität zum Zeitpunkt  $t_0 = 0$  s und A(t) die Aktivität zum Zeitpunkt t ist. Die Einheit der Aktivität ist  $s^1$  mit dem eigenen Namen Becquerel (Bq). Die wichtigste historische Aktivitätseinheit war das *Curie* (Ci), welches der Aktivität von 1  $g^{226}$ Ra entspricht. Diese Einheit spielt z.T. noch heute eine Rolle, die Umrechnung erfolgt über 1 Ci = 3,7 10<sup>10</sup> Bq. Dabei stellt die Aktivität infolge der statistischen Natur der Radioaktivität nur einen Erwartungswert der Zahl der

wirklich stattfindenden Zerfälle dar. Diese unterliegt der sogenannten Poisson-Verteilung (siehe Versuch PV!). Eine der Eigenschaften der Poisson-Verteilung ist die genau definierte Varianz, welche immer gleich der Zahl der beobachteten Ereignisse N ist

$$\sigma = \sqrt{N}$$
 5.6

# Anhang - B Strahlungs-Detektoren

Die Wechselwirkungen von Photonen mit Materie kann man sich zu nutze machen, um einen Messeffekt zu erzeugen, der proportional zu der Ausgangsenergie des nachzuweisenden Teilchens ist. Dazu gibt es eine Vielzahl von Anwendungen, wobei hier auf den Szintillations- und den Halbleiterdetektor eingegangen werden soll.

### Szintillationsdetektoren [8]

Szintillationsdetektoren bestehen im Wesentlichen aus zwei Teilen: einem Szintillator und einem Sekundärelektronenvervielfacher (bzw. einer Photodiode).

Ein Szintillator hat die Aufgabe bei Teilchendurchgang Lumineszenzlicht zu erzeugen. Szintillatoren gibt es in allen Aggregatzuständen, sowie im festen Zustand als organischen oder anorganischen Szintillator. Bei anorganischen Einkristallen ist der Szintillationsprozess als Gittereigenschaft verstanden und bei organischen als molekularer Prozess.

Damit in einem Medium Lumineszenz beobachtbar ist, muss dieses für Licht durchgängig sein. Da dieses Medium das erzeugte Licht wieder absorbiert, bringt man eine Verunreinigung ein, um Licht einer Wellenlänge zu erzeugen, die vom Medium nicht absorbiert wird.

Bei anorganischen Szintillatoren wird dieser Mechanismus mit dem Bändermodell erklärt. Nimmt ein Elektron einen Bruchteil der von einem Photon kommenden Energie auf, so kann es aus dem Valenzband in das Leitungsband angehoben werden. Das Elektron und das im Valenzband zurückbleibende Loch können sich im Kristall frei bewegen, machen den Kristall also elektrisch leitfähig. Rekombiniert ein Elektron Loch Paar, so wird die entsprechende Energie abgestrahlt.

Erreicht das Elektron nicht ganz das Valenzband, so kann dieses zusammen mit dem entstehenden Loch ein System bilden welches elektrostatischer Anziehung unterliegt wie ein Wasserstoffatom oder ein Positronium. Dieses kann sich dann ebenfalls frei durch den Festkörper bewegen, trägt jedoch nicht zur elektrischen Leitfähigkeit bei, da seine Nettoladung Null ist. Auch in verschiedenen Anregungszuständen, welche man sich in einem Band unter dem Valenzband vorstellt, kann man dieses System vorfinden. Ein solches System nennt man Exziton.

Das Einbringen von Fremdatomen führt dazu dass zwischen Valenz und Leitungsband zusätzliche Energietherme entstehen; diese als Aktivatortherme bezeichnet. Treffen durch den Festkörper diffundierende Elektronen oder Exzitonen auf ein solches Aktivatorzentrum geben sie ihre Energie über dieses ab. Damit werden Phononenschwingungen angeregt und zu einem Bruchteil Photonen erzeugt.

Diese Photonen lösen nun an der Photokathode des Sekundärelektronenvervielfachers primäre Elektronen aus, deren Anzahl wiederum im Zusammenhang mit der im Szintillator erzeugten Lichtintensität steht. Diese werden zur ersten Dynode beschleunigt und erzeugen an dieser Sekundärelektronenemission. Schaltet man mehrere Elektroden zu einem System von Parallelelektroden zusammen, so erreicht man eine Verstärkung von  $10^{6..8}$ , so dass aus den primär erzeugten Elektronen ein messbarer Strom erzeugt wird.

### Halbleiterdetektoren [8]

Halbleiter verhalten sich bei Zimmertemperatur wie ein Isolator; zwischen Valenz und Leitungsbad liegt eine Energielücke  $E_{Gap}$ . Dabei sind alle möglichen Zustände im Valenzband besetzt. Das letzte, mit Elektronen besetzte Band eines Leiters ist nicht vollbesetzt (*Abbildung 11*). Das ist die Vorraussetzung für einen Leitungsprozess [11].



Abbildung 11 Im Bändermodell lässt sich die Besonderheit von Halbleitern veranschaulichen: im Gegensatz zum Leiter liegt das Ferminiveau zwischen Valenz- und Leitungsband. Der Abstand zwischen beiden Bändern ist gerade so, das Elektronen mit entsprechenden Anregungsprozessen in das Leitungsband gelangen können, was beim Isolator nicht möglich ist.

Ein geladenes Teilchen kann im Halbleiter durch Energieübertrag Elektronen aus dem Valenzbad ins Leitungsband ,heben', wobei im Valenzband positive Löcher zurückbleiben. Somit sind Zustände im Valenz- und Leitungsband nur teilweise besetzt, was die Grundvoraussetzung für den Leitungsprozess schafft.

Das kann auch aufgrund thermischer Anregung geschehen. Wird diese nicht durch entsprechende Kühlung (Peletier-Element bis zu 248°K,  $LN_2$  bis zu 77°K) unterdrückt, so verursacht das, je nach Größe der Energielücke, ein Rauschsignal.

Alternativ lässt sich, entsprechend der Verwendung, bei gegebener Temperatur, ein Halbleitermatereal mit einer optimalen Energielücke verwenden.

Durch die bei der Wechselwirkung von Photonen mit Materie auftretenden Prozesse, werden geladene Teilchen erzeugt, die die Anregung bewirken.

Die Anzahl der erzeugten Ladungsträger ist abhängig von der mittleren Ionisierungsenergie im Halbleiter. Durch Anlegen einer Spannung, einen Strom erzeugt. Die Integration in einem ladungsempfindlichen Vorverstärker, erzeugt ein Signal, welches proportional zur erzeugten Ladung bzw. zur Ausgangsenergie des Teilchens ist.

Um dieses Prinzip nutzen zu können, muss das Material jedoch sehr rein sein, was aus unterschiedlichen Gründen nicht immer der Fall ist. Daher nutzt man auch die Eigenschaften eines p-n-Überganges von dotierten Halbleitern. Der p-n-Übergang verhält sich wie eine Diode. In Sperrrichtung entsteht am p-n-Übergang bezüglich der vorhandenen Ladungsträger eine verarmte Schicht deren Größe vom angelegten Feld abhängt. Tritt ein ionisierendes Teilchen in diesem Bereich in Wechselwirkung mit dem Halbleitermaterial, so werden Elektron-Loch Paare erzeugt. Diese werden durch das Elektrische Feld aus der Verarmungsschicht herausbewegt und führen so zu einem Stromfluss, welcher integriert wieder zu einem Ausgangssignal führt. Nutzt man den p-n-Übergang als aktives Volumen, so erreicht man nur sehr kleine Sperrschichtdicken von bis zu 2 mm. [9]

Das aktive Volumen kann durch Nutzung eines p-i-n Überganges gesteigert werden. Diese verfügen neben p- bzw. n-dotiertem Halbleiter noch über eine große, hochohmige, nahezu eigenleitende *(intrinsic)* Schicht.

Durch Dotierung von p-leitendem Halbleitermaterial mit Donatoren (z.B. Li), lässt sich eine Eigenleitung erzeugen [12]. Auf diese Weise kann die empfindliche Zone des Halbleiterdetektors von einigen Millimetern bis auf 20 mm vergrößert werden.

Mit wachsendem technischem Fortschritt, ist die Herstellung von Halbleitern mit weniger Fremdatomen als  $10^{10}$  cm<sup>-3</sup> möglich geworden. Da sich Verunreinigungen bevorzugt in der festen als der Flüssigen Phase einer Schmelze befinden, lässt sich die Reinheit Stufenweise bis zu  $10^9$  cm<sup>-3</sup> steigern. Der entstandene Kristall wird nach seiner Restverunreinigung als  $\pi$ - oder v-Typ klassifiziert. [2]

Anhand des v-Typ Kristalls soll kurz auf die Orientierungsmöglichkeiten der p-n-Kontaktierung und deren Wichtigkeit für die Verwendung eingegangen werden. Die pv-Einheit wird hierbei als "gleichrichtende-Schicht", die n-Schicht als "Blockade" bezeichnet.

An den Kontakten sei eine Spannung so angelegt, das in der gleichrichtenden Schicht Mit zunehmender eine Verarmungszone entsteht. Spannung wächst die Verarmungszone der gleichrichtenden Schicht vom dotierten Kontakt an in den hochreinen Kristall hinein; ab einer bestimmten Spannung ist nahezu der gesamte Kristall Ladungsträgerfrei. Das Elektrische Feld nimmt, aufgrund der Zylindersymmetrie, nach innen zu. Daher ist es günstiger, die Orientierung so zu wählen, das die Verarmungszone mit steigender Spannung nach innen zunimmt (Anordnung von außen nach innen  $n^+-\pi-p^+$ ) und zusätzlich die Stärke des Elektrischen Feldes anwächst. Daher der Zuwachs ist der Verarmungsschicht bei gleicher Spannungsänderung in der Konfiguration  $n^+-\pi-p^+$  größer als bei  $p^+-\pi-n^+$ .

Der Außenkontakt eines  $\pi$ -Typ Kristalls weist also eine n<sup>+</sup> Dotierung und der eines v-Typ Kristalls eine p<sup>+</sup> Dotierung auf.

Eine  $p^+$  Dotierung lässt sich durch Ionenimplementierung von Bohr in Schichtdicken von zehntel  $\mu$ m realisieren, wogegen die  $n^+$  Dotierung mehrere hundert  $\mu$ m Dicke misst. Die Kontaktierungen tragen nicht zum aktiven Volumen des Detektors bei und repräsentieren somit eine Totschicht.

Aufgrund der besonders dünnen Außendotierung beim v-Typ, mit einem Material möglichst geringer Ordnungszahl, wird die Wechselwirkung von Photonen auf dem Weg in das aktive Detektorvolumen minimiert, und so eine Messung von niederenergetischen Photonen optimiert.

### Energieauflösungsvermögen (Halbleiterdetektor)

Da der Energieübertrag der primären Ladungsträger bei der Bildung von Elektron-Loch Paaren variiert, unterliegt die Anzahl der mit der Ursprungsenergie erzeugten Ladungsträger ebenfalls einer Statistik. Auch die Messelektronik unterliegt gewissen Schwankungen. Daher haben die  $\operatorname{im}$ Impulshöhenspektrum entstehenden Vollenergiepeaks eine gewisse Energiebreite. Das Verhältnis von Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum) zur absoluten Energie eines Ereignisses wird als relatives Energieauflösungsvermögen bezeichnet. Während die Energiebreite zunehmender Photonenenergie immer größer wird,  $\operatorname{mit}$ sinkt das relative Energieauflösungsvermögen.

Die mittlere Energie für die Bildung eines Elektron-Loch Paares in einem Halbleiter ist ein Maß für das erreichbare Energieauflösungsvermögen.

## Anhang - C Verwendung von HP-Ge Detektoren

HP-Ge (*"High Purity Germanium"*) Detektoren sind für die Analyse von Aktivitäten aus unterschiedlichen Gründen gut geeignet. Sie haben ein großes aktives Volumen, welches durch einen hochreinen Germaniumkristall realisiert wird (Abbildung 12). Besonders zeichnen sie sich durch ein hohes Energieauflösungsvermögen und ein großes Ansprechvermögen aus. Damit kann Photonenstrahlung im Energiebereich von wenigen keV bis zu einigen MeV detektiert werden.



Abbildung 12 Der zylindrische Germaniumkristall (Abbildung: n-Typ Detektor) ist axial mit einer teilweisen oder volldurchgängigen Bohrung versehen. Aus Gründen der Feldhomogenität sind die Kanten abgerundet. Auf der äußeren Kristalloberfläche (gestrichelt) und in der Bohrung sind die hochdotierten p<sup>+</sup>- und n<sup>+</sup>-Kontaktschichten aufgebracht.

Da im Kristall immer eine Rest-Verunreinigung vorhanden ist, die zu einer p- bzw. n-Dotierung führt, werden die entsprechenden Detektoren in p- bzw. n-Typ unterschieden.

Der Außenkontakt eines p-Typ Kristalls erzeugt eine wesentlich größere Totschicht als der eines n-Typ Kristalls. Dieser Bereich trägt nicht zum aktiven Volumen des Kristalls bei. Daher sind Detektoren vom n-Typ für Messungen im niederenergetischen Bereich von Bedeutung. Um das Eintrittsfenster der Umhausung für die Detektion niederenergetischer Photonenstrahlung weiter zu optimieren, wird aufgrund seiner niedrigen Ordnungszahl (Z=4) und guten Materialeigenschaft Beryllium verwendet. Damit kann die Photonenwechselwirkung auf dem Weg in das aktive Volumen des Detektors minimiert werden.

Zur Verringerung elektronischer Rauscheffekte werden der Germaniumkristall sowie die hochempfindliche Vorverstärkerelektronik ständig gekühlt. Eine konstante und leistungsfähige Kühlung wird durch den Anschluss eines Dewar-Gefäßes mit flüssigem Stickstoff gewährleistet (Abbildung 13).

### Elektronische Komponenten eines Messsystems

Für Aktivitätsanalysen ist neben dem eigentlichen Germaniumkristall und dessen Peripherie die Messelektronik von großer Bedeutung.

Zu den Hauptkomponenten gehört eine Hochspannungsversorgung, ein linearer Hauptverstärker, ein Analog Digital-Wandler sowie Komponenten für Datenspeicherung und -verarbeitung. Ein möglicher Aufbau für ein Messsystem ist in *Abbildung 13* wiedergegeben.

Die Hochspannungsversorgung stellt die Vorspannung für den Germaniumkristall zur Verfügung. Sie muss lediglich eine gute Spannungskonstanz gewährleisten. Je höher die Vorspannung, umso geringer wird das Rauschsignal.

Das schwache primäre Messsignal wird nach möglichst kurzer Signalstrecke einem ladungsempfindlichen Vorverstärker zugeführt.

Der vorverstärkte Puls wird im linearen Hauptverstärker geformt, integriert und weiter verstärkt. Die Pulsformung ist von großer Bedeutung und hat unter anderem Einfluss die Halbwertsbreite der im Impulshöhenspektrum entstehenden Linien. Sie wird stark von der Integrationszeitkontante bestimmt.



Abbildung 13 Typischer Aufbau eines Messsystems mit einem HP-Ge Detektor

Je nachdem ob das Augenmerk auf einer hohen Energieauflösung oder Zählrate liegt, ist diese zu optimieren.

Das Signal wird durch einen Analog-Digital Wandler ausgewertet. Die Ereignisse werden in einem Histogram anhand ihrer Energien entsprechenden Kanälen zugeordnet. Das Ergebnis wird als Impulshöhenspektrum bezeichnet.

Da jede Komponente in der Signalentstehung und -verarbeitung eine Zeit benötigt, in der keine weiteren Informationen verarbeitet werden können, entsteht eine Totzeit. Die Verarbeitungszeit begrenzt die Möglichkeiten hinsichtlich der Genauigkeit von Zählungen oder Energieauflösung.

Komponente	Begrenzungs- faktor	Ursache	<b>Totzeit</b> [µs]
Ge-Kristall	Zählrate Ladungssammlung		0,20,5
Vorverstärker	Energie	Aussteuerung Relaxationszeit	00,2
Linearer Hauptverstärker	Zählrate	Pulslänge Pile-Up Übersteuerung	2100
ADC Zählrate Energie K		Konvertierungszeit	125 580
Datenerfassung Zählrate Speicherzeit		Speicherzeit	13

**Tabelle 2** Zur Totzeit des Messsystems tägt jede Komponente der Verarbeitungskette bei (nach [13]).

Um bei gegebener Aktivität die Zählrate zu verringern, genügt es oft, die Entfernung zwischen Detektor und Quelle zu vergrößern. Auch der Einsatz von aufwendiger, mehrfach ausgelegter Elektronik, kann den begrenzenden Faktor verringern. Die Verwendung von Pulsgeneratoren erlaubt auch bei hohen Zählraten eine gute Korrektur von Totzeiteffekten. Pulsgeneratoren erzeugen schnell ansteigende Pulse, die langsam exponentiell abklingen oder Rechteckpulse verschiedenster Dauer und Amplitude. Das simulierte Signal wird direkt an den Vorverstärker angeschlossen und parallel zum Detektorsignal eingespeist. Im Impulshöhenspektrum wird ein definierter Peak Die Parameter  $\mathbf{SO}$ wählbar, das der erzeugt. Pulserpeak im Impulshöhenspektrum mit sicherem Abstand über der letzten detektierten Energie liegt.

- Aus der Breite des Peaks im Impulshöhenspektrum lässt sich auf den Einfluss der Elektronik auf das Messsignal und die Güte des Germaniumkristalls schließen.
- Das Pulsersignal führt zu Summationseffekten (*Laborpraktikumsversuch GA*) mit verschiedenen Vollenergieereignissen. Durch die Auswertung der Summenpeaks lässt sich eine Korrektur für zufällige Koinzidenzen bestimmen.
- Aus allen Vollenergie und Summationsereignissen mit dem Pulsersignal kann die Totzeit experimentell bestimmt werden.

#### Messaufbauten mit HP-Ge Detektoren

Im Gegensatz zur Optimierung von Detektoren für die Messung niederenergetischer Photonen, kann eine Unterdrückung dieser Strahlungsanteile durchaus erwünscht sein. Ein Vorteil ist die Verminderung von Summationseffekten.

Als Filter für das Eintrittsfenster wird ein Material mit hoher Ordnungszahl sowie guten mechanischen Eigenschaften verwendet. Zusätzlich dürfen in Folge der Absorption keine störenden Fluoreszenzphotonen erzeugt werden. Blei ist daher ungeeignet. Die dominierenden Fluoreszenzlinien liegen im Bereich möglicher  $\gamma$ -Linien  $(E_{R\delta}=72,805..87,300 \text{ keV})$ . Cadmium, mit großen Fluoreszenzanteilen im Bereich von 24,984 keV bis 26,095 keV, oder Kupfer mit Anteilen zwischen 8,028 keV und 8,905 keV, genügen diesen Anforderungen am besten.

Ein anderer wichtiger Aspekt ist die Störstrahlung, welche nicht direkt von der zu analysierenden Quelle emittiert wird. Die Ursachen hierfür sind Radionuklide im Detektorvolumen, der gesamten Messanordnung, in den umgebenden Bauten und der Luft. Auch die Wechselwirkung von Höhenstrahlung mit der Umgebung und Streuphotonen führen zu unterschiedlichem störenden Messuntergrund.

Der natürliche Untergrund rührt zum größten Teil von den drei aktiven natürlichen Zerfallsreihen und dem Isotop <sup>40</sup>K, welches in der natürlichen Zusammensetzung von Kalium enthalten ist. Höhenstrahlung hat ihren Ursprung in Reaktionen hochenergetischer  $\alpha$ -Teilchen (~20%) und Protonen (~70%) mit der äußeren Atmosphäre. Es werden  $\pi$ -Mesonen gebildet, die durch direkte Reaktionen oder Zerfall weitere Sekundärteilchen erzeugen. Die entstehende Höhenstrahlung setzt sich hauptsächlich aus Myonen, Photonen, Positronen und Elektronen zusammen.

In den nachfolgenden Prozessen der Myonen-Wechselwirkung mit Materie, die mit steigender Ordnungszahl zunimmt, entstehen Neutronen. Die in der Bleiabschirmung von Detektoren erzeugten Neutronen regen durch inelastische Stöße hauptsächlich <sup>74/72</sup>Ge Kerne an. Durch Abregung der Niveaus und der damit verbundenen Folgestrahlung, sowie der durch den Rückstoß der Kerne erzeugten Ionisation werden Ereignisse registriert, die sich im Impulshöhenspektrum als Artefakte bemerkbar machen. [2]

Mit kombinierten Abschirmungen (Abbildung 14) können die Einflüsse von Störstrahlungen verringert werden. Diese Anordnungen haben den Vorteil, dass auch Streustrahlung, deren Ursprung in der zu analysierenden Aktivität liegt, absorbiert werden kann.



Abbildung 14Eine Kombinierte Abschirmung (nach [13]) des Detektors unterdrückt auch den Messuntergrund, der durch Fluoreszenzstrahlung aus der Abschirmung herrührt.

Eine noch effektivere Unterdrückung von gestreuten Photonen lässt sich mit aktiven Abschirmungen erreichen (Abbildung 15). Diese Detektoranordnungen verhindern durch eine Antikonizidenzschaltung die Verarbeitung von Messsignalen. Das Vetosignal wird von einem hocheffektiven Detektor erzeugt, der den Hauptdetektor umschließt. Verlässt ein Photon nach einer Compton-Wechselwirkung den Detektor, so wird es in der aktiven Abschirmung absorbiert. Durch die zeitliche Korrelation sowie die Energieinformation kann ein Vetosignal erzeugt werden. Das Vetosignal entsteht auch wenn ein Photon erst mit der Abschirmung und danach mit dem Detektor in Wechselwirkung tritt. Teilchen aus der Höhenstrahlung erzeugen in der aktiven Abschirmung ebenfalls ein Vetosignal.



Abbildung 15 Antikoinzidenzabschirmung (nach [13])

Die genaue Kenntnis der durch Untergrundstrahlung verursachten Messeffekte ist für die qualitative und quantitative Analyse von Strahlungsfeldern mittels  $\gamma$ -Spektroskopie unerlässlich. Oft genügt es durch die Subtraktion der Zählungen einer Untergrundmessung die störenden Einflüsse zu korrigieren.

### Anhang - D Einsatzbereich von HP-Ge Detektoren –Probleme der Gamma-spektrometrie

Ein Einsatzbereich ist der Nachweis, sowie die Bestimmung der Energie, von der bei Kernzerfällen ausgesandten charakteristischen γ-Strahlung, der Gammaspektroskopie. Zentraler Bestandteil Aktivitätsbestimmung ist  $\operatorname{der}$ die Analyse der  $\operatorname{im}$ Impulshöhenspektrum enthaltenen Vollenergiepeaks. Radionuklide, die in Folge der spontanen Kernumwandlung Photonenstrahlung emittieren, haben für die quantitative Analyse mittels Gammaspektroskopie unterschiedliche Eignung.

Bei vielen Radionukliden treten nach einem  $\alpha$ - bzw.  $\beta$ -Zerfall mehrere Photonen gleichzeitig auf. Im Wesentlichen gibt es dafür drei Ursachen:

- die Abregung des Kerns vollzieht sich über Kaskaden
- beim Relaxationsprozess der Hülle, wird charakteristische Röntgenstrahlung emittiert
- die in Folge der Positron-Elektron Annihilation bei  $\beta^+$ -Umwandlungen zusätzlich entstehende Annihilationsstrahlung

Deponieren mehrere Photonen gleichzeitig teilweise oder vollständig ihre Energie im Detektor, so wird ein Summationsereignis im Impulshöhenspektrum registriert, das die deponierte Gesamtenergie repräsentiert. Wohingegen Anhang - E tiefer auf Summenkoinzidenz und deren Korrektur eingeht, werden im Folgenden mögliche Artefakte diskutiert, die in Folge von Koinzidenzsummation auftreten.

Unter bestimmten Voraussetzungen ist eine Summationskorrektur für  $\gamma$ -Strahlung aus dem Kern möglich. Bei niederenergetischer Strahlung können Filtertechniken angewandt werden. Aufwendiger sind Korrekturen für Annihilationsphotonen. Nach der Emission des  $\beta^+$ -Teilchens, gibt dieses seine Energie durch Stöße mit den Elektronenhüllen des umgebenden Mediums ab bevor es annihiliert. Der Ursprungsort der Vernichtungsstrahlung ist damit gegenüber dem Emissionsort der zur Umwandlung gehörigen  $\gamma$ -Strahlung verschoben. In Festkörpern kann die Verschiebung einige Millimeter und in Gasen mehr als einen Meter erreichen. Der Annihilationsort kann so an der Innenwand der Detektorabschirmung liegen. Um Problematik Positronenstrahler dieser zu begegnen muss der mit einer entsprechenden Materialschicht eingehüllt werden, um die Verschiebung des Annihilationsortes zu verringern. Da dieses Verfahren mit einer Veränderung der Detektoranordnung verbunden ist, muss für das entsprechende Nuklid eine separate Kalibrierung durchgeführt werden.

Daher sind nur Positronenstrahler für die Aktivitätsbestimmung mittels Gammaspektroskopie geeignet, wenn zwischen der  $\gamma$ -Strahlung des Tochterkerns und dem Auftreten von Annihilationsphotonen keine zeitliche Korrelation besteht:

- Nuklide die einer  $\beta^+$  und einer  $\beta^-$ Radioaktivität unterliegen, bezüglich der  $\beta^-$ Umwandlungskanäle
- Nuklide deren Tochterkerne über metastabile Zustände in den Grundzustand übergehen (gilt auch für andere Kernabregungen)
- wenn Umwandlungskanäle existieren, die aus energetischen Gründen nur durch den konkurrierenden Elektroneneinfang bedient werden <sup>64</sup>Cu oder <sup>65</sup>Zn (Abbildung 16/Abbildung 17)



Abbildung 16 Umwandlungschema von <sup>65</sup>Zn



Abbildung 17 Umwandlungschema von  ${}^{64}Cu$ 

# Anhang - E Koinzidenz<br/>summation

Treten zwei Photonen innerhalb eines Zeitfensters mit dem Detektor in Wechselwirkung, in dem dieser die Messsignale nicht voneinander trennen kann, so wird dieses als ein Summenereignis registriert. Die zu diesem Messsignal führenden Einzelereignisse, lassen sich aus dem Messsignal nicht mehr rekonstruieren. Die Trägheit der Detektorelektronik und vor Allem der Ladungsträgersammlung im Detektor bedingt ein Zeitfenster für die Signalentstehung ein detektiertes Ereignis im Bereich von einigen hundert Nanosekunden bis hin zu Mikrosekunden. Die Lebensdauer von Kernniveaus hingegen liegt oft im Bereich von Femto- oder Pikosekunden, so das es mit einem HP-Ge Detektor nicht möglich ist mehrere Einzelwechselwirkungen, die in entsprechenden einzelnen Photonenemissionen z.B. innerhalb einer Kernkaskade herrühren zeitlich zu trennen.

Da  $\gamma$ - und Röntgen Strahlung gemeinsam auftritt, kommt es bei allen Nukliden zu Koinzidenz-Summations-Effekten. Mit Absorbern (Cadmium, Kupfer...) lässt sich der Röntgenstrahlungsanteil absorbieren. Der Übergang in den Grundzustand erfolgt bei den meisten Radionukliden durch  $\gamma$ -Kaskaden, so dass Summation auch nach Filterung der Photonenstrahlung nicht zu vermeiden ist. Anhang - D beschreibt weitere im Rahmen von Koinzidenz-Summation auftretenden Artefakte.

Im Folgenden werden die auftretenden Effekte sowie deren Korrektur anhand eines einfachen Umwandlungsschemas diskutiert.



**Abbildung 18** Das vereinfachte Schema beschreibt eine  $\beta$ -Umwandlung mit den drei Zerfallskanälen  $f_1$ ,  $f_2$  und  $f_3$ . Der Tochterkern regt sich über die Übergänge  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  und  $\gamma_3$  ab.

Folgende Annahmen bzw. Vereinfachungen werden getroffen:

- die Quelle wird als Punktquelle angenommen
- β-Strahlung, sowie die damit einhergehende Bremsstrahlung werden nicht berücksichtigt
- die Lebensdauern der Tochterkernniveaus sind klein bezüglich der zeitlichen Auflösung des Detektors
- Winkelkorrelationen zwischen Photonen der Kaskade werden außer Acht gelassen

Eine Quelle der Aktivität A emittiert drei Photonen  $\gamma_{1...3}$  mit den Emissionswahrscheinlichkeiten  $\nu_{1...3}$ , im Bezug auf eine Kernumwandlung.

Erfolgt die Umwandlung in den Kanal  $f_3$ , so ergibt die Bruttozählung der Vollenergie<br/>ereignisse von  $\gamma_2$  mit dem absoluten Vollenergie<br/>ansprechvermögen  $\varepsilon_2$  in der Messzeit t

$$N_2^{\text{Brutto}} = A \cdot \nu_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot t \tag{5.7}$$

Werden Konversionsprozesse vorerst nicht zugelassen, folgt darauf die Emission von  $\gamma_3$ . Mit der Wahrscheinlichkeit  $\varepsilon_{3,\text{total}}$  wird  $\gamma_3$  vom Detektor registriert. Da in diesem Fall beide Ereignisse gleichzeitig zu einem Messsignal führen, entstehen im Impulshöhenspektrum

$$N_{2,3} = A \cdot v_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_{3,total} \cdot t$$
5.8

Summationsereignisse, welche im Vollenergiepeak von  $\gamma_2$  fehlen. Der Nettoinhalt im Vollenergiepeak zu  $\gamma_2$  beträgt dann

$$N_2^{\text{Netto}} = A \cdot v_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot t - A \cdot v_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_{3,\text{total}} \cdot t = A \cdot v_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot t \cdot (1 - \varepsilon_{3,\text{total}})$$
5.9

Der Effekt wird bezüglich  $\gamma_2$  als summing-out bezeichnet.

Im Gegenzug kommt es im Vollenergiepeak von  $\gamma_1$  zu einer überhöhten Zählung. Gleichzeitige Vollenergiepereignisse von  $\gamma_2$  und  $\gamma_3$  führen zu einer Summation und werden zusätzlich im Vollenergiepeak von  $\gamma_1$  registriert; es kommt zu einem *summingin* Effekt. Die Nettozählung in  $\gamma_1$  ergibt dann

$$N_1^{\text{Netto}} = A \cdot v_1 \cdot \varepsilon_1 \cdot t + A \cdot v_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_3 \cdot t \qquad 5.10$$

Für die Behandlung des *summing-out* im Vollenergiepeak  $\gamma_3$  ist ein weiterer Aspekt zu betrachten: Neben dem Übergang  $\gamma_2$ , wird der erste angeregte Zustand auch durch den  $\beta$ -Umwandlungskanal f<sub>2</sub> bevölkert. Dem Anteil von  $\gamma_2$  wird durch den Faktor  $\eta_{2,3}$ Rechnung getragen, wodurch die Nettozählung in  $\gamma_3$ 

$$N_{3}^{\text{Netto}} = A \cdot v_{3} \cdot \varepsilon_{3} \cdot t - A \cdot v_{3} \cdot \varepsilon_{3} \cdot \varepsilon_{2,\text{total}} \cdot \left(\frac{v_{2}}{v_{3}}\right) \cdot t = A \cdot v_{3} \cdot \varepsilon_{3} \cdot t \cdot \left(1 - \varepsilon_{2,\text{total}} \cdot \eta_{2,3}\right) \quad 5.11$$

mit 
$$\eta_{i,j} = \frac{\nu_i}{\nu_j}$$

ergibt.

Korrekturfaktoren ergeben sich für die verschiedenen Übergänge unter Kenntnis des absoluten Vollenergie-, sowie des totalen Ansprechvermögens zu

$$C(\gamma_1) = \frac{N_1^{Bruto}}{N_1^{Netto}} = \frac{1}{1 + \frac{\nu_2 \cdot \varepsilon_2 \cdot \varepsilon_3}{\nu_1 \cdot \varepsilon_1}}, \quad C(\gamma_2) = \frac{1}{1 - \varepsilon_{3,total}} \quad \text{und} \quad C(\gamma_3) = \frac{1}{1 - \varepsilon_{2,total} \cdot \eta_{2,3}} \quad 5.12$$

Abschließend sollen noch Konversionsprozesse (IC) einbezogen werden. Diese vermindern die Emission von  $\gamma_3$  so, das nicht jedes  $\gamma_2$  eine weitere Photonenemission zur Folge hat. Mit dem Konversionskoeffizienten  $\alpha_2$  lässt sich die Wahrscheinlichkeit einer Photonenemission für  $\gamma_2$  als

$$p_{\gamma_2} = \frac{1}{1 + \alpha_2}$$
 mit  $\alpha = \frac{N_{IC}}{N_{\gamma}}$  5.13

angeben.

## Anhang - F Ansprechvermögen

Das Ansprechvermögen ist die Wahrscheinlichkeit dass ein von der Quelle ausgesandtes Photon im Detektor Energie deponiert und der Messeffekt zu einem Ereignis im Impulshöhenspektrum führt.

Für eine Nuklid-Quelle der Aktivität A, die Photonen der Energie  $E_i$  mit der Emissionswahrscheinlichkeit  $p(E_i)$  emittiert, welche in der Zeit t zu einer Zählung von  $N_i$  Ereignissen führen, lautet eine allgemeine Definition

$$\varepsilon' = \frac{detektierte Ereignisse}{Bezugszahl emittierter Photonen}$$
 5.14

Dieses Ansprechvermögen ist von der Quellgeometrie, den physikalischen Eigenschaften der Matrix, sowie den enthaltenen Nukliden abhängig. Es gibt verschiedene spezielle Definitionen für Ansprechvermögen, deren Anwendung von der jeweiligen Messaufgabe abhängig ist.

- Relatives Vollenergieansprechvermögen: beschreibt das • Vollenergieansprechver-mögen Detektors für des Photonenstrahlung bestimmter Radionuklide bei gegebener Proben-Geometrie und Beschaffenheit. Die Kalibrierung wird mit Single- oder Multinuklidstandards durchgeführt.
- Absolutes Vollenergieansprechvermögen: ist die Charakteristik, welche den Zusammenhang zwischen Quellaktivität und Nettopeakfläche für eine bestimmte Photonenenergie herstellt. Dieses ist unabhängig von dem emittierenden Nuklid und lässt sich mit Kenntnis des Zerfalls- oder Umwandlungsschemas durch die entsprechenden Korrekturen auf beliebige Nuklide beziehen.
- Absolutes Totales Ansprechvermögen: stellt den Zusammenhang zwischen den von einer Quelle emittierten Photonen und den dadurch im Impulshöhenspektrum nachgewiesenen Ereignissen her. Dabei sind alle Ereignisse im Comptonkontinuum und im Vollenergiepeak von Interesse

• Intrinsisches Ansprechvermögen: Beschreibt das Verhältnis zwischen Photonen, welche das Detektorvolumen durchsetzen und den registrierten Photonen. Diese Größe kann sich auf Ereignisse im Vollenergiepeak oder an beliebiger Stelle im Spektrum beziehen und ist von der Geometrie unabhängig.

Die spezielle Definition für das absolute Vollenergie Ansprechvermögen lautet somit

$$\varepsilon = \frac{detektierte \ Ereignisse}{Zahl \ emittierter \ Photonen} = \frac{N_{\gamma^i}}{A \cdot t_L \cdot v(E_{\gamma^i})}$$
5.15

wobei  $N_{\gamma i}$  die Zahl der im Vollenergiepeak in der totzeitkorrigierten Messdauer  $t_{\rm L}$  ist. Das Nuklid, welches die Linie  $\gamma^{\rm i}$  mit der Emissionswahrscheinlichkeit  $\nu_{\gamma i}$  emittiert hat eine Aktivität A.

# Anhang - G Zerfallschemata



Abbildung 19 Zerfallsschema <sup>137</sup>Cs



Abbildung 20 Zerfallsschema <sup>60</sup>Co



Abbildung 21 Zerfallsschema <sup>207</sup>Bi



Abbildung 22 Zerfallsschema  $^{133}$ Ba



Abbildung 23 Zerfallsschema <sup>152</sup>Eu