

Aufbau eines integrierten Gammaskpektrometriesystems
und
Anwendung auf Untersuchungen zum Migrationsverhalten
von Radionukliden im Boden

Diplomarbeit
von
Wolfgang Botsch

ausgeführt am
Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie
der Universität Hannover
Januar 1997

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 1.1 | Gammapektrometrie in der Radioökologie | 1 |
| 1.2 | Bodenmigration von Iod, Caesium und Strontium | 2 |
| 1.3 | Untersuchung von ^{129}I mittels radiochemischer Neutronen- Aktivierungsanalyse | 3 |
| 2 | Aufgabenstellung | 5 |
| 3 | Bodensorption | 7 |
| 3.1 | Boden | 7 |
| 3.2 | Sorptionsmechanismen | 10 |
| 3.3 | Radionuklide im Boden | 12 |
| 3.4 | Sorptionsversuche | 14 |
| 4 | Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse | 16 |
| 4.1 | Theorie der RNAA | 16 |
| 4.2 | Durchführung und Auswertung | 21 |
| 5 | Integration der Meßsysteme | 23 |
| 5.1 | Detektoren für die γ -Spektrometrie | 23 |
| 5.2 | Bestehende Probleme | 39 |
| 5.2.1 | Detektorsysteme | 39 |
| 5.2.2 | Auswertung | 42 |
| 5.3 | Konzept einer Integration | 43 |
| 5.4 | Entwicklung einer Benutzeroberfläche | 44 |
| 5.5 | Automatischer Probenwechsler | 46 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 5.6 | Nulleffektüberwachung und Formatkonvertierung | 59 |
| 6 | Beispielhafte Anwendung | 63 |
| 6.1 | ^{129}I -Analyse mittels RNAA | 63 |
| 6.2 | Sorptionsversuche | 66 |
| 6.2.1 | Auswerteverfahren | 67 |
| 6.2.2 | Ergebnisse | 68 |
| 7 | Diskussion der Ergebnisse | 71 |
| 7.1 | Sorptionsverhalten | 71 |
| 7.2 | Fehlerbetrachtung | 73 |
| 8 | Zusammenfassung | 75 |
| A | Abkürzungsverzeichnis | 76 |
| B | Daten verwendeter Detektoren | 84 |

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Gammaspektrometrie in der Radioökologie

Seit den Anfängen der industriellen Nutzung der Radioaktivität hat der Mensch große Mengen an radioaktiven Isotopen in die Biosphäre entlassen. Noch heute sind einerseits Kernwaffenexplosionen und Reaktorunfälle, andererseits auch kerntechnische Anlagen im Normalbetrieb anthropogene Quellen von Radioaktivität. Bei der Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt spielt die Gamma-Spektrometrie eine wichtige Rolle. Das liegt zum einen daran, daß die Mehrzahl der für die Überwachung relevanten Spalt- und Aktivierungsprodukte Gammastrahlung emittieren, zum anderen daran, daß heute verwendete Detektoren eine hohe Energieauflösung haben. Wegen der meist eindeutig möglichen Zuordnung bestimmter Energien zu bestimmten Radionukliden ist die Analyse von Radionuklidgemischen in den unterschiedlichsten Meßproben in der Regel ohne aufwendige Probenaufbereitung, vor allem ohne chemische Trennung, möglich.

In den letzten Jahren hat sich die Technik der Gammaspektrometrie-Meßsysteme stark verändert. Festverdrahtete Vielkanalanalysatoren mit beschränkten Ausgabe- und Anschlußmöglichkeiten werden zunehmend durch computerkontrollierte Systeme ersetzt, bei denen Datenaufnahme, Auswertung und Messungskontrolle integriert sind.

Im Rahmen der Modernisierung der Meßeinrichtungen im Isotopenlabor des Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZSR) der Universität Hannover sind neue PC-Kartensysteme installiert worden. Diese Diplomarbeit beschreibt die damit verbundenen Arbeiten und zeigt die Anwendung der neuen Meßplätze beispielhaft an zwei radioökologi-

sche Verfahren, mit deren Hilfe der Weg einiger Radionuklide zum Menschen erforscht wird: die Untersuchung des Migrationsverhaltens von verschiedenen Radionukliden in Böden und Tonen durch Batch-Versuche sowie die Messung von ^{129}I im Pfad Pflanze-Tier-Mensch mit Hilfe der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse (RNAA).

Bevor die Aufgabenstellung präzisiert wird, stellen die folgenden Abschnitte beide Verfahren in Kürze vor. Die wissenschaftlichen Grundlagen der Batchversuche und der radiochemischen Neutronen-Aktivierungsanalyse werden im Anschluß an die Aufgabenstellung dargelegt.

1.2 Bodenmigration von Iod, Caesium und Strontium

Die bei der friedlichen Nutzung der Kernenergie anfallenden radioaktiven Abfälle müssen entsorgt werden. Ein Konzept hierzu sieht die unterirdische Endlagerung in Bergwerken oder Salzstöcken vor [Bun96]. Bei der Einrichtung von Endlagern für abgebrannte Kernbrennstoffe und andere radioaktive Abfälle werden Tonminerale (z.B. Bentonite) als Hauptkomponenten von Barriere-Füllstoffen angesehen. Tone haben ausgezeichnete Sorptionseigenschaften für kationische Radionuklide, halten aber anionische Nuklide generell nicht zurück. Dies ist von besonderer Bedeutung für das langlebige ^{129}I ($T_{1/2} = 1,57 \cdot 10^7 \text{a}$), das in wäßriger Umgebung überwiegend als Anion vorliegt.

Doch nicht nur in Tonbarrieren ist das Migrationsverhalten von Radionukliden von Bedeutung. Böden bilden einen wichtigen Filter und Speicher für viele Kationen und Anionen. Die Sorption und Desorption dieser Ionen wird durch die chemische Zusammensetzung und die Struktur der Böden bestimmt [SSc92].

Viele das Migrationsverhalten beeinflussende Mechanismen sind noch nicht untersucht. In anstehenden Experimenten werden die Sorptions- und Diffusionsmechanismen der radioökologisch bedeutsamen Nuklide ^{129}I , ^{137}Cs und ^{90}Sr in natürlichen und mit organischen Substanzen belegten Tonen sowie verschiedenen Böden untersucht. Da sich für die schwereren Elemente (ab ca. $A > 40$) alle Isotope eines Elementes unter Umweltbedingungen chemisch identisch verhalten, werden die kurzlebigeren und leichter meßbaren Nuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr als Tracer eingesetzt. Ziel ist es, die Migration von Radionukliden modellieren – und somit vorhersagen – zu können.

Die Gammaskpektrometrie ermöglicht hierbei auf einfache Weise den Nachweis und die Quantisierung von Radionukliden in Analyseproben. Eine chemische Aufarbeitung der Probe ist oft nicht nötig. Die Analyseproben werden in festgelegten Geometrien auf Halbleiterdetektoren oder Szintillationszählern gemessen. Die in der Probe enthaltenen Radionuklide werden anhand der Energien der beim Zerfall emittierten γ -Quanten identifiziert. Über die Anzahl der Zerfälle pro Zeiteinheit (Aktivität) wird die enthaltene Menge des Radionuklides quantifiziert.

1.3 Untersuchung von ^{129}I mittels radiochemischer Neutronen-Aktivierungsanalyse

In der Natur findet sich außer dem stabilen ^{127}I auch noch das radioaktive ^{129}I ($T_{1/2}=1,57\cdot 10^7$ a). Die gesamte Menge an ^{129}I in der Lithosphäre (etwa 37.000 kg) liegt zum allergrößten Teil in gebundener Form vor und ist für das „freie“ ^{129}I Inventar der Atmosphäre, Hydrosphäre und Biosphäre nicht verfügbar. Die „freie“ Menge von etwa 77 kg (vor 1945) wurde durch die überirdischen Kernwaffenexplosionen um etwa 43 kg erhöht. Eine weitaus größere Quelle von anthropogenem ^{129}I ist die friedliche Nutzung der Kernenergie. Während der letzten 25 Jahre haben europäische Wiederaufarbeitungsanlagen über 1000 kg ^{129}I freigesetzt. Das weltweite Inventar an ^{129}I in abgebrannten Brennelementen wurde 1990 auf 5600 kg geschätzt [Han90].

Radioaktives Iod, das vom menschlichen Körper aufgenommen wird, reichert sich ebenso wie stabiles Iod in der Schilddrüse an. Durch diese Konzentration von Radionukliden in einem sehr kleinen Bereich des Körpers entstehen hohe lokale Strahlendosen; die Schilddrüse wird in diesem Zusammenhang auch als „kritisches Organ“ für die Aufnahme von radioaktivem Iod bezeichnet .

Bisher verursacht das anthropogene ^{129}I in der Biosphäre keine signifikante Strahlenexposition des Menschen. Wenn jedoch das heutige Niveau der industriellen Nutzung von Kernenergie auch in Zukunft besteht, wird die Konzentration von ^{129}I bedingt durch die lange Halbwertszeit von $1,57\cdot 10^7$ Jahren kontinuierlich ansteigen. ^{129}I kann als ein empfindlicher Indikator für die Umgebungsüberwachung von Wiederaufbereitungs- und Konditionierungsanlagen genutzt werden. Daher sind Kenntnisse sowohl über das

prä nukleare Niveau als auch der bis heute erfolgten Veränderungen in Umweltmaterialien von großer Bedeutung.

In letzter Zeit hat die Analyse von ^{129}I durch den Reaktorunfall von Chernobyl zusätzlich an Bedeutung gewonnen. Da das Verhältnis von freigesetztem ^{129}I zu ^{131}I bekannt ist [Han95], bietet sich hier die Möglichkeit, lange nachdem die kurzlebigen Isotope zerfallen sind, Expositionen durch Fall-Out von ^{131}I in der Umgebung des Reaktors durch Analyse von ^{129}I zu rekonstruieren.

Aus vielen Experimenten mit ^{131}I sind die relativen Konzentrationen in jedem Abschnitt des Weide-Kuh-Milch-Pfades gut bekannt [Han90]. Der Langzeittransfer von Iod in die Nahrungskette ist aber bedingt durch die kurze Halbwertszeit von ^{131}I durch diese Experimente nicht meßbar. Das Verhalten von radioaktivem Iod im Ökosystem Boden-Pflanze und der Übergang in die Nahrung muß aber mit Blick auf die Anreicherung von ^{129}I im Boden untersucht werden.

Bedingt durch seine große Halbwertszeit bleibt ^{129}I lange verfügbar, seine spezifische Aktivität ist sehr gering. Um die sehr niedrigen Konzentration von ^{129}I in Analyseproben messen zu können, bedient man sich der radiochemischen Neutronenaktivierungsanalyse, kurz: RNAA. Die Neutronenaktivierungsanalyse ist allgemein ein Analyseverfahren zum Nachweis extrem geringer Konzentrationen.

Unter dem Begriff Aktivierungsanalyse faßt man eine Gruppe von kernphysikalischen Analyseverfahren zusammen, die auf folgendem Grundprinzip beruhen: Das zu analysierende Material wird einer Bestrahlung mit Teilchen ausgesetzt, die in der Lage sind, Kernreaktionen auszulösen. Im Ergebnis werden aus den in den Analyseproben vorhandenen langlebigen oder stabilen Nukliden kurzlebige radioaktive Nuklide erzeugt, d.h. die Probe wird aktiviert. Entsprechend der Art der zur Aktivierung benutzten Teilchen und den von ihnen induzierten Kernreaktionen bilden sich aus den bestrahlten Elementen der Analyseprobe charakteristische Radionuklide. Diese können als Indikatoren zum Nachweis der zu untersuchenden Elemente verwendet werden. Die RNAA ist aber auch zur Bestimmung von Stoffmengen geeignet, da die erzeugte Aktivität der einzelnen Radionuklide der Menge der bestrahlten Ausgangsnuklide proportional ist. Die chemische Form des zu bestrahlenden Elementes in der Analysenprobe spielt keine Rolle, da der aktivierungsanalytische Nachweis auf einer Kernumwandlung beruht.

Kapitel 2

Aufgabenstellung

Im Zuge der Modernisierung der Spektrometriesysteme des ZSR am Standort Herrenhausen sollen die festverdrahteten Vielkanalanalysatorsysteme im Isotopenlabor gegen ein neues computerkontrolliertes System (TMCA) ausgetauscht werden. Wegen der gegebenenfalls auftretenden hohen Zählraten soll ein PC-Vielkanalanalysatorsystem mit externen ADCs aufgebaut werden. Die vorhandene Analog-Elektronik ist weitgehend zu ersetzen. Das neue System ist in Betrieb zu nehmen, zu konfigurieren und Messung und Auswertung sind zu automatisieren.

Die vorhandenen vier Detektoren (zwei Halbleiter, zwei Szintillatoren) sollen zu zwei Meßplätzen zusammengefaßt werden. Das neue System muß auf die Bedürfnisse der laufenden Experimente – hier besonders die radiochemische Neutronen-Aktivierungsanalyse (RNAA) und die Batchversuche zur Erforschung des Sorptionsverhaltens von Radionukliden in Böden und Tonen – angepaßt werden.

Der Pobenwechsler am NaI-Detektor im sogenannten Iod-Labor ist wieder in Betrieb zu nehmen und in das neue System zu integrieren, um den notwendigen Probendurchsatz zu ermöglichen, Reihenmessungen mit beliebigen Kombinationen der derzeit zur Markierung verwendeten Nuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr müssen vollautomatisch erfolgen können und die erhaltenen Spektren sollen automatisch ausgewertet werden.

In die Integration der neuen Meßsysteme im Isotopenlabor muß der bereits bestehende Meßplatz im Low-Level-Labors des ZSR mit einbezogen werden. Um eine einfache und einheitliche Bedienung beider Systeme zu gewährleisten, ist für diese eine Benutzer-

oberfläche zu entwickeln. Die Auswertesoftware ist für die speziellen Anforderungen radioökologischer Fragestellungen zu erweitern. Meß- und Auswerteprogramme sollen an das bestehende System am Standort ‚Am Kleinen Felde‘ angepaßt werden, um vollständige Kompatibilität beider Einrichtungen zu gewährleisten.

Das neue TMCA-System ist zu erproben und in Bezug auf seine Eigenschaften für den Routinebetrieb zu charakterisieren. Um die praktische Einsatzfähigkeit zu testen, sollen im Rahmen von durch EU und DFG geförderten Forschungsvorhaben Laborexperimente und Messungen durchgeführt werden. Dabei sollen Batchversuche zur Untersuchung des Migrationsverhaltens von Radionukliden in verschiedenen Gesamtböden und Bodenfraktionen angewendet werden. In Hinblick auf die retrospektive Dosimetrie soll die Analytik von ^{129}I und Untersuchung seines Verlagerungsverhaltens in Bodenproben aus der Ukraine als weiteres Anwendungsbeispiel durchgeführt werden.

Kapitel 3

Bodensorption

3.1 Boden

Als Boden wird die oberste Verwitterungsschicht der Erdoberfläche bezeichnet. Ein Boden ist ein Teil der belebten obersten Erdkruste; er ist nach unten durch festes oder lockeres Gestein, nach oben durch die Vegetationsdecke bzw. die Atmosphäre begrenzt. Horizontal geht er gleitend in benachbarte Böden über.

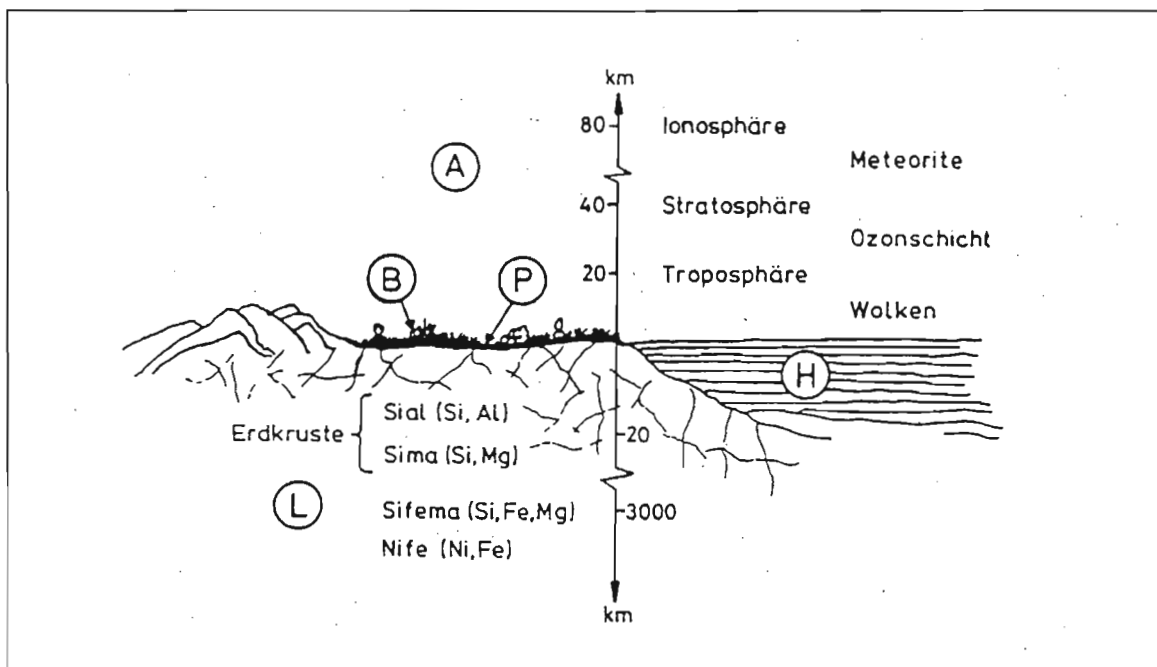


Abb. 3.1: Boden P zwischen Lithosphäre L, Hydrosphäre H und Atmosphäre A, durchsetzt von der Biosphäre B [Zie90]

Die Erdkruste besteht im wesentlichen aus Silikaten, d.h. Salzen der Kieselsäure, und zwar vorwiegend solche der Kationen Al, Fe, Ca, Mg, K und Na. Der Sauerstoff ist mit einem hohen Anteil von 88 % an der Gesamtmasse beteiligt [SSc92].

Boden entwickelt sich aus den Ausgangsmaterialien unter dem Einfluß von Klima, Sonnenlicht, Pflanzen und Tieren. In zunehmendem Maße trägt der Mensch durch die Bewirtschaftung des Bodens oder andere zivilisatorische Eingriffe zur Gestaltung des Bodens bei. Wichtige bodenbildende Prozesse sind Verwitterung, Mineralneubildung, Humusakkumulation, Gefügeveränderung, Wasserbewegung, Stoffverlagerung und -festlegung und Durchmischungsvorgänge, z.B. durch Tiere.

Chemisch-physikalisch betrachtet stellen Böden ein Gemenge aus Steinen, Kies und Feinboden und organischen Bestandteilen dar. Feinböden setzen sich aus den Fraktionen Sand (Korngrößen 2 - 0,063 mm), Schluff (0,063 - 0,002 mm) und Ton (kleiner 0,002 mm) zusammen [Lit87]. Die einzelnen Körner können aus sehr unterschiedlichen Mineralien bestehen, eines der häufigsten ist der Quarz. Gemische aus Sand, Schluff und Ton werden als Bodenarten bezeichnet: Sandboden, Schluffboden oder Tonboden. Lehme enthalten alle drei Fraktionen in nennenswerten Anteilen.

Tab. 3.1: Kornfraktionen im Boden

| Bezeichnung | Durchmesser [μm] | spezifische Oberfläche [cm^2/g] |
|-------------|----------------------------------|--|
| Sand | 2000-63 | 20-200 |
| Schluff | 63-2 | 200-2000 |
| Ton | < 2 | 2000-20000 |

Als Lebensraum für viele Pflanzen und Tiere bildet der Boden die Grundlage für fast alle Lebewesen auf der Erde. Der Boden hält Pflanzen und Tieren Nährstoffe in verfügbarer Form bereit. Aus dem Bodenwasser erfolgt die Wasser- und Nährstoffversorgung der Organismen. Um eine Verfügbarkeit von Nährstoffen über längere Zeiten zu sichern, muß der Boden diese speichern, d.h. sorbieren und, sobald die Konzentration im Boden abnimmt, an die Bodenlösung abgeben, d.h. desorbieren. Aus dem Bodenwasser setzt sich zudem der größte Teil des Grundwassers zusammen. Bei der Bewegung des Wassers durch den Boden werden im Wasser gelöste Stoffe transportiert, umgewandelt, ausgetauscht und gefiltert.

Organische Stoffe im Boden, z.B. Wurzeln, zersetzen sich in Verwesungsprozessen. Aus den Rückständen entstehen nach vielen Reaktionsschritten die Huminstoffe. Diese sind dunkelgefärbte, amorphe, organische Kolloide der Größenordnung $< 2\mu\text{m}$ mit großer spezifischer Oberfläche. Sie besitzen die Fähigkeit, Wassermoleküle und Ionen reversibel anzulagern, sowie mit anorganischen Bestandteilen des Bodens Organo-Mineralische-Komplexe zu bilden [SSc92].

Zu den wichtigsten bei der Verwitterung entstehenden Mineralen gehören die Tonminerale. Tonminerale sind Schichtsilikate. Die Kristalle der Tonminerale bestehen aus Schichten dichtgepackter O- und OH-Ionen (Liganden), in deren Zwischenräumen Zentralkationen wie Si, Al, Fe und Mg eingelagert sind. Bei der Koordinationszahl 4 ergibt sich ein Tetraeder der Formel $(\text{Si}, \text{Al})\text{O}_4$, bei Koordinationszahl 6 ein Oktaeder der Formel $(\text{Al}, \text{Fe}, \text{Mg})(\text{O}, \text{OH})_6$.

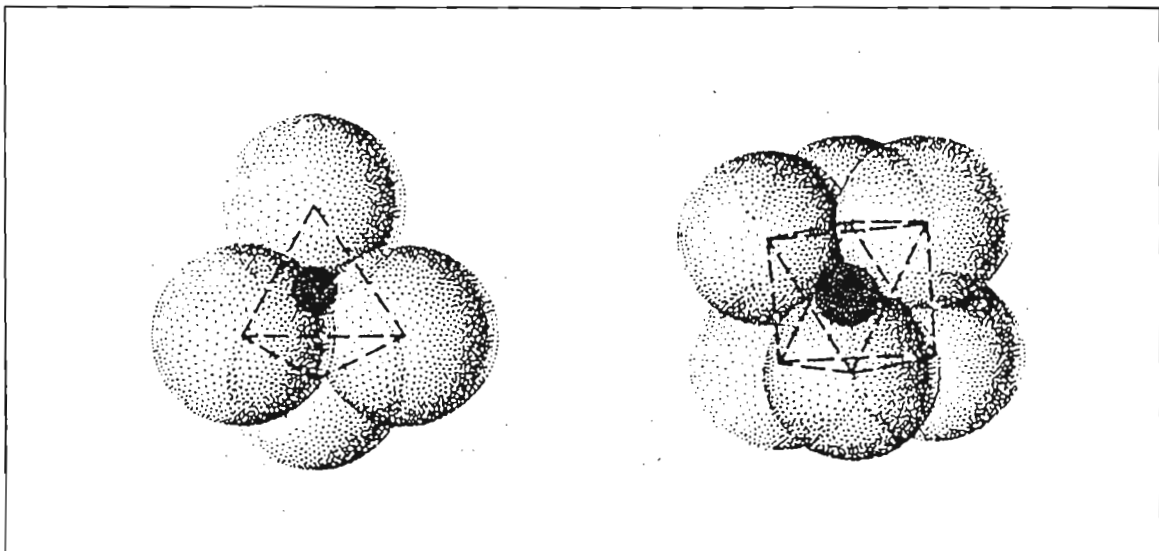


Abb. 3.2: Strukturmodell eines SiO_4 -Tetraeders und eines $\text{Al}(\text{O}, \text{OH})_6$ -Oktaeders [SSc92]

Die Tetraeder und Oktaeder sind im Kristallgitter schichtförmig angeordnet. Diese Schichten sind aus Ionen aufgebaut. Anionen bilden die Polyeder und Kationen besetzen die Polyederzentren. Durch die Kombination von Tetraeder- und Oktaederschichten entsteht die große Vielfalt an Tonmineralen. Eine Folge von Tetraeder- und Oktaederschichten heißt Silikatschicht.

Sind alle Zentralionen der Oktaederschichten Aluminium-Ionen (Al^{3+}) und alle Zentralionen der Tetraederschichten Silizium-Ionen (Si^{4+}), so sind die Ladungen der einzelnen Silikatschichten ausgeglichen. Bei isomorphem Ersatz von Silizium-Ionen durch Eisen-Ionen (Fe^{3+}) entsteht ein negativer Ladungsüberschuß der Silikatschicht. Dieser wird teilweise durch Kationen wie Na^+ , K^+ oder Ca^{2+} kompensiert, die sich in den Silikatzwischenschichten anlagern. Tonminerale im Boden weisen jedoch stets negative Nettoladungen auf.

Die Anziehungskräfte zwischen den negativ geladenen Schichten und den in den Zwischenschichten befindlichen Kationen halten die Silikatschichten zusammen. Bei manchen Tonmineralen ist die Ladungsdichte jedoch gering, und diese Anziehungskräfte sind so schwach, daß Wasser eindringen und die Schichten auseinanderdrängen kann [Jas93].

3.2 Sorptionsmechanismen

Die Sorption wirkt den Transportvorgängen (wie z.B. Durchströmung oder Diffusion) entgegen. Im Bodenwasser gelöste Ionen lagern sich an der Oberfläche der mineralischen und organischen Bestandteile an. Im Falle der idealen Sorption (reversible, konzentrationsunabhängige, schnelle Gleichgewichtseinstellung) wird zur Beschreibung der Sorption der Verteilungskoeffizient K_D bestimmt. Dieser ergibt sich aus dem Verhältnis der am Boden sorbierten Konzentration eines Ions $[\text{Ion}]_{\text{sorb}}$ zur Konzentration des Ions in der Lösung $[\text{Ion}]_{\text{lös}}$.

$$K_D = \frac{[\text{Ion}]_{\text{sorb}}}{[\text{Ion}]_{\text{lös}}} \quad [\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}] \quad (3.1)$$

Der K_D -Wert leitet sich aus dem Massenwirkungsgesetz ab. Er ist nur im thermodynamischen Gleichgewicht zwischen fester und flüssiger Phase definiert und unabhängig von Konzentration des Ions in der Austauschlösung.

In realen Systemen sind erhebliche Abweichungen von diesem Idealbild zu beobachten. Die Sorption verläuft abhängig von der Konzentration oder zeigt keine schnelle Gleichgewichtseinstellung. In diesem Fall wird die Sorption durch das Verteilungsverhältnis R_D quantifiziert:

$$R_D = \frac{[\text{Ion}]_{\text{sorb}}}{[\text{Ion}]_{\text{lös}}} \quad [\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}] \quad (3.2)$$

Der R_D -Wert ist abhängig von den Eigenschaften des sorbierenden Materials. Daneben spielen die Konzentration des sorbierten Stoffes, des Sorbats und die Ionenstärke der

Austauschlösung für die Sorptionsfähigkeit eine große Rolle, da in der Regel nur begrenzt Sorptionsplätze für Ionen zur Verfügung stehen. Zudem werden einige Ionen bevorzugt sorbiert.

Kationenadsorption

Die austauschbaren Kationen des Bodens bilden den Kationenbelag, ihre Summe die Kationenaustauschkapazität (KAK, ausgedrückt in $\text{mmol}_c \text{ kg}^{-1}$). Die wichtigsten Kationenaustauscher der Böden sind die Tonminerale und die Huminstoffe, während die Oxide und Hydroxide bedeutender für die Anionensorption sind. Die KAK eines Bodens hängt daher vom Gehalt an Tonmineralen und Huminstoffen, deren Größe und zugänglicher Oberfläche und der Art und Höhe ihrer Ladung ab. Aufweitbare Tonminerale haben nicht nur eine äußere, sondern auch eine innere Oberfläche. Die innere Oberfläche befindet sich zwischen den Silikatschichten der Tonmineralkristalle. Bei einigen Tonmineralen (Smectite, Vermiculite) ist die Oberfläche zu 80-90 % innere Oberfläche.

Die Bindung austauschbarer Kationen setzt voraus, daß die Oberfläche der Austauschschicht negativ geladen ist. Der isomorphe Ersatz in den Silikatschichten bewirkt eine permanente Ladung, das Dissoziieren von OH- und OH₂-Gruppen eine pH-abhängige oder auch variable Ladung. Während die Kationensorption mit steigendem pH ansteigt, steigt die Anionensorption mit sinkendem pH [SSc92].

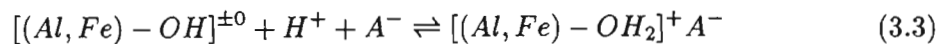
Bei den Schichtsilikaten herrscht die permanente Ladung vor, so daß ihre Nettoladung im gesamten pH-Bereich der Böden negativ ist. Neben der permanenten Ladung treten an den Seitenflächen der Tonminerale variable Ladungen auf, die durch Dissoziation der Protonen von SiOH, AlOH und AlOH₂-Gruppen entstehen.

Huminstoffe verdanken ihre negative Ladung der Dissoziation von Protonen an Carboxyl-, phenolischen OH- und Enol-Gruppen. COOH-Gruppen sind an der KAK der organischen Substanz von Böden am stärksten beteiligt. Ihre negative Ladung erhalten die Böden im wesentlichen durch die organische Substanz [SSc92].

Anionenadsorption

Böden adsorbieren nicht nur Kationen, sondern auch Anionen. Die unspezifische Anionenadsorption erfolgt durch positive Ladungen an der Oberfläche der Adsorbenten. Die positive Ladung entsteht aber nicht wie die negative durch isomorphen Ersatz von Zentralkatio-

nen, sondern durch Anlagerung eines zusätzlichen Protons an eine (Al, Fe)-OH - Gruppe der Oberfläche.



Die adsorbierten Anionen werden nur durch elektrostatische Kräfte gebunden und können leicht durch andere Anionen ausgetauscht werden. Sie werden desorbiert, sobald der pH-Wert steigt, da das adsorbierte H⁺-Ion desorbiert und so die positive Ladung verlorenght. Die spezifische Adsorption beruht auf Wechselwirkungen zwischen einigen Anionen und Adsorbenten. Zu diesen gehören vor allem Oxide des Eisens und Aluminiums und einige Tonminerale. Dabei können die Anionen in die Koordinationshülle dieser Atome eindringen, OH- und OH₂-Liganden aus ihr verdrängen (Ligandenaustausch) und eine oder zwei Sauerstoffbrücken zu den Al- oder Fe-Atomen schlagen.

Eine Anionenaustauschkapazität (AAK) wird meistens nur für unspezifisch adsorbierende Anionen verwendet. Noch stärker als bei den Kationen ist die AAK vom pH-Wert der Austauschlösung abhängig, da die Anionenadsorption ausschließlich an Plätzen variabler Ladung erfolgt [SSc92].

3.3 Radionuklide im Boden

Strontium

Strontium ist ein Erdalkalimetall und im oxidierten Zustand zweiwertig positiv. Unter den bekannten 23 Strontium-Isotopen finden sich vier stabile. Es handelt sich um ⁸⁴Sr (Isotopenhäufigkeit 0,6%), ⁸⁶Sr (9,8%), ⁸⁷Sr (7,0 %) und ⁸⁸Sr (82,6%) [See81]. Sie sind weder radioaktiv noch Zerfallsprodukte eines natürlichen Radionuklides. Daneben kommen in der Natur die radioaktiven Isotope ⁸⁷Sr (T_{1/2} = 2,8 h; entsteht beim Zerfall von ⁸⁷Rb), ⁸⁹Sr (T_{1/2} = 50,5 d) und ⁹⁰Sr (T_{1/2} = 28,5 a; beide aus kernphysikalischen Vorgängen im Boden) vor.

Chemisch gesehen verhält sich Strontium im Boden ähnlich wie die anderen Erdalkalimetalle Calcium und Barium und kann von beiden ausgetauscht werden. Daher ist Strontium im Boden vergleichsweise mobil, d.h. mäßig stark gebunden [Lit87].

⁹⁰Sr gehört aufgrund seiner Halbwertszeit zu den radioökologisch bedeutsamen Radionukliden. Es wird vom menschlichen Körper aufgenommen und folgt als homologes Element dem Calcium in Stoffwechselprozessen. Somit wird es im Knochengestütz in unmittelbarer

Nähe zu blutbildendem Gewebe eingelagert. Aufgrund der langsamen Umlagerungsprozesse im Skelett verweilt Strontium sehr lange im Körper des Menschen.

Durch die hohe Mobilität des Strontiums im Boden ist bei starker Kontamination eine Grundwassergefährdung möglich. Die Mobilität im Boden erlaubt es auch den Pflanzen, relativ viel Strontium aufzunehmen [Hai85a]. Wegen seiner Ähnlichkeit mit Calcium kann sich radioaktives Strontium im gesamten Ökosystem ausbreiten und schädigend wirken.

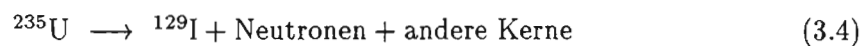
Caesium

Caesium ist ein Alkalimetall und im oxidierten Zustand einwertig positiv. Von den 35 bekannten Caesium-Isotopen ist das stabile ^{133}Cs das einzige natürlich vorkommende [See81]. Caesium ähnelt sehr dem Kalium, so daß hier Austauschreaktionen leicht möglich sind. Caesium wird im gesamten menschlichen Körper eingebaut. Jedoch ist die Fähigkeit des Caesiums, dem Kalium im Ökosystem zu folgen, nicht so ausgeprägt wie bei dem Paar Strontium-Calcium, da Caesium-Ionen durch Bodenminerale stärker sorbiert werden. Insgesamt ist Caesium im Boden als wenig mobil anzusehen, weil es stark sorbiert wird [Lit87].

Die Isotope ^{134}Cs ($T_{1/2} = 2,06$ a) und ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30,17$ a) sind radioökologisch bedeutsam. Beim Unglück in Cchernobyl wurden hier hohe Aktivitäten freigesetzt. In der ‚Chernobyl‘-Wolke wurden die radioaktiven Isotope ^{134}Cs , ^{136}Cs ($T_{1/2} = 13,16$ d) und ^{137}Cs nachgewiesen. ^{137}Cs wird als ‚dosisführendes Leitisotop‘ angesehen. Es bleibt wegen seiner geringen Mobilität lange im Bereich der Pflanzenwurzeln [Hai85b].

Iod

Iod gehört zur Gruppe der Halogene und ist in reduzierter Form einwertig negativ geladen. Es sind 24 Isotope bekannt [See81]. In der Natur findet sich außer dem stabilen ^{127}I noch das radioaktive ^{129}I . Es entsteht durch spontane Spaltung primordialen Urans [Lie91]



und durch Wechselwirkung kosmischer Strahlung mit Xenon in der Atmosphäre [Fug73].



Die meisten Iodisotope, die durch die Kerntechnik freigesetzt werden, sind in wenigen Tagen zerfallen. Bei ^{129}I hingegen beträgt die Halbwertszeit $1,57 \cdot 10^7$ Jahre (vgl. 1.3). In

Böden wird Iod als Anion gebunden und ist dort auch sehr mobil. Im Vergleich zu o.g. Radionukliden erwies sich Iod am beweglichsten [Lit87].

Iod ist ein unentbehrlicher Bestandteil des tierischen und menschlichen Organismus. Der tägliche Bedarf des Menschen an diesem essentiellen Spurenelement beträgt 0,15 mg.

Beim Eintritt von radioaktivem Iod in die Biosphäre durch Unfälle, wie z.B. in Chernobyl, verursacht ^{131}I kurzfristig eine sehr hohe Schilddrüsendosis. Diese hohen Dosen führten zu einer Zunahme des Schilddrüsenkrebses bei Kindern in der Umgebung des Kernreaktors in Chernobyl [Iae94].

3.4 Sorptionsversuche

Es gibt verschiedene Methoden, das Verhalten von Radionukliden im Boden im Experiment zu erforschen. Batchversuche ermöglichen eine von Diffusionsprozessen befreite Untersuchung der Sorption. Dabei wird der zu untersuchende Boden mit einer Austauschlösung versetzt und geschüttelt. Die Austauschlösung setzt sich zusammen aus inaktiver Ionenträgerlösung sowie trägerarmer radioaktiver Ionenlösung der Aktivität A_0 [Bq]. Nach Einstellung des Sorptionsgleichgewichtes wird die Gleichgewichtskonzentrationsverteilung des Radionuklides zwischen der Probe und der Gleichgewichtslösung ermittelt.

Die Bestimmung des sorbierten Anteils des Radionuklides A_s erfolgt dabei indirekt aus der Aktivität der Ausgangslösung A_0 und der Aktivität der Gleichgewichtslösung A_l nach:

$$A_s = A_0 - A_l \quad (3.7)$$

Das Verteilungsverhältnis ermittelt sich wie folgt:

$$R_D = \frac{(A_0 - A_l) \cdot V}{A_l \cdot m} \quad (3.8)$$

Die Konzentration des Ions in der Gleichgewichtslösung $[\text{Ion}]_{l\ddot{o}s}$ sowie die Konzentration am Adsorber $[\text{Ion}]_{sorb}$ lassen sich aus den gemessenen Aktivitäten und der Konzentration der eingesetzten Austauschlösung $[\text{Ion}]_{ini}$ berechnen:

$$[\text{Ion}]_{l\ddot{o}s} = \frac{A_l}{A_0} [\text{Ion}]_{ini} \quad \text{und} \quad [\text{Ion}]_{sorb} = R_D \cdot [\text{Ion}]_{l\ddot{o}s} \quad (3.9)$$

Aus dem Verlauf der Sorptionsisotherme $[\text{Ion}]_{sorp}$ als Funktion von $[\text{Ion}]_{l\ddot{o}s}$ lassen sich Rückschlüsse über den Sorptionsmechanismus ziehen.

In der Praxis ist der R_D -Wert eine sehr unanschauliche Größe. Sobald ein großer Anteil von $[Ion]_{ini}$ sorbiert ist, steigt der R_D -Wert wegen $[Ion]_{sorb} \gg [Ion]_{lös}$ steil an, obwohl de facto keine großen Sorptionsänderungen mehr auftreten. Schon kleinste Meßungenauigkeiten in A_l verursachen große Fehler.

Eine anschaulichere Größe ist die prozentuale Sorption S_{proz} :

$$S_{proz} = \frac{A_s}{A_0} \cdot 100 \quad (3.10)$$

beziehungsweise unter Verwendung von Gl. (3.7):

$$S_{proz} = \frac{A_0 - A_l}{A_0} \cdot 100 \quad (3.11)$$

Die prozentuale Sorption gibt an, welcher Anteil der eingesetzten A_0 bisher vom Boden sorbiert wurde.

Kapitel 4

Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse

4.1 Theorie der RNAA

Bei Bestrahlung von Material mit Neutronen werden radioaktive Nuklide nach den folgenden Kernreaktionen gebildet: (n,γ) , (n,p) , (n,α) , $(n,2n)$ und (n,f) . Der Anteil der einzelnen Reaktionen an der Gesamtreaktionsrate hängt von der elementaren Zusammensetzung des bestrahlten Materials und von der Neutronenenergie ab.

(n,γ) -Reaktionen verlaufen mit hoher Ausbeute bei der Wechselwirkung von Materie mit thermischen und epithermischen Neutronen, deren Energien im Bereich von 0,005 eV bis 0,5 eV bzw. 0,5 eV bis 1 keV liegen. Dabei wandelt sich das Targetnuklid in das um eine Masseneinheit schwerere Isotop um.

(n,p) , $(n,2n)$ und (n,α) -Reaktionen sind Schwellenreaktionen und erfolgen erst bei Neutronenenergien oberhalb einer Schwellenenergie. Diese liegt i.a. bei Werten größer als 2 MeV, d.h. im Bereich der schnellen Neutronen. Kernspaltungsreaktionen – (n,f) -Reaktionen – spielen nur dann eine Rolle, wenn in der Analysenprobe spaltbare Nuklide, z.B. Uranisotope, vorhanden sind.

Die Vielfalt der bei der Neutronenaktivierung möglichen Kernreaktionen soll am Beispiel des Kupfers verdeutlicht werden. Aus den im natürlichen Kupfer vorhandenen stabilen Isotopen ^{63}Cu und ^{65}Cu mit einer Isotopenhäufigkeit von 69,1% bzw. 30,9% entstehen durch die oben genannten Kernreaktionen folgende radioaktive Nuklide: [See81]

Tab. 4.1: Neutronenaktivierung von Kupfer

| Ausgangsnuklid | Kernreaktion | Zwischennuklid | $T_{1/2}$ | Zielnuklid | $T_{1/2}$ |
|------------------|--------------|-------------------|-----------|------------------|-----------|
| ^{63}Cu | (n,γ) | | | ^{64}Cu | 12,9 h |
| ^{65}Cu | (n,γ) | | | ^{66}Cu | 5,1 min |
| ^{63}Cu | (n,p) | | | ^{63}Ni | 92 a |
| ^{65}Cu | (n,p) | | | ^{65}Ni | 2,6 h |
| ^{63}Cu | (n,α) | ^{60m}Co | 10,5 min | ^{60}Co | 5,3 a |
| ^{65}Cu | (n,α) | ^{62m}Co | 1,5 min | ^{62}Co | 13,9 min |
| ^{63}Cu | $(n,2n)$ | | | ^{62}Cu | 9,8 min |
| ^{65}Cu | $(n,2n)$ | | | ^{64}Cu | 12,9 h |

Man erkennt, daß bei der Bestrahlung mit Neutronen ein komplexes Gemisch von radioaktiven Nukliden gebildet wird. Im Falle der Aktivierung mit Reaktorneutronen dominieren die durch (n,γ) -Reaktionen gebildeten Isotope ^{64}Cu und ^{66}Cu . Sie werden deshalb bei der aktivierungsanalytischen Bestimmung von Kupfer als Indikator-nuklide verwendet.

Die Schwellwertreaktionen müssen als Störreaktionen betrachtet werden, nur in wenigen Fällen sind sie auch als Analysereaktion von Interesse.

Diese Möglichkeit der neutronenaktivierungsanalytischen Kupfer-Bestimmung über die Isotope ^{64}Cu und ^{66}Cu zeigt aber auch, daß die RNAA im Gegensatz zu den meisten anderen Analyseverfahren kein elementanalytisches, sondern ein isotopenanalytisches Verfahren ist. So kann im Prinzip über ein bestimmtes Indikator-nuklid (^{64}Cu oder ^{66}Cu) nur die Anwesenheit des Ausgangsnuklides der verwendeten Kernreaktion (^{63}Cu oder ^{65}Cu) direkt nachgewiesen werden. Daraus ergibt sich die Möglichkeit, die RNAA zur Bestimmung von Isotopenzusammensetzungen einzusetzen, wenn für die interessierenden Isotope eines Elementes geeignete, d.h. gut aktivierbare und günstig meßbare, Indikator-nuklide zur Verfügung stehen [Pfr81].

Die Aktivität eines durch Neutronenaktivierung gebildeten Radionuklides kann durch die Aktivierungsgleichung beschrieben werden:

$$A = \sigma \Phi N (1 - e^{-\lambda t_B}) \cdot e^{-\lambda t_Z} \tag{4.1}$$

- mit A als Aktivität des gebildeten Radionuklids in Bq
- σ als Wirkungsquerschnitt der Kernreaktion in barn
- Φ als Neutronenflußdichte der Bestrahlungsquelle in n/cm²s
- N als Anzahl der Atome des Ausgangsnuklides in der Probe
- t_B als Bestrahlungszeit
- t_Z als Abklingzeit
- λ als Zerfallskonstante des gebildeten Radionuklids

Trägt man die Aktivität des erzeugten Nuklids gegen die Bestrahlungszeit auf, so erkennt man, daß nach einer Bestrahlungsdauer von $t_B = T_{1/2}$ die Hälfte und nach $t_B = 2 \cdot T_{1/2}$ drei Viertel der Sättigungsaktivität erreicht sind. Bestrahlungszeiten, die das drei- bis vierfache der Halbwertszeit überschreiten, sind daher nicht sinnvoll [Sdt95]. Nach dem Ende der Bestrahlung fällt die Aktivität des erzeugten Nuklids entsprechend seiner Halbwertszeit ab.

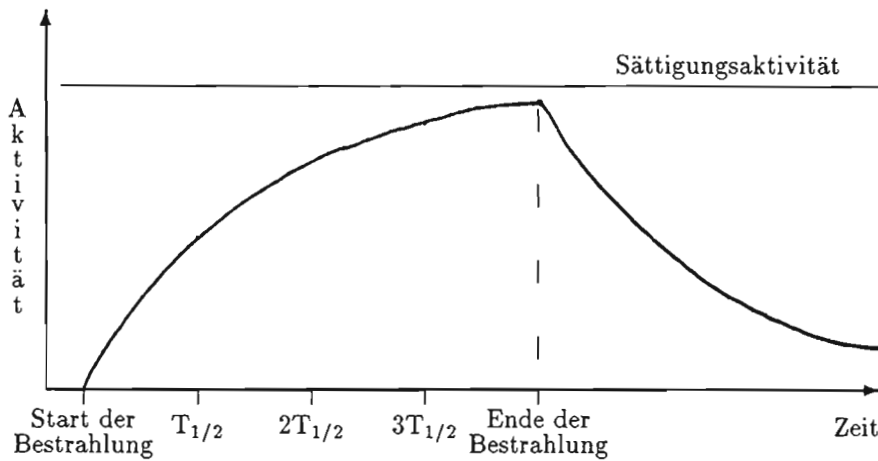


Abb. 4.1: Aktivitätsverlauf bestrahlter Proben

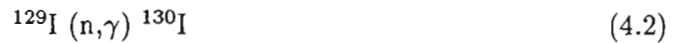
Die Nachweisgrenze für ein Element bzw. Isotop hängt hauptsächlich von der Aktivität des erzeugten Nuklids ab, welches man zum Nachweis verwendet. Daneben können sich, je nach eingesetztem Detektor, für dasselbe Nuklid verschiedene Nachweisgrenzen ergeben. Durch Koinzidenz-/Antikoinzidenzmessung von γ -Strahlern kann bei Eliminierung

des Untergrundes die Nachweisgrenze um 1 bis 2 Zehnerpotenzen gegenüber der einfachen γ -Spektroskopie gesenkt werden [Sdt95].

Analyse von Iod

Wie in Kap. 1.3 ausgeführt interessieren bei der Iod-Analyse in Umweltproben besonders die enthaltene Menge an ^{129}I und das Verhältnis von ^{127}I zu ^{129}I .

Bei der RNAA von ^{129}I und ^{127}I werden folgende Reaktion mit thermischen Reaktorneutronen benutzt:



Das so gebildete ^{128}I kann aufgrund seiner sehr kurzen Halbwertszeit von 25 Minuten nur dann zur Bestimmung von ^{127}I genutzt werden, wenn es möglich ist, sehr kurze Zeit nach der Bestrahlung ein γ -Spektrum aufzunehmen. Stattdessen wird folgende Reaktion mit schnellen Reaktorneutronen ausgenutzt:



^{126}I hat eine Halbwertszeit von 13 Tagen und kann auch längere Zeit nach der Bestrahlung zur Bestimmung des ^{127}I -Anteils in der Analysenprobe herangezogen werden.

Die nachfolgende Tabelle zeigt für die verwendeten Iodisotope die Einfangsquerschnitte für thermische Neutronen, Halbwertszeiten und Energie der zur Bestimmung herangezogenen γ -Linien [See81].

Tab. 4.2: Kern- und Reaktionsdaten der Iod-Isotope

| Isotop | Einfangsquerschnitt [barn] | Halbwertszeit | γ -Linien [keV] |
|------------------|----------------------------|---------------------|------------------------|
| ^{125}I | 894 | 60,14 d | 35 |
| ^{126}I | 5960 | 13,11 d | 388 |
| ^{127}I | 6,2 | stabil | - |
| ^{129}I | 27 | $1,57 \cdot 10^7$ a | - |
| ^{130}I | 18 | 12,36 h | 536 |

Mit Hilfe der Aktivierungsgleichung (4.1) läßt sich für eine Probe mit einer bekannten Menge ^{129}I die resultierende ^{130}I -Aktivität nach der Bestrahlung berechnen. Der Vergleich

mit der ^{129}I -Aktivität vor der Bestrahlung ergibt, zu welcher Erhöhung der Aktivität in der Probe die Bestrahlung geführt hat.

Bei einem Fluß von z.B. $8 \cdot 10^{12}$ thermischen Neutronen pro Sekunde und Quadratzentimeter und einer Bestrahlungszeit von 5 Stunden ergibt sich nach Formel (4.5) eine Erhöhung der Aktivität des zu messenden Nuklids ^{130}I gegenüber ^{129}I um den Faktor $3 \cdot 10^4$.

$$\frac{A_{130}}{A_{129}} = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot (1 - \exp(-\lambda_{130} \cdot T_B))}{\lambda_{129}} = 37700 \quad (4.5)$$

Hat man die γ -Nettopulsrate I_N des gebildeten Nuklids gemessen, so berechnet sich die Aktivität dieses Nuklids bei Bestrahlungsende (t_{irr}) zu

$$A_x(t_{irr}) = \frac{I_N \cdot \lambda_x}{\exp(-\lambda_x \cdot t_A) - \exp(-\lambda - \lambda_x \cdot t_E)} \quad (4.6)$$

wobei t_A der Zeitpunkt zum Start und t_E zum Ende der Messung relativ zum Bestrahlungsende ist. Das Einsetzen von A_x in die Aktivierungsgleichung (4.1) liefert die gesuchte Anzahl N von Atomen des Ausgangsnuklids in der Analyseprobe.

4.2 Durchführung und Auswertung

Bei der RNAA von Iod in Umweltproben müssen am ZSR sowohl vor als auch nach der Bestrahlung ‚Störbestandteile‘ abgetrennt werden. Ohne die Matrixabtrennung und Anreicherung des Iods wären die Nachweisgrenzen des Verfahrens so schlecht, daß mit den am ZSR vorhandenen Halbleiterdetektoren keine ausreichende Bestimmung mehr möglich wäre.

Um die Ausbeute des radiochemischen Trennungsvorganges zu bestimmen, wird vor Beginn eine definierte Menge ^{125}I als Tracer zur Analyseprobe zugegeben.

Zum Abtrennen des Iods aus den Proben wird die Methode der Verbrennung bei hohen Temperaturen eingesetzt [Stu62], [And78]. Die Proben werden in einem Fluß von Sauerstoff und Stickstoff auf etwa 1000 °C erhitzt. Austretende Gase werden durch den Stickstoffstrom in einen Heizofen getragen und dort bei 1100 °C vollständig oxidiert. Das in diesem Prozeß freigesetzte Iod wird in einem Aktivkohlefilter aufgefangen.

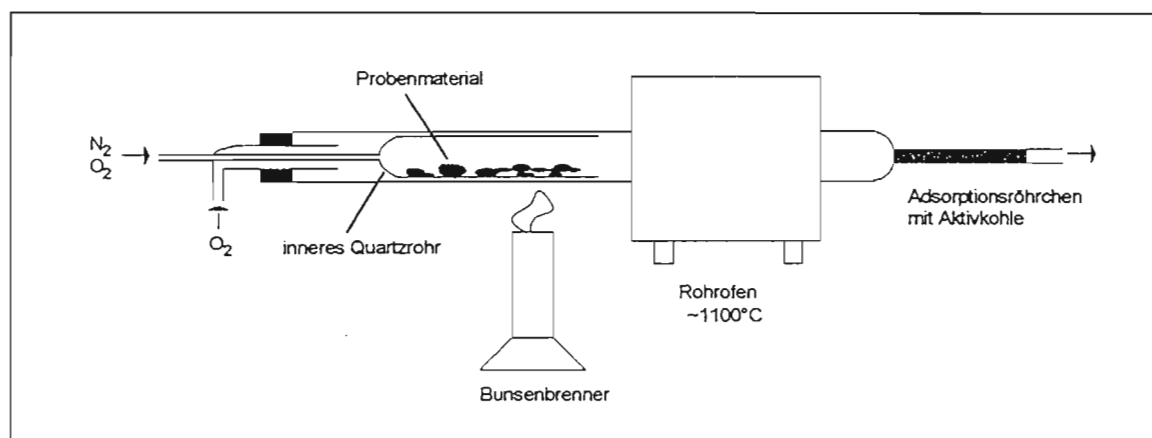


Abb. 4.2: Abtrennung und Anreicherung von Iod

Die Aktivkohle wird dann in eine Doppelampulle aus hochreinem Quarzglas gefüllt und die Ampulle unter Vakuum abgeschmolzen. Das Iod wird schließlich aus der Aktivkohle sublimiert, indem die untere Hälfte der Ampulle mit der Kohle auf 1000°C erhitzt wird, während der leere Teil mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird. Die obere Hälfte mit dem destillierten Iod wird versiegelt und von der Kohle getrennt.

Die Bestrahlung der Ampullen wird in einem Reaktor bei einem Fluß von $5,13 \cdot 10^{13}$ Neutronen pro cm^2 und Sekunde und einer Dauer von 90 Minuten durchgeführt. Dabei

entsteht aus ^{129}I durch einen (n,γ) -Prozess ^{130}I und aus ^{127}I durch einen $(n,2n)$ -Prozess ^{126}I (vgl. Kap. 4.1). Zur Kalibration wird eine bekannte Menge des interessierenden Nuklids - ein Standard - zur gleichen Zeit und in möglichst ähnlicher Geometrie wie die Analyseprobe bestrahlt. Für jede Probe werden mehrere unterschiedlich konzentrierte Standards verwendet. Dieses ermöglicht bei der anschließenden Auswertung eine Korrektur von Schwankungen des Neutronenflusses.

Nach der Bestrahlung muß eine radiochemische Reinigung erfolgen, damit die schwachen γ -Linien der zu bestimmenden Nuklide nicht im hohen Untergrund der dominierenden Aktivitäten von Störnukliden untergehen. Hauptsächlich ^{24}Na und ^{82}Br sollen abgetrennt werden. Besonders die ^{82}Br -Linie bei 554 keV erschwert die Auswertung, da sie in unmittelbarer Nähe der schwachen 536 keV Linie liegt, die zur Bestimmung des ^{130}I -Gehaltes dient. Eine detaillierte Vorschrift für die radiochemische Reinigung findet sich in [Sdt95]. Nach der Reinigung wird das Probeniod zusammen mit dem zugesetzten Tracer-Iod als Silberiodid ausgefällt und der Niederschlag auf einem Papier-Rundfilter gesammelt. Der Filter wird auf dem Ge(Li)-Detektor im Iod-Labor gemessen.

Die Meßdauer beträgt für die Analyseprobe i.A. 18 Stunden, für die Standards 1 Stunde. Zur Auswertung des ^{130}I dient die 536 keV-Linie, für ^{126}I die 388 keV Linie. Die Nachweisgrenze liegt für ^{129}I zwischen 18 und 74 μBq pro Probe, abhängig vom Gehalt an ^{127}I . Die Nachweisgrenze von ^{127}I liegt bei 3 μBq pro Probe. Mit der Methode der RNAA (und einfacher γ -Spektrometrie) können ^{127}I zu ^{129}I Verhältnisse bis zu 10^{-12} bestimmt werden [Sdt95].

Kapitel 5

Integration der Meßsysteme

5.1 Detektoren für die γ -Spektrometrie

Radioaktive Nuklide weist man zumeist anhand ihrer (für das jeweilige Nuklid charakteristischen) ionisierenden Strahlung nach. Diese wird emittiert, wenn sich das radioaktive Nuklid durch Kernreaktion in ein anderes Nuklid umwandelt, welches möglicherweise ebenfalls instabil ist. Am Ende dieser Zerfallsketten stehen stabile Nuklide. Die ausgesandte Strahlung wird mit Strahlungsmeßgeräten (Detektoren) gemessen, und es kann mit Hilfe dieser Messungen auf die Menge des radioaktiven Nuklids zurückgerechnet werden.

Das Funktionsprinzip aller Detektoren beruht darauf, daß die ionisierende Strahlung mit der Materie des Detektors wechselwirkt und dabei ein verwertbares Signal entsteht.

Neutrale Teilchen können nicht direkt gemessen werden. Sie erzeugen jedoch durch verschiedene Reaktionen geladene Teilchen, die wiederum nachgewiesen werden können [Brö85].

Tab. 5.1: *Indirekt ionisierende Strahlung*

| Teilchen | Umwandlung | erzeugt wird |
|-----------------|----------------|--|
| Neutron | Kernreaktion | Proton, α -Teilchen, Spaltprodukt |
| | Rückstoßproton | Proton |
| Gamma-Strahlung | Photo-Effekt | Elektron |
| | Compton-Effekt | Elektron |
| | Paarbildung | Elektron, Positron |

Wechselwirkungen Photonen – Materie

Die Wechselwirkungen hochenergetischer Photonen (γ -Quanten) mit Materie unterscheiden sich sehr von denen geladener Teilchen. Im Gegensatz zu geladenen Teilchen können durch ladungsneutrale Quanten mittels Coulomb-Wechselwirkung primär keine freien Ladungsträger erzeugt werden. Beim Durchtritt von Gammastrahlung durch Materie treten statt dessen verschiedene Wechselwirkungen zwischen den Quanten und den Absorberatomen auf, bei denen das Gammaquant seine Energie ganz oder teilweise abgibt. Die drei wichtigsten Effekte sind Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung [Ger89].

- Beim Photoeffekt wird die gesamte Energie des einfallenden Quants auf ein Elektron in der Atomhülle übertragen. Die Energie verteilt sich auf die kinetische Energie und die Bindungsenergie des emittierten Elektrons.

$$E_e = E_\gamma - E_{Bind} \quad \text{wobei} \quad E_{Bind} \ll E_\gamma \quad (5.1)$$

Der Absorptionskoeffizient des Photoeffektes ist proportional zu Z^5 und steigt zu niedrigeren Energien an.

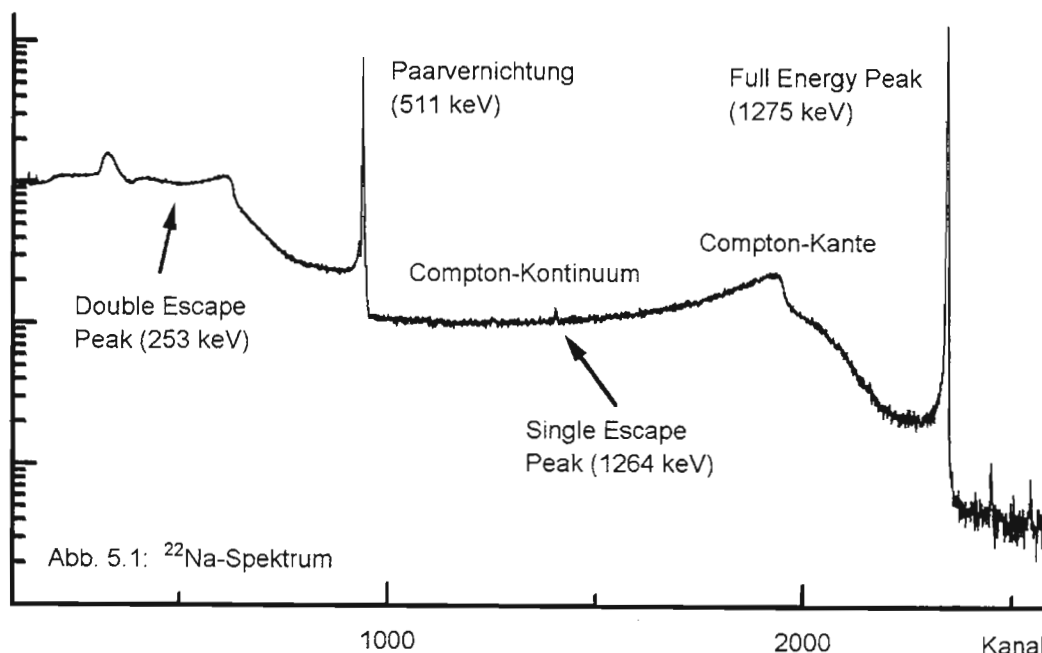
- Der Comptoneffekt kann als ein inelastischer Stoß zwischen einem Quant und einem Hüllenelektron des Absorbermaterials verstanden werden. Dabei hängt die vom Quant an das Elektron abgegebene Energie vom Streuwinkel ab und liegt zwischen 0 und E_{max} an der Compton-Kante. Innerhalb dieser Grenzen ist eine kontinuierliche Energieverteilung der angeregten Elektronen zu beobachten. Es wird das *Compton-Kontinuum* genannt.

Der Absorptionskoeffizient der Comptonstreuung ist proportional zu Z .

- Die Paarbildung tritt bei Photonen auf, deren Energie E_γ größer als 1,022 MeV ist. Dieses ist genau die Energie, die nötig ist, um ein Elektron-Positron-Paar zu erzeugen. Das entsprechende Quant wird am Absorberatomkern vollständig absorbiert. Von der Energie des Photons werden 1,022 MeV zur Bildung eines Elektrons und eines Positrons aufgewendet. Die restliche Energie erscheint als kinetische Energie des Rückstoßkernes und der beiden entstandenen Teilchen.

Da das Positron sofort in Verbindung mit einem Hüllenelektron wieder zerstrahlt, werden zwei weitere Gamma-Quanten von je 511 keV unter 180 Grad emittiert. Im

gemessenen Spektrum kann man daher drei Peaks sehen: bei $E_{dep} = E_{\gamma} - 1022 \text{ keV}$, wenn beide sekundäre Quanten das Detektorvolumen verlassen (Double Escape Peak), bei $E_{sep} = E_{\gamma} - 511 \text{ keV}$, wenn nur ein sekundäres Quant den Detektor verläßt (Single Escape Peak) und bei voller Energie $E_{fep} = E_{\gamma}$, wenn beide sekundäre Quanten im Detektorvolumen absorbiert werden (Full Energy Peak).



Die Grafik (5.2) zeigt, wie die relative Bedeutung der drei Prozesse von der Kernladungszahl Z des Absorbermaterials und der Energie der γ -Quanten abhängt. Für die wichtigsten Halbleitermaterialien Silizium ($Z=14$) und Germanium ($Z=32$) sind Linien eingezeichnet.

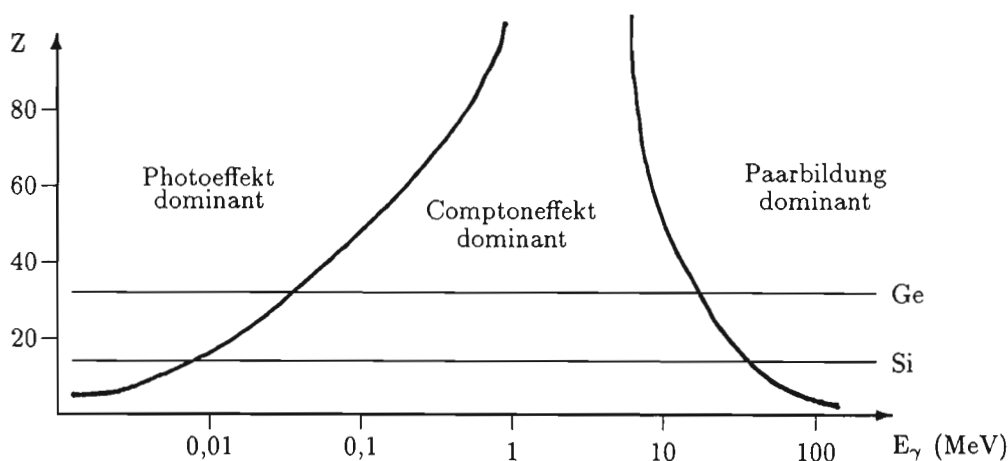


Abb. 5.2: Wechselwirkungen

Meßtechnik in der Gamma-Spektrometrie

Ein Meßplatz für die Gamma-Spektrometrie besteht im wesentlichen aus vier Komponenten [Deb92]:

1. dem Detektor
2. der Abschirmung
3. der Elektronik, bestehend aus Hochspannungsversorgung, Vorverstärker, Impulshöhenverstärker, Analog-Digital-Konverter (ADC) und Vielkanalanalysator.
4. dem Rechner zur Auswertung des Spektrums.

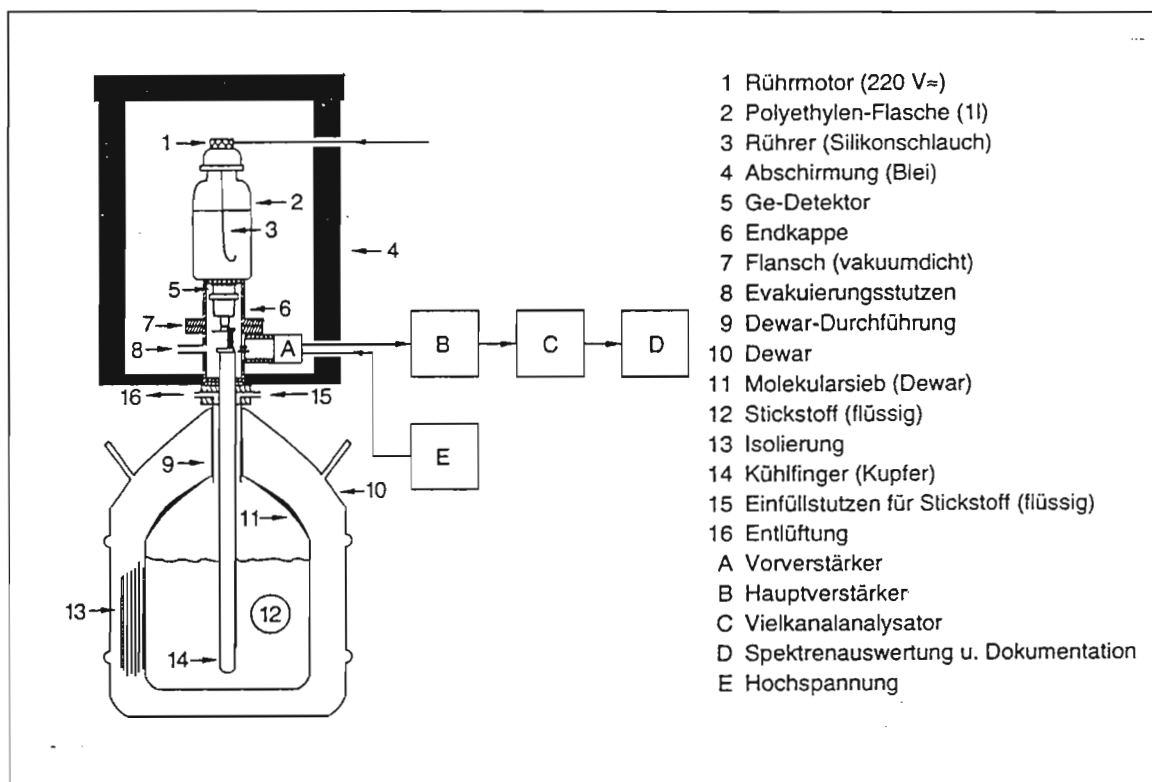


Abb. 5.2: *Gammastrahlenspektrometrie-Meßplatz mit Halbleiterdetektor*

In der Radioökologie werden heute zur Gammastrahlenspektrometrie zumeist Halbleiterdetektoren oder Szintillationsdetektoren eingesetzt. Vor- und Nachteile beider Detektorkonzepte werden in den folgenden Abschnitten beschrieben.

Szintillatoren

Eine der ältesten Methoden, einzelne atomare Teilchen zu beobachten, ist die Szintillationsmethode. Wenn ein solches energiereiches Teilchen in ein Zinksulfid-Kristall eindringt, so wird seine kinetische Energie schrittweise fast vollständig auf die Kristallatome übertragen und von diesen als Licht abgestrahlt. Auf einer mit Zinksulfid-Kriställchen belegten Glasplatte beobachtet man dann bei gut adaptiertem Auge mit einem lichtstarken Mikroskop schwache Lichtblitze. Auf diese Weise experimentierte Rutherford mit ‚seinen‘ α -Teilchen [Bos92].

Ein zur Gammaspektroskopie verwendeter Szintillationsdetektor besteht im wesentlichen aus drei Teilen: dem Szintillator, der Photokathode und dem Sekundärelektronenvervielfacher. Als Szintillator eignen sich bestimmte feste Stoffe, Gase und einige Flüssigkeiten. Die Funktion des Szintillators beruht auf Absorption und der dadurch verursachten Anregung, welche Lichtblitze zur Folge hat. Am weitesten verbreitete Materialien für Szintillatoren sind anorganische Alkali-Halogenid-Kristalle (besonders Natriumiod), sowie auf organischen Szintillatoren beruhende Flüssigkeiten und Plastikmaterialien [Fen65]. Die Absorption vollzieht sich durch Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung (vergl. S. 24).

Beim Photoeffekt stößt ein Gammaquant mit der Energie E_γ ein Elektron eines Szintillatoratoms aus seiner Schale - meist handelt es sich um ein Elektron aus der K-Schale - und gibt dabei seine gesamte Energie ab. Das Elektron übernimmt die Energie des Gammaquanten vermindert um seine eigene Bindungsenergie (bei der Verwendung eines NaI-Kristalls als Szintillator beträgt die Energie des aus der Schale geregten Elektrons $E_e = E_\gamma - 28 \text{ keV}$). Nachrückende Hüllenelektronen geben Energie in Form von Röntgenstrahlen und Auger-Elektronen wieder frei.

Kurz nach dem Entstehen werden die Röntgenstrahlen größtenteils in der nächsten Umgebung durch das Szintillatormaterial wieder absorbiert. Auch diese Strahlung wird wieder in kinetische Energie der Elektronen umgewandelt. Die ursprüngliche Energie des Gammaquanten E_γ kann so Szintillationen erzeugen.

Beim Comptoneffekt übernimmt ein Elektron einen Teil der Anfangsenergie des Photons E_γ . Das Photon existiert mit vermindelter Energie weiter, wobei es auf seinem Weg durch Photoeffekt oder erneuten Compton-Effekt absorbiert werden kann.

Bei der Paarbildung werden die bei der anschließenden Paarvernichtung freiwerdenden Gammaquanten durch Compton- oder Photoeffekt vom Szintillator absorbiert.

Die angeregten Elektronen geben längs ihrer Bahn ihre Energie an andere Elektronen im Szintillator ab. Dieser Energietransfer setzt sich auf die benachbarten Elektronen fort. Er endet aber an Stellen, an denen sich Fremdatome oder absichtliche Verunreinigungen (z.B. Thallium-Ionen im Natriumiodid) befinden, oder an unbesetzten Stellen im Kristallgitter (Leerstellen). Dabei wird ein Teil der kinetischen Energie in thermische Energie des Szintillators umgewandelt. Für die restliche Energie gibt es folgende Möglichkeiten [Fen65]:

- vollkommene oder teilweise Umwandlung in ein Lichtquant (Fluoreszenz)
- Rückkehr in den Grundzustand ohne Leuchterscheinung (Löschung; engl: quenching)

Die nach der Absorption eines Gammaquants ausgesandten Lichtquanten bilden in ihrer Gesamtheit den Lichtblitz oder die Szintillation. Jedes im Szintillator entstehende Photon hat eine Energie von ca. 3 eV.

Die vom Szintillator ausgesandten Lichtblitze lösen auf der Photokathode Sekundärelektronen aus. Diese freigewordenen Elektronen wandern zu einer Elektrode, welche gegenüber der Photokathode ein positives Potential aufweist. Die durch die Absorption von Lichtquanten an der Photokathode verursachten Stromstöße sind jedoch so schwach, daß sie erheblicher Verstärkung bedürfen. Zu diesem Zweck wird der Elektronenvervielfacher eingesetzt. Seine Wirkung beruht auf dem Auftreten von Sekundäremissionen: Bestimmte Stoffe werden durch das Auftreffen eines Elektrons zur Emission eines oder mehrerer Elektronen veranlaßt. In einem Elektronenvervielfacher wiederholt sich dieser Vorgang mehrmals hintereinander. Durch das Auslösen immer weiterer Elektronen an den Dynoden vergrößert sich die Anzahl der Elektronen exponentiell. Aus einem an der Photokathode ausgelösten Elektron erhält man je nach Energie des eingefallenen Gammaquants bis zu 10^6 Elektronen, welche direkt gemessen werden können [Fen65]. Da die Anzahl der gemessenen Elektronen der Energie des Gammaquants proportional ist, kann aus dem Spannungsimpuls am Sekundärelektronenvervielfacher auf die Energie des Quants geschlossen werden.

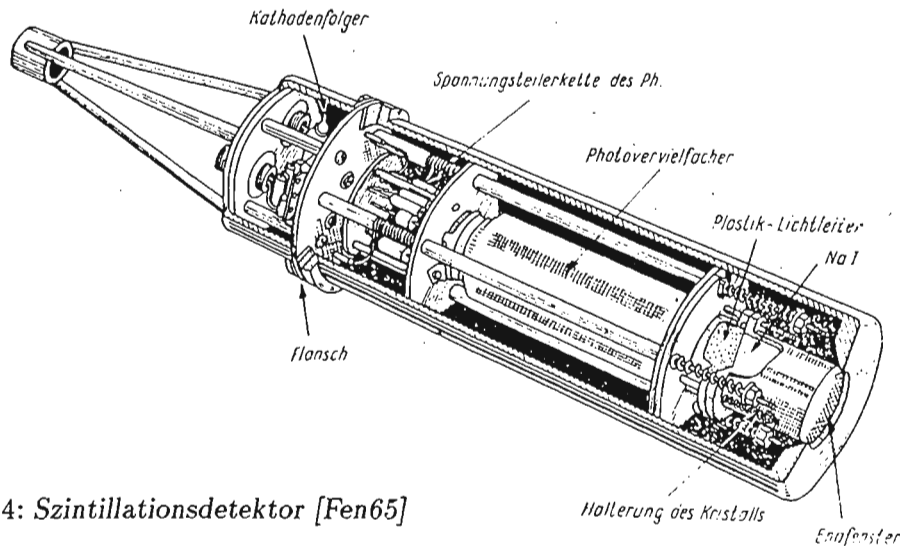


Abb. 5.4: Szintillationsdetektor [Fen65]

Halbleiterdetektoren

In Halbleiterzählern werden durch ein geladenes Teilchen positive und negative Ladungsträger freigesetzt. Diese strömen durch ein angelegtes elektrisches Feld zu den Elektroden am Rand des Zählvolumens und erzeugen dort einen Spannungsimpuls, dessen Höhe proportional zur Anzahl freigesetzter Ladungsträger und damit zur Teilchenenergie ist.

Das Zählervolumen eines Halbleiterdetektors wird von einem Festkörper gebildet. Daher sind die Reichweiten geladener Teilchen gegenüber Zählern mit Gasen oder Flüssigkeiten klein. Die Ladungsträger bestehen aus Elektronen und frei beweglichen Löchern im Kristall.

Die Vorteile sind:

1. **gute Zeitauflösung.**

Durch die geringen Dimensionen des Zählers sind die Sammelzeiten der Ladungsträger klein, was einen schnellen Impulsanstieg zur Folge hat.

2. **geringe Größe.**

Wegen der kurzen Reichweite geladener Teilchen in Festkörpern kann man in kleine Zählern noch sehr hohe Energien nachweisen, wobei gleichzeitig der Ort des Teilchens durch die Zählergröße noch gut definiert ist.

3. sehr gute Energieauflösung.

Die notwendige Energie zur Freisetzung eines Ladungsträgerpaares ist gegenüber den anderen Zählern sehr klein. Ein Vergleich der Freisetzungsenergien für verschiedene Detektortypen findet sich in Tabelle (5.2).

Tab. 5.2: Freisetzungsenergien [Bos92]

| Detektor | Energie [eV] |
|---------------------------|--------------|
| Szintillatoren | |
| Plastik | 100 |
| Anthracen | 60 |
| NaI | 28 |
| gasgefüllte Zähler | 30 |
| Halbleiter | |
| Silizium | 3.6 |
| Germanium | 2.9 |

Das Auftreten positiver und negativer Ladungsträger im Halbleiterkristall wird durch das Bändermodell veranschaulicht. Demnach können sich die Elektronen nur in bestimmten Energiebändern aufhalten, während die Bereiche dazwischen verboten sind. Für den Leitungsmechanismus im Halbleiter sind nur das oberste voll besetzte Band, das *Valenzband*, und das unterste leere Band, das *Leitungsband*, von Interesse. Zwischen beiden liegt der Bandabstand W mit der Breite 1,1 eV für Silizium bzw. 0,66 eV für Germanium.

Die im Valenzband festsitzenden Elektronen können durch Zufuhr der Mindestenergie E_{min} (welche gleich dem Bandabstand W ist) in das Leitungsband gehoben werden und sind dort frei beweglich. Dadurch entsteht außer einem freien Leitungselektron auch ein ebenfalls frei bewegliches Loch im Valenzband. Dieses kann als positiv geladener Ladungsträger betrachtet werden und wandert dadurch, daß ein benachbartes Elektron in das Loch hineinspringt und selbst ein Loch hinterläßt.

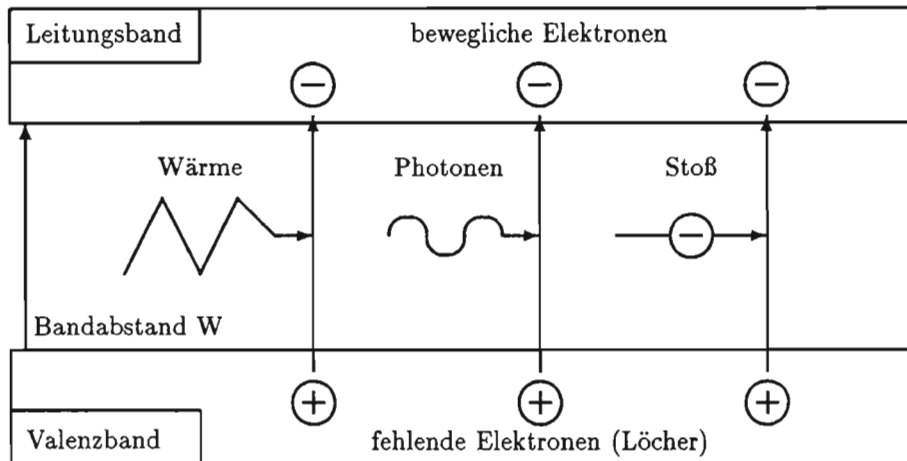


Abb. 5.5: Bildung von Elektron-Loch-Paaren

Die Halbleiteratome Germanium und Silizium sind über Einzelbindungen an ihre vier Nachbarn gebunden (Diamantgitter). Jedes Atom liefert je Bindung ein Elektron des Elektronenpaares, das sich im Valenzband befindet. Das Leitungsband hingegen ist leer. Freie Ladungsträger lassen sich leicht durch Dotierung mit Fremdatomen erzeugen. Der Einbau eines fünfwertigen Elements, wie z.B. Arsen, liefert ein Elektron, das nicht für eine Bindung benötigt wird und deshalb schon bei sehr geringer Energiezufuhr (schon durch Wärmezufuhr bei Zimmertemperatur) ins Leitungsband wechselt. In so dotierten Halbleitern sind die Elektronen die überwiegenden Ladungsträger, ein solcher Halbleiter heißt n-dotiert.

Beim Einbau von dreiwertigen Fremdatomen, wie z.B. Aluminium, fehlt hingegen ein Valenzelektron. Es kann den Akzeptoratomen sehr leicht aus der Umgebung geliefert werden. Somit hat man schon bei Zimmertemperatur sehr viele Löcher als Ladungsträger und erhält einen p-dotierten Halbleiter.

Der kleine Energiebetrag zur Erzeugung freier Ladungsträger kann bei dotierten Halbleitern bereits von geringer thermischer Energie überwunden werden. Daher geht man davon aus, daß bei Raumtemperatur alle Störstellenatome ionisiert sind und freie Ladungsträger gespendet haben [Bos92].

An einer Grenzschicht zwischen n- und p-dotiertem Halbleiter, dem pn-Übergang, diffundieren die negativen Ladungsträger in die jeweils andere Zone und rekombinieren dort mit den ‚positiven‘ Ladungsträgern dieser Zone. Die ladungsträgerfreie Zone leitet im Idealfall keinen Strom. Durch die zurückbleibenden Ladungen baut sich eine Raumladungszone auf, was die weitere Diffusion verhindert.

Eine von außen angelegte Spannung kann die ladungsträgerfreie Zone weiter vergrößern (Sperrspannung) oder so weit verkleinern, daß der pn-Übergang schließlich Strom leitet. Die in der Röntgen- und Gammaskopie eingesetzten Halbleiterdetektoren funktionieren wie folgt: Bei einem p^+n -Detektor gelangt die Strahlung durch die relativ dünne und stark dotierte p-Schicht in das großvolumige, aber schwach dotierte n-Gebiet. Eine von außen angelegte Sperrspannung sollte so groß sein, daß sich die Raumladungszone möglichst über das ganze n-Gebiet erstreckt. Die Ausdehnung im p-Gebiet kann vernachlässigt werden. Um eine verlustarme Ladungssammlung zu gewährleisten, müssen die nachzuweisenden Teilchen ganz innerhalb der Raumladungszone absorbiert werden, da dort die gebildeten Elektronen-Loch-Paare durch das relativ starke elektrische Feld getrennt werden können, bevor sie wieder rekombinieren.

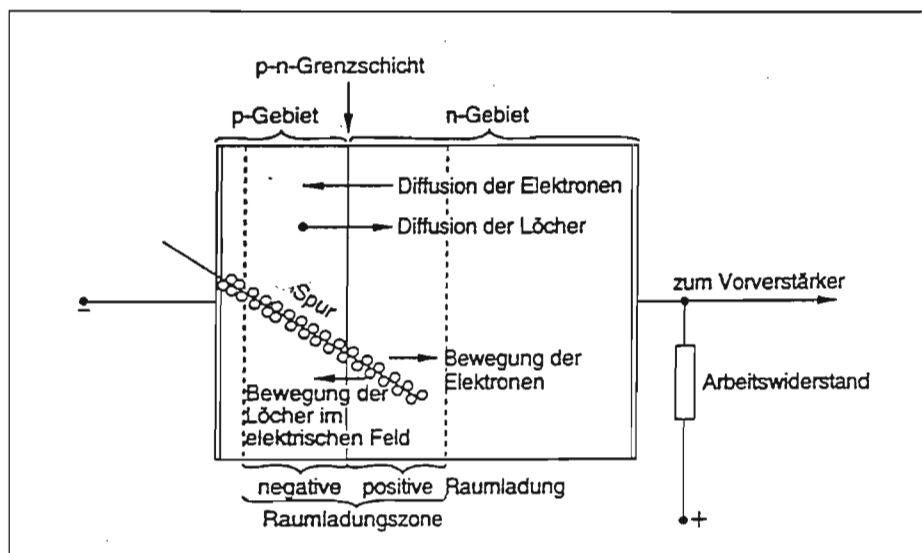


Abb. 5.5: Kristall eines Halbleiterdetektors [Deb92]

Das für die Gammaskopie am besten geeignete Material ist Germanium. Es können heute hochreine Kristalle mit einer Störstellenkonzentration von $N \approx 10^{10}$ pro cm^3 gezogen werden, was eine Ausdehnung der Raumladungszone und somit des sensitiven Volumens auf mehrere Zentimeter ermöglicht [Bos92].

Anfang der 70er Jahre stand lediglich Material von minimal $N \approx 10^{14}$ pro cm^3 Störstellenkonzentration zur Verfügung. Um auf die erforderliche niedrige Nettodotierung zu kommen, wurde p-leitendes Material durch Eindriften von Lithium (Donatoren) kompensiert. Der Nachteil der Lithium-gedrifteten Ge(Li)-Detektoren ist, daß der Detektor auch im spannungslosen Zustand mit Flüssigstickstoff gekühlt werden muß, um eine Verände-

rung in der kompensierten Zone durch die leicht beweglichen Lithium-Atome zu vermeiden.

Da Germanium einen relativ kleinen Abstand von Leitungs- und Valenzband hat, kommt es bei Raumtemperatur zu einer hohen thermischen Generation freier Ladungsträger, was zu einem hohen Leckstrom des Detektors führt. Daher ist eine Kühlung mit Flüssigstickstoff zwingend erforderlich, solange sich der Detektor in Betrieb befindet.

Ausführungsformen

Die gängigsten Ausführungsformen für Halbleiterdetektoren sind die Koaxialdetektoren. Daneben werden planare Detektoren, Bohrlochdetektoren und Ringdetektoren verwendet.

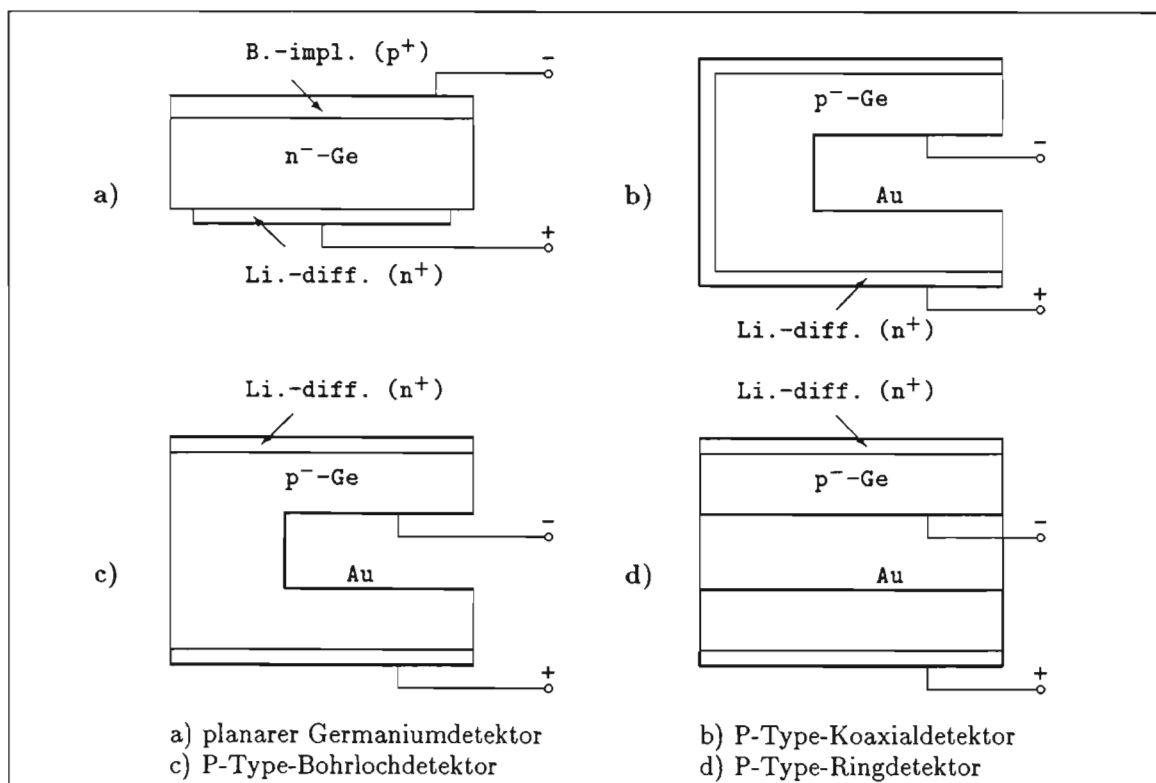


Abb. 5.7: Ausführungsformen von Halbleiterdetektoren

Der P-Typ-Koaxial-Detektor besteht aus P-Typ Grundmaterial. Der pn-Übergang wird durch eine hochdotierte n⁺-Schicht gebildet, die durch Lithiumdiffusion erzeugt wird und eine Dicke von ca. 0,5 mm hat. Der Rückkontakt erstreckt sich über die ganze Fläche des goldbedampften Sackloches. Idealerweise sollte der Abstand vom Sacklochende bis zur Stirnfläche nicht größer als 20 mm und die Höhe des Detektors gleich dem Durchmesser sein. Um den Detektor in Sperrichtung zu betreiben, muß an der n⁺-Schicht die positive

und am Rückkontakt die negative Spannung anliegen.

Der Bohrlochdetektor gleicht dem P-Type-Koaxial-Detektor. N-Type-Detektoren haben die gleiche Form wie P-Type-Detektoren, aber eine inverse Dotierung. Der pn-Übergang wird durch Ionenimplantation erzeugt. Diese Bor-dotierte p^+ -Schicht ist dünner als $1 \mu\text{m}$. Die Lochinnenseite wird mit Lithium diffundiert und bildet den n-Kontakt.

Koaxiale Detektoren haben das größte sensitive Volumen und werden daher für Energien bis zu 10 MeV eingesetzt. Die untere Nachweisgrenze im Energiebereich hängt von der effektiven Dicke des Eintrittsfensters ab. Da hierbei besonders die Dicke der Totschicht, d.h. der hochdotierten Schicht an der Oberfläche, mit eingeht, kann man mit ionenimplantierten Detektoren niedrigere Energien nachweisen. Dies ist der wichtigste Unterschied zwischen N- und P-Type-Detektoren. Da der Herstellungsprozeß bei N-Type-Detektoren aufwendiger und kritischer ist, sind diese teurer als P-Type-Detektoren.

Charakteristische Detektorparameter

Als wichtigste charakteristische Parameter werden die relative Nachweiswahrscheinlichkeit (Efficiency), die Energieauflösung und das Peak-zu-Compton-Verhältnis von den Detektorherstellern standardmäßig angegeben.

Die relative Efficiency eines koaxialen Germaniumdetektors wird laut IEEE-Standard mit der 1,33 MeV-Linie von ^{60}Co spezifiziert und gemessen. Die Definition lautet [Ans86]:

Die relative Efficiency ist das prozentuale Verhältnis der Zählrate, die in 25 cm Entfernung zu einer punktförmigen ^{60}Co Quelle bei 1,33 MeV gemessen wird, zu der Zählrate, die sich unter gleichen Bedingungen mit einem 3x3 Zoll NaI(Tl)-Szintillationsdetektor ergibt.

Neben der relativen Efficiency sind manchmal auch die absolute und die intrinsische Efficiency von Interesse.

$$\text{absolute Eff.:} \quad \varepsilon_{abs} = \frac{\text{gezählte Ereignisse}}{\text{von der Quelle emittierte Quanten}} \quad (5.2)$$

$$\text{intrins. Eff.:} \quad \varepsilon_{int} = \frac{\text{gezählte Ereignisse}}{\text{in Detektor eingefallene Quanten}} \quad (5.3)$$

Als Faustregel gilt überschlagsmäßig für einen koaxialen Detektor, der in Höhe und Durchmesser ungefähr gleich ist, daß pro 25g Germanium 1 % relative Efficiency resultieren. Ist d gleich der Höhe und dem Durchmesser des Detektors, so ergibt sich:

$$\varepsilon_{rel} = 0,17 \text{ cm}^{-3} \cdot d^3 \quad (5.4)$$

Die Energieauflösung eines koaxialen Detektors wird ebenfalls mit der 1,33 MeV-Linie von ^{60}Co spezifiziert und als Halbwertsbreite (FWHM = Full Width at Half Maximum) in keV angegeben. In der Praxis können zwei Linien gut getrennt werden, wenn sie mindestens eine Halbwertsbreite auseinander liegen.

Bei der Messung geringer Impulsraten ist es schwierig, die Signale des Untergrundes gestreuter Umgebungsstrahlung herauszufiltern. Das gelingt um so besser, je kleiner das

Energiefenster ist, das man um den Gammapeak legt. Dies erfordert eine schmale Peakform. Nicht nur der FWHM-Wert ist hierbei von Interesse, sondern auch die Peakbreite bei einem Zehntel (FWTM) und Fünfzigstel (FWFM) der Peakhöhe. Das Verhältnis von FWTM zu FWHM gibt an, wie gut die tatsächliche Peakform an die theoretische Gaußform (FWTM / FWHM = 1,82 [Deb92]) herankommt.

Bei Halbleiterdetektoren setzt sich die Energieauflösung ΔE (=FWHM) hauptsächlich aus den drei Komponenten

$$\Delta E^2 = \Delta E_n^2 + \Delta E_q^2 + \Delta E_d^2 \quad (5.5)$$

zusammen.

ΔE_q stellt den Einfluß der statistischen Schwankung dar, ΔE_n bedeutet elektrisches Rauschen und ΔE_d ist die Verschlechterung der Auflösung durch Verluste bei der Ladungssammlung.

Im Energiebereich zwischen 150 keV und 7 MeV ist die Comptonstreuung der dominante Effekt (vergl. Kap. 5.1). Obwohl viele Quanten durch Mehrfachstreuung ganz absorbiert werden und so zum Full Energy Peak beitragen, gibt es einige, die statistisch verteilt ihre Energie nur teilweise abgeben und zum Comptonuntergrund beitragen. Dies führt zu einer Erhöhung der Nachweisgrenze, wenn der untersuchte Peak im Comptonuntergrund einer Linie mit höherer Energie liegt. Ein Detektor mit einem guten Peak-zu-Compton-Verhältnis ermöglicht eine Erniedrigung der Nachweisgrenze.

Laut IEEE-Standard wird das Peak-zu-Compton-Verhältnis unter den gleichen Bedingungen wie die relative Efficiency gemessen. Dabei entspricht der Wert dem Verhältnis aus maximaler Höhe des 1,332 MeV-Peaks zu dem durchschnittlichen Wert des Comptonkontinuums zwischen 1,040 und 1,096 MeV, wobei sich das Compton-Kontinuum der 1,332 MeV-Linie von 0 bis 1,118 MeV erstreckt [Bos92].

Detektoren und Meßplätze des ZSR

Im November 1995 wurden für das ZSR zwei neue Meßplätze im Isotopenlabor eingerichtet, jeweils einer im sog. Iod-Labor und im sog. Strontium-Labor. Die dort installierten TMCA2-Systeme wurden von Firma target systemelectronics GmbH (Solingen) hergestellt und ersetzen alte ND-66 Systeme von Firma Nucear Data. Jeder Meßplatz bestand aus einem AT-kompatiblen PC, einem NaI-Szintillationsdetektor und einem Halbleiterdetektor sowie der nötigen Elektronik zum Betrieb der Detektoren.

Um die Hintergrundstrahlung abzuschirmen, stehen die Kristalle aller Detektoren in Blei-

abschirmungen von ca. 10 cm Wandstärke. Die Halbleiterdetektoren werden über einen Kühlfinger in einem mit flüssigem Stickstoff gefüllten Dewar-Gefäß unter dem Detektor gekühlt.

Der NaI-Detektor im Iod-Labor ist zusätzlich mit einem Probenwechsler für Petrischalen von 5 cm Durchmesser ausgerüstet, welcher die Schalen durch einen Durchbruch in der Abschirmung direkt über die Detektorkappe fährt (vergl. Kap. 5.5).

Das Vielkanalanalysatorsystem TMCA2, welches die Detektoren steuert, besteht aus einem Softwarepaket sowie einer oder mehreren TMCA2-Einsteckkarten für AT-kompatible Rechner.

An jeder TMCA2-Karte können zwei externe ADCs angeschlossen werden, wobei sich jeweils 2 solcher Karten in einem PC befanden. Da keine externe Pufferung der Kanalinhalt erfolgt, werden diese direkt im Hauptspeicher des Rechners abgelegt.

Das mitgelieferte Programmpaket stellt die Schnittstelle zwischen Experimentator und Meßsystem dar.

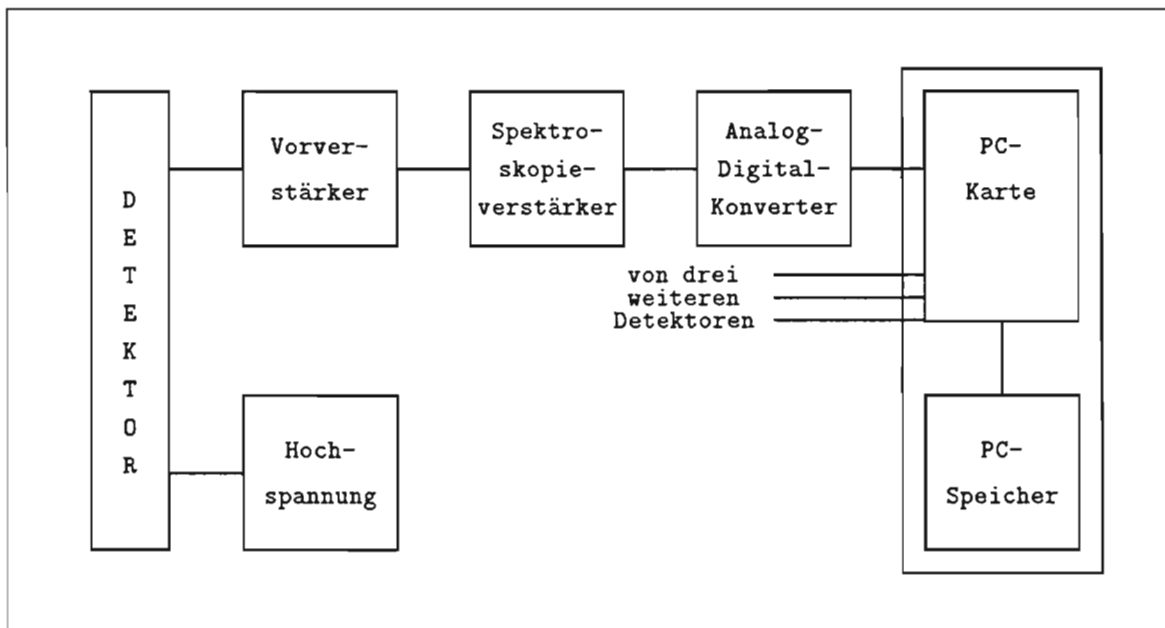


Abb. 5.8: Blockbild TMCA2-Meßdatenerfassungssystem

Aus Gründen der Datensicherheit ist der Meßplatz im Iod-Labor inzwischen in zwei unabhängige Plätze getrennt worden, so daß jetzt sowohl NaI-Szintillator als auch der Halbleiterdetektor über eigene Elektronik und einen eigenen PC verfügen.

Am Meßplatz im sog. Bestrahlungsblock sind drei Ge-Halbleiterdetektoren an einen PC angeschlossen. Ein koaxialer P-Typ Koaxialdetektor von Firma Ortec steht seit Ende 1994 an diesem Platz, zwei weitere P-Typ Koaxialdetektoren (von Ortec bzw. PGT) sind Ende 1996 aus dem sogenannten Chemielabor hinzugekommen.

Zur Meßdatenerfassung wird das MAESTRO-System von Firma Ortec verwendet. Es besteht aus einer Einsteckkarte für AT-kompatible PCs und einem Softwarepaket zur Detektorsteuerung und Spektrenbearbeitung. Die Zählereignisse werden auf einem MCB (Multi-Channel-Buffer), angeschlossen zwischen Spektroskopieverstärker und PC, von analoge in digitale Signale konvertiert und im Speicher des MCB gesammelt. An jedem MCB können bis zu vier Detektoren angeschlossen werden. Der MCB besitzt nur einen integrierten ADC, welcher als Multiplexer alle 4 Kanäle auswertet. Die einem Count folgende Totzeit des ADC wirkt sich auf alle vier Kanäle aus. Hohe Totzeit auf einem Kanal bedeutet ebensohohe Totzeit auf allen anderen Kanälen, auch wenn die dort gemessenen Präparate viel weniger aktiv sind. Dadurch kann das MAESTRO-System keine so hohen Countraten verarbeiten wie das TMCA-System.

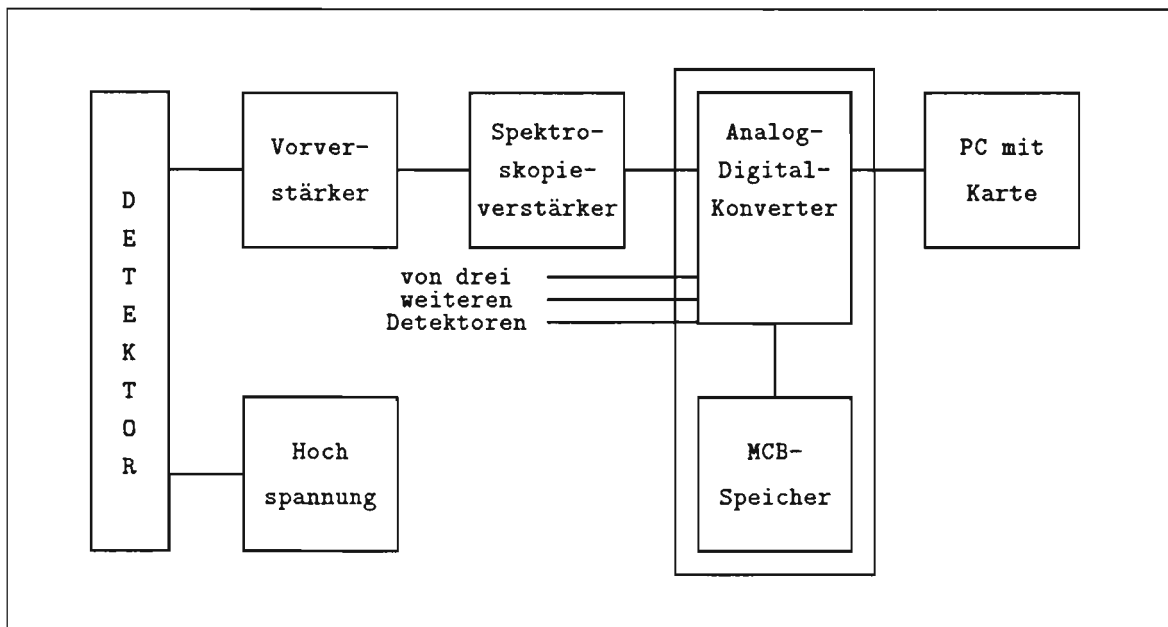


Abb. 5.9: Blockbild MAESTRO-Meßdatenerfassungssystem

5.2 Bestehende Probleme

5.2.1 Detektorsysteme

Sowohl RNAA als auch Batchversuche werden am ZSR schon seit einiger Zeit routinemäßig durchgeführt und ausgewertet. Zur Analyse der Bestrahlungsprodukte ^{130}I bzw. ^{126}I wird der Ge(Li)-Halbleiterdetektor im Iod-Labor verwendet. Bis Ende 1995 wurde dieser Meßplatz von einem ND-66 System der Firma Nuclear Data gesteuert.

Die Ausbeutebestimmung der RNAA über das ^{125}I wird auf dem HPGe-Detektor mit Berylliumfenster im Bestrahlungsblock durchgeführt, da nur dieser in der Lage ist, γ -Linie bei $E_\gamma = 35 \text{ keV}$ von ^{125}I und einige Röntgenlinien nachzuweisen.

Die bei den Batchversuchen verwendeten Radionuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr werden auf verschiedenen Detektoren gemessen. Durch seine geringe γ -Energie kann ^{125}I außer mit dem HPGe-Detektor mit Berylliumfenster im Bestrahlungsblock nur noch mit den NaI-Detektoren gemessen werden. ^{134}Cs und ^{85}Sr können sowohl auf NaI-Detektoren als auch auf Halbleiterdetektoren gemessen werden. Es werden standardmäßig die Szintillatoren verwendet, da diese durch ihre größeren Kristalle ein höheres Ansprechvermögen besitzen, was zu kürzeren Meßzeiten führt. Die geringere Energieauflösung kann bei den meisten Nuklidkombinationen in Kauf genommen werden. Da während eines laufenden Batch-Versuches große Mengen an Proben anfallen, ist der Einsatz des automatischen Probenwechslers erforderlich.

Die Umstellung von den festverdrahteten Vielkanalanalysatoren der ND-66 Systeme auf PC-basierte Meßplätze ist für den Anwender nicht trivial. Daher entstand die Notwendigkeit, für Mitarbeiter mit verschiedensten Ausbildungen und Arbeitsgebieten eine bedienerfreundliche und auf die Meßaufgaben abgestimmte Programmumgebung und Oberfläche zu schaffen.

Nach Installation des TMCA-Systems war das dringendste Problem die vorhandene Menüstruktur von TMCA an die Aufgaben der Meßplätze anzupassen. Nur ein Bruchteil der Funktionalität von TMCA wird für den praktischen Einsatz als Meßdatenerfassungssystem überhaupt benötigt. Des weiteren ist die mitgelieferte Menüstruktur zu komplex. Durch die Umstellung auf das TMCA-System fehlte außerdem eine Schnittstelle zum Pro-

benwechsler am NaI-Detektor im Iod-Labor. Für die vorher vorhandenen ND66-Systeme gab es ein Programmpaket, welches neben der Steuerung des Wechslers auch die Auswertung der erhaltenen Spektraldaten vornahm. Da ohne verfügbaren Probenwechsler der mögliche Durchsatz an Proben nicht ausreichte, mußte hier ein neues Programmpaket entwickelt werden, das den Probenwechsler steuern und eine einfache Auswertung vornehmen konnte.

Des weiteren erforderten folgende Eigenschaften des TMCA-Systems eine zuverlässige Anpassung an die Anforderungen des routinemäßigen Meßbetriebes:

- Fehlende Möglichkeit, das Experiment begleitenden Informationen abzuspeichern.
Es werden standardmäßig nur das Datum, die Uhrzeit, Livetime und Realtime gespeichert. Speichern von Daten über das zugehörige Experiment, die Probe, Einwaage oder Geometrie wird nicht unterstützt.
- Verwendung einer Verzeichnisstruktur nicht möglich
Dateinamen in TMCA dürfen höchstens 15 Zeichen lang sein. Die Eingabe eines absoluten Dateinamens inklusive Unterverzeichnissen ist nicht möglich. Somit können z.B. Spektren, die zu verschiedenen Experimenten gehören, nicht ohne weiteres in getrennte Unterverzeichnisse abgelegt werden.
- Keine Warnung beim Überschreiben
Wird ein bereits existierendes Spektrum überschrieben, so wird vorher weder um Bestätigung gebeten, noch erscheint eine Warnung. Das alte Spektrum erhält die Extension BAK. Nach zweimaligem Überschreiben ist das ursprüngliche Spektrum verloren, ohne daß dieses vom Anwender bemerkt werden kann.
- Kein automatisches Speichern beendeter Messungen
Es besteht keine Möglichkeit, beendete Messungen flexibel unter beim Start festgelegten Dateinamen speichern zu lassen. Da jedoch besonders die für die RNAA durchgeführten Messungen langwierig und nicht wiederholbar sind, ist ohne automatisches Abspeichern die Gefahr eines Datenverlustes beim ursprünglichen TMCA-System inakzeptabel hoch.

Das MAESTRO-System wird im ZSR schon seit einiger Zeit eingesetzt. Die Bedienung ist allen Mitarbeitern, die auf den entsprechenden Detektoren messen, vertraut. Obwohl die

Maestro-Software sehr stabil läuft und schon seit einigen Jahren im ZSR verwendet wird, gab es eine Reihe von Punkten, die zu verbessern waren:

- Menüstruktur

Die verwendete Menüstruktur ist unübersichtlich und gewöhnungsbedürftig. Sie entspricht keinerlei Standard. Einige Befehle haben ungünstig gewählte Namen, andere finden sich an ungewöhnlichen Stellen wieder.

- Erfassung von Experimentdaten

Außer der Beschreibung von Detektor und Probe enthält das Maestro-Spektrum keine Einträge über Experimentdaten. Es fehlt die Möglichkeit, Geometrie, Experiment, Anwender und Einwaage zu vermerken; es läßt sich kein freier Kommentar mitspeichern.

- Unterstützung von Verzeichnissen

Der Laden-Dialog ist veraltet. Angezeigt werden nur die Dateien eines Verzeichnisses, ein Verzeichniswechsel ist nicht möglich. Der Speichern-Dialog verhält sich ähnlich. Aus diesen Punkten resultiert ein unstrukturiertes Abspeichern von Spektren.

- Kein automatisches Speichern fertiger Messungen

Ein automatisches Abspeichern fertiger Spektren kann zwar voreingestellt werden, es ist durch die Programmkonzeption aber nicht möglich zu garantieren, daß dieser Vorgang auch immer ausgeführt wird.

Als Teillösung, die zumindest ein ungewolltes Überschreiben von Spektren verhindert und wiederholte Ausführung von Standardmessungen erleichtert, existiert für MAESTRO ein Programm. Dieses vermerkt, ob die aktuelle Messung schon gespeichert wurde. Vor dem Start einer neuen Messung muß ein fertig gemessenes Spektrum gesichert werden. Zusätzlich können Standardmessungen aus einem Menü ausgewählt werden, wobei dann alle für die Messung nötigen Einstellungen automatisch vorgenommen werden.

Dieses Programm funktioniert sehr gut, unterstützt aber nur einen Detektor. Schon zu Beginn dieser Diplomarbeit stand jedoch fest, daß das MAESTRO-System im Bestrahlungsblock um zwei Detektoren erweitert werden sollte. Somit mußten vier Detektoren mit TMCA und drei mit MAESTRO gesteuert werden. Beide Systeme sind völlig inkompatibel untereinander. Die grundlegenden Konzepte unterscheiden sich ebenso sehr wie

die Bedienungsflächen und die Formate der Spektraldateien. Keines dieser Formate kann von GAMMA (s. Kap. 5.2.2) gelesen oder in andere Programme, wie z.B. Microsoft Excel, importiert werden.

5.2.2 Auswertung

Eine Auswertung der gewonnenen Spektren erfolgte auf den ND-66 Systemen direkt auf den Vielkanalanalysatoren. Eine Rückverfolgbarkeit der Daten zur Qualitätssicherung war nicht möglich. Sowohl für den Meßplatz im Bestrahlungsbereich als auch dem ehemaligen Meßplatz im Chemielabor existieren einige von Mitarbeitern des Institutes entwickelte Programme, die alle benötigten Informationen zusammenstellen. Diese Programme konnten ggf. Peaks suchen, auswerten und einen Report ausdrucken. Eine automatisierte vollständige Analyse von Spektren fehlte aber.

Da das TMCA-System durch sein Design das Ausführen von Auswerteprogrammen auf dem Meßplatzrechner nicht zuläßt, muß hier eine strikte Trennung zwischen Meßplatz und Auswertung erfolgen. Gemessene Spektren werden auf Diskette überspielt und am jeweiligen Arbeitsplatzrechner ausgewertet. Einzige Ausnahme durfte die automatische Auswertung des Probenwechslers darstellen.

Zur schnellen Auswertung einfacher Halbleiter-Spektren kann das Programm GAMMA benutzt werden. GAMMA kann Spektren des hauseigenen Formates bearbeiten. Zur detaillierten Auswertung komplexer Spektren stehen zwei Arbeitsplatzlizenzen des Programmes GAMMAW zur Verfügung. GAMMAW bietet eine große Fülle an Funktionen und kann die Formate aller Meßsysteme des ZSR lesen.

Ein Programm zur Auswertung von NaI-Spektren ist nicht vorhanden. Aufgrund der viel geringeren Energieauflösung der Detektoren können NaI-Spektren nicht mit GAMMA oder GAMMAW ausgewertet werden (siehe auch Kap. 6.2.1).

5.3 Konzept einer Integration

Da Messungen zu gleichen Experimenten auf verschiedenen untereinander inkompatiblen Meßplatzsystemen durchgeführt werden, mußte eine Integration dieser Meßplätze zu einem Gesamtsystem erfolgen. Dabei sollten die Schwachpunkte beider Systeme so gut wie möglich behoben werden.

Als dringender Punkt mußte die überfrachtete Menüstruktur von TMCA an die Bedürfnisse der einzelnen Arbeitsplätze angepaßt werden. Die neue Befehlsstruktur wurde in Zusammenarbeit mit den Mitarbeitern des ZSR erstellt und ihren Wünschen angepaßt. Nur die notwendigen Befehle wurden in die neue Struktur aufgenommen, für den Meßbetrieb gefährliche entfernt. Da eine strikte Trennung von Meßplatz und Auswertung erfolgen sollte, wurden alle Auswerte-Befehle aus dem Menü entfernt. Ferner wurde die Menüstruktur auf die jeweils angeschlossenen Detektoren abgestimmt.

TMCA und MAESTRO speichern zu wenig Informationen über die gemessene Probe in ihren Spektraldateien ab. Um Messungen nachvollziehbar zu machen, fehlen Angaben über den Detektor, das Experiment, die Probe, Einwaage und Geometrie. Diese Informationen sollten in standardisierter Form mitgespeichert werden.

Alle Programme mußten einheitliche Arbeitsoberflächen erhalten. Tastenbelegung und Bildschirmaufbau müssen gültigen Standards [Sky90] folgen. Insbesondere müssen alle notwendigen Eingaben so einfach wie möglich erfolgen können. Die Arbeitsoberflächen müssen für das Abspeichern der zusätzlichen Informationen sorgen.

Der Anwender sollte über wenige Tasten alle notwendigen Parameter einer Messung eingeben können. Da viele Messungen eines Experiments stets mit gleichen Vorgaben ablaufen, sollte für jeden Meßplatz eine Liste vordefinierter Messungen aufgestellt werden.

Nach dem Ende einer Messung sollen die gewonnenen Spektraldateien so schnell wie möglich gespeichert werden, spätestens, wenn eine neue Messung gestartet werden soll. Schon vorhandene Spektren dürfen nicht ohne Warnung und Nachfrage überschrieben werden können. Könnten Daten gelöscht werden, muß sich ein Programm immer per Nachfrage bestätigen lassen, ob der Anwender dieses auch wirklich möchte.

Für das ganze zu entwickelnde Programmpaket galt zusätzlich, daß eine Möglichkeit geschaffen werden mußte, durch welche die einzelnen Programme untereinander Informationen austauschen können. Hierzu führten wir auf jedem Meßplatz eine sogenannte Status-

Datei ein, in welcher vermerkt wird, welches Programm zur Zeit welchen Detektor mit welcher Messung belegt [Bot96]. So kann verhindert werden, daß eine laufende Messung unbeabsichtigt unterbrochen oder gelöscht wird.

Ferner müssen sich neue Programme nahtlos in das bestehende Konzept einfügen können, indem sie an der Kommunikation untereinander über die Status-Datei AM2.STT teilnehmen.

Schließlich müssen die Dateiausgaben von Programmen für fremde Software leßbar sein. Die Beschreibung der Realisierung dieser Vorgaben erfolgt in den folgenden Abschnitten.

5.4 Entwicklung einer Benutzeroberfläche

Die Arbeitsoberfläche AUTOMESS-II (im folgenden kurz AM2) hat vier Aufgaben:

1. Sie ermöglicht dem Anwender die komfortable Eingabe aller Meßparameter. Alternativ ist die Auswahl fertiger Parametersätze aus einer vordefinierten Liste möglich.
2. Die Informationen über Detektor, Experiment, Probe, Einwaage und Geometrie werden in der Spektraldatei abgelegt.
3. AM2 verwaltet den Zugriff auf die angeschlossenen Detektoren. Es können nur auf freien Detektoren neue Messungen gestartet werden.
4. Nach dem Ende der Messung wird das fertige Spektrum so schnell wie möglich gespeichert.

Da sich die Meßsysteme MAESTRO und TMCA in ihrer Konzeption sehr unterscheiden, war die Entwicklung von zwei Versionen von AM2 notwendig. Diese Arbeit beschreibt die AM2-Version für das MAESTRO-System des Meßplatzes im Bestrahlungsblock. Die Beschreibung der Version für die TMCA-Meßplätze im Isotopenlabor befindet sich in [Kuh97]. Beide Versionen von AM2 besitzen die gleiche Schnittstelle zum Benutzer, d.h. unabhängig vom Meßplatz oder System sieht die Bildschirmausgabe gleich aus. Alle Eingaben erfolgen in der gleichen Form und in identischer Reihenfolge, ebenso sind alle Tastenbelegungen gleich.

Nach dem Start von AM2 kann der gewünschte Detektor ausgewählt werden, sofern dieser frei ist. Detektoren, auf denen bereits Messungen laufen, stehen nicht zur Verfügung. Nach

dem Detektor erfolgt die Auswahl des Experimentes, für das eine Messung durchgeführt werden soll. Der Name des Experimentes wird ebenfalls in der Spektraldatei abgelegt. Mit dem Experiment liegt auch der Speicherpfad der Spektraldatei fest. Experimente können auch mit festen Angaben über die restlichen Meßparameter verknüpft werden, so daß diese nicht mehr eingegeben werden müssen. Sind alle Meßparameter mit dem Experiment verknüpft, weil z.B. alle Proben eines Experimentes mit stets der gleichen Konfiguration gemessen werden, ist die Eingabe beendet und die Messung kann gestartet werden. Andernfalls fordert AM2 die fehlenden Meßparameter an und sorgt dafür, daß die Angaben über Probenkennung, verwendete Meßgeometrie, Einwaage der Probe und einen freien Kommentar in der Spektraldatei gespeichert werden. Die Angaben über Experiment und Geometrie sind standardisiert, d.h. jedes Experiment und jede Geometrie erhält einen festen Namen. Später kann jederzeit nachvollzogen werden, wie die Messung genau ablief. Als letzter Punkt wird der Dateiname angefordert, unter dem die fertige Messung gespeichert werden soll. Ist der eingegebene Name schon vorhanden, so erfolgt eine Warnung. Es erscheint schließlich eine Zusammenfassung aller Meßparameter. Werden keine Änderungen vorgenommen, wird die gewünschte Messung gestartet. Nach Ablauf der Meßzeit wird die Messung gespeichert und der Detektor wird für die nächsten Versuche freigegeben.

AM2 vermerkt gestartete Messungen in der Statusdatei AM2.STT, so daß andere Programme feststellen können, ob ein Detektor von AM2 belegt ist. Alle Programme, die Messungen starten, wie z.B. die Steuerung des automatischen Probenwechslers oder die Nulleffektüberwachung, nehmen an dieser Kommunikation über AM2.STT teil, so daß gewährleistet wird, daß kein Programm die Messung eines anderen abbricht oder löscht. Versehentliches Löschen fremder Messungen führte in der Vergangenheit immer wieder zu Datenverlusten. Besonders die Langzeitmessungen der RNAA waren gefährdet. Durch die kurze Halbwertszeit des ^{130}I können die Analyseproben nur einmal gemessen werden. Wurde die Messung versehentlich gestoppt oder gelöscht, waren die Daten über das ^{130}I verloren.

Durch die Entwicklung der Benutzeroberfläche Automess II für die beiden am ZSR verwendeten Meßplatzsysteme TMCA und MAESTRO ist es möglich geworden, Messungen besonders komfortabel zu starten. Die Spektren werden mit allen notwendigen Daten verse-

hen, die die Messung jederzeit nachvollziehbar und überprüfbar machen. Spektren werden geordnet und übersichtlich abgespeichert. Messungen mit immer wiederkehrenden Parametern können schnell und ohne lange Eingaben gestartet werden. Versehentlicher Datenverlust gehört der Vergangenheit an. Darüber hinaus wird die Einarbeitungszeit auf die Meßplatzsysteme entscheidend verkürzt, da sowohl TMCA als auch MEASTRO trotz ihres völlig inkompatiblen Designs dem Anwender eine identische Oberfläche zur Verfügung stellen. Durch das offene Programmierkonzept kann AM2 jederzeit erweitert werden. Die neueste Version bietet jetzt (Stand: 1/97) auch die Möglichkeit, Experiment und zugehörige Auswertesoftware zu verknüpfen, so daß die Auswertung automatisch sofort nach dem Ende der Messung beginnt.

5.5 Automatischer Probenwechsler

Hardware

Der automatische Probenwechsler ist an die Abschirmung des NaI-Szintillators im Iod-Labor angebracht. Er kann bis zu 30 Petri-Schälchen von 5 cm Durchmesser halten. Eine von einem Schrittmotor angetriebene Schublade nimmt die Schälchen nacheinander auf und fährt sie durch ein Loch in der Abschirmung über die Detektorkappe. Nach erfolgter Messung werden die Schälchen ausgeworfen.

Der Probenwechsler wird über das Programm PW.EXE aktiviert, welches über die serielle Schnittstelle des Meßrechners mit der Steuerung des Schrittmotors kommuniziert. Durch Aufruf von PW wird die Schublade des Wechslers nacheinander in die Positionen AUSWURF - AUFNAHME - MESSPOSITION gefahren.

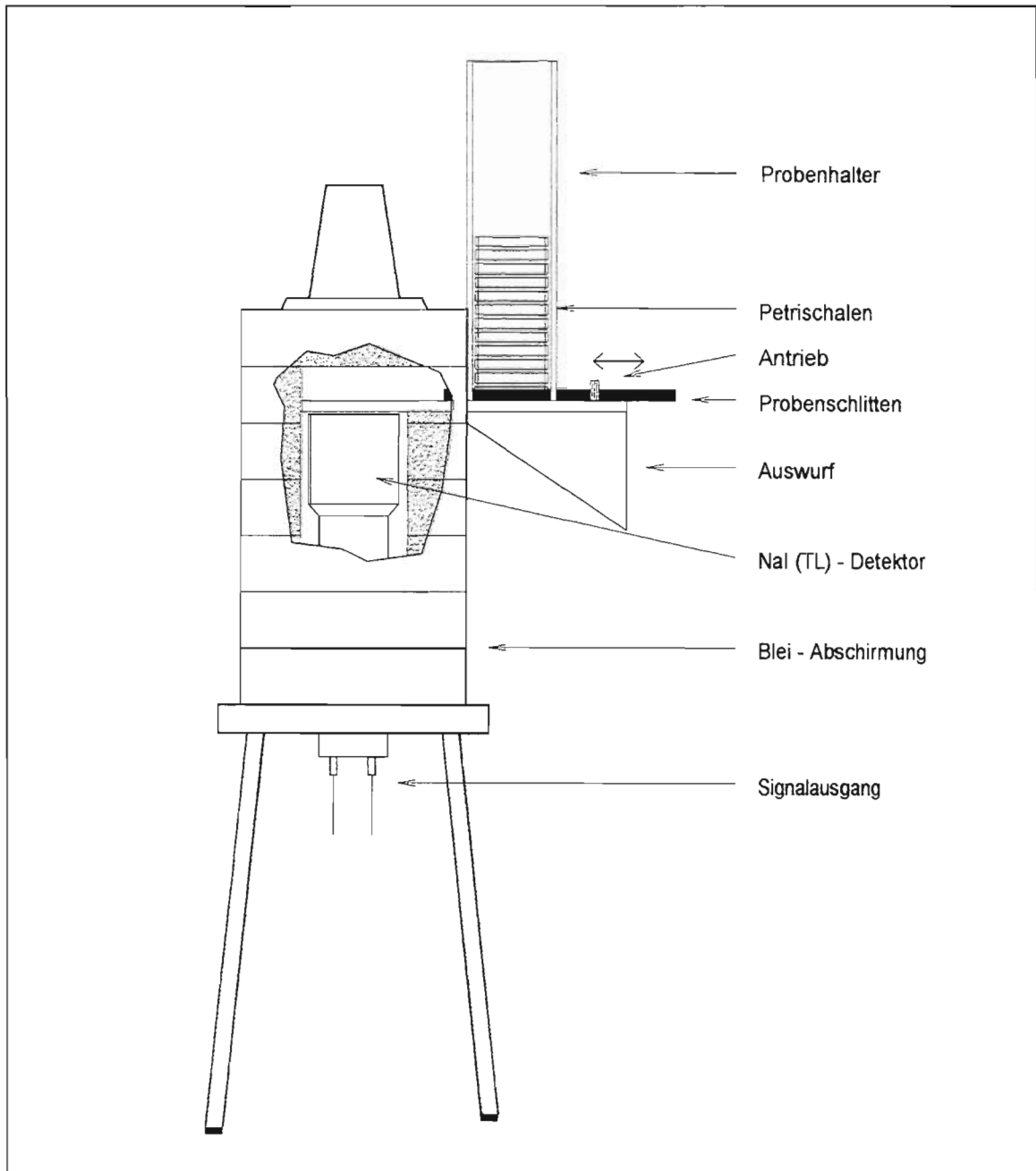


Abb. 5.10: NaI-Detektor mit automatischem Probenwechsler

Software

Den Start einer Reihemessung übernimmt das Programm WECHSLER.EXE. Nachdem sichergestellt wurde, daß der Detektor für eine neue Reihemessung zur Verfügung steht, können alle für die Messung notwendigen Parameter eingetragen werden. Dieses sind die zu messenden Nuklide, die minimale Meßzeit, die minimalen Counts pro ausgewertetem Peak und die maximale Meßzeit pro Probe. Alternativ ist eine Auswahl aus vorher festgelegten

Parametersätzen möglich.

Nach der Eingabe aller Eckdaten kann der Probenwechsler mit Petrischälchen aufgefüllt werden. Alle notwendigen Dateien werden angelegt oder angepaßt, und die Reihenmessung startet mit dem Einfahren des ersten Schälchens.

Nach dem Ablauf der eingestellten Minimalmeßzeit wird die Messung gestoppt und das Spektrum abgespeichert. Das Programm WECHSELN.EXE sorgt für den korrekten Fortgang der Reihenmessung. WECHSELN lädt das gemessene Spektrum und prüft, ob genug Counts zusammengekommen sind oder die maximal zulässige Meßzeit erreicht wurde. Ist eines von beiden der Fall und sind noch weitere Schalen zu messen, so wird mit dem Auswurf der gemessenen Schale und dem Einfahren der nächsten Schale die Reihenmessung fortgesetzt [Bot96].

Automatische Auswertung

Die automatische Auswertung der gemessenen Spektren ist das Kernstück der Programmierung der Wechslersteuerung. Derzeit kann das System Spektren auswerten, in denen die Nuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr in beliebigen Kombinationen gemessen wurden.

^{125}I zerfällt mit einer Halbwertszeit von 60 Tagen in das stabile ^{125}Te . Dabei werden folgende Röntgen- bzw. γ -Quanten der Energien E_γ mit den Wahrscheinlichkeiten η ausgesandt:

Tab. 5.3: γ -Linien des ^{125}I

| | | | | |
|------------------|------|------|------|------|
| E_γ [keV] | 27,2 | 27,4 | 31,0 | 35,6 |
| η | 0,39 | 0,73 | 0,25 | 0,06 |

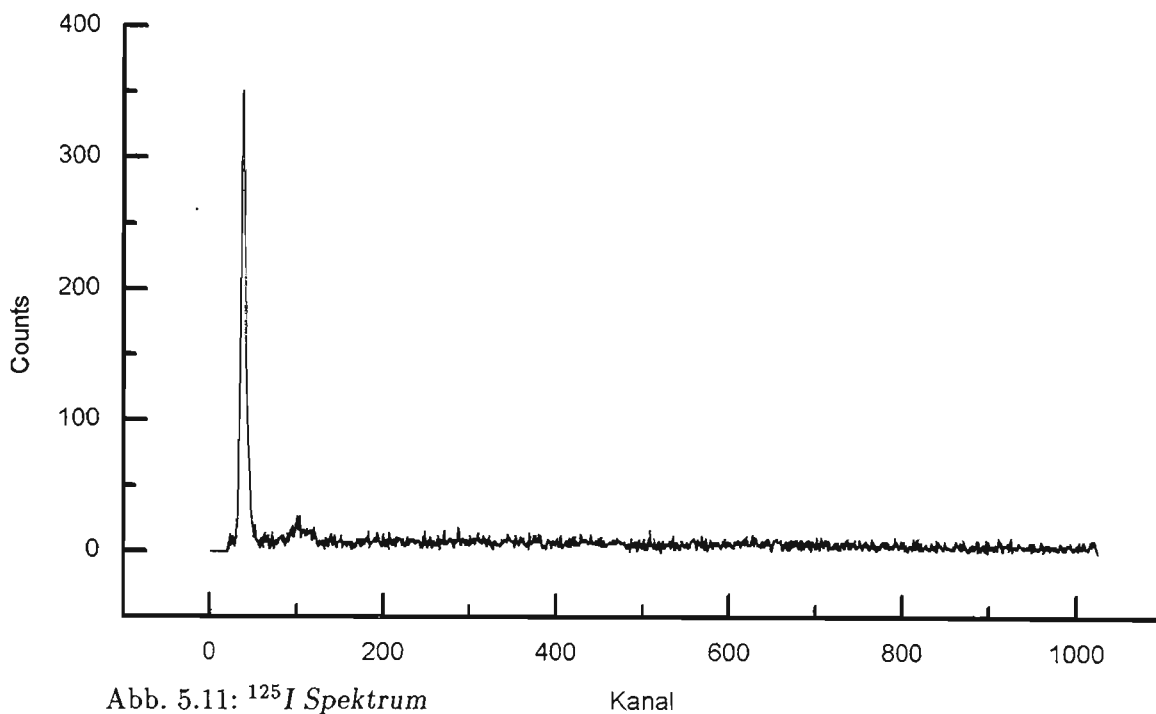


Abb. 5.11: ^{125}I Spektrum

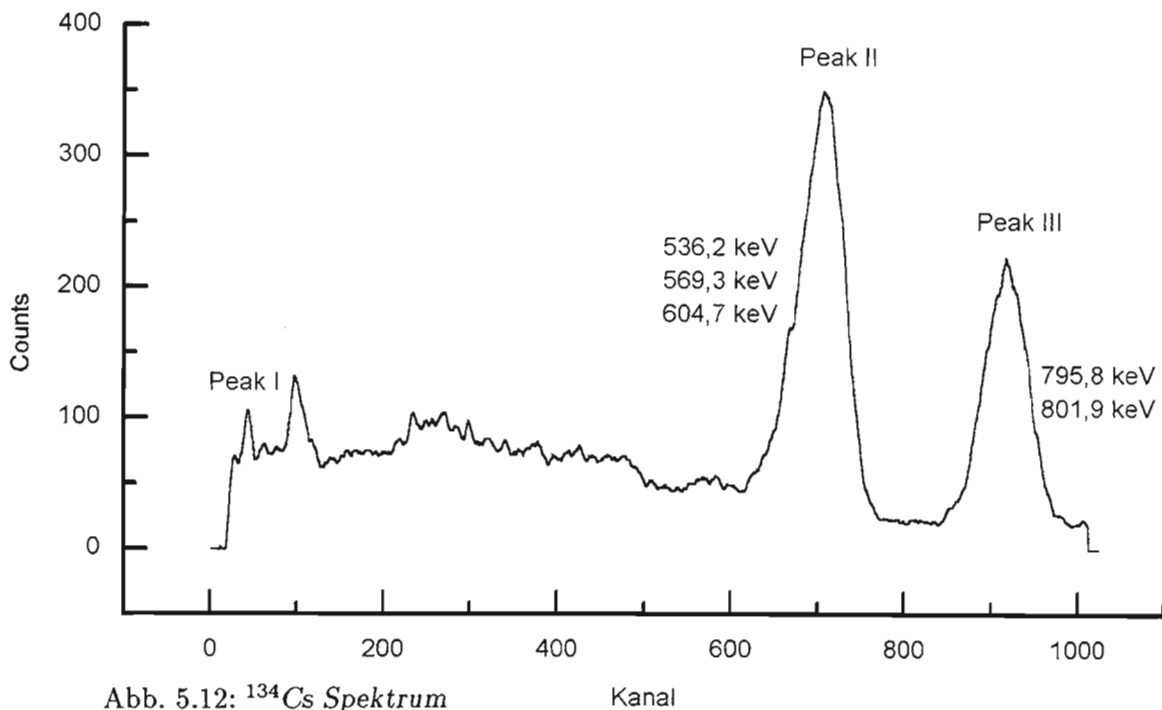
Kanal

Bedingt durch das geringe Auflösungsvermögen eines NaI-Detektors zeigen sich alle diese Linien zusammen in einem Peak.

^{134}Cs zerfällt mit einer Halbwertszeit von 2,06 Jahren in das stabile ^{134}Ba . Es kommt dabei zur Emission folgender γ -Quanten:

Tab. 5.4: γ -Linien des ^{134}Cs

| E_γ [keV] | 31,8 | 32,2 | 36,4 | 475,3 | 563,2 | 569,3 | 604,7 | 795,8 | 801,9 |
|------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| η | 0,002 | 0,004 | 0,001 | 0,014 | 0,083 | 0,154 | 0,976 | 0,854 | 0,873 |

Abb. 5.12: ^{134}Cs Spektrum

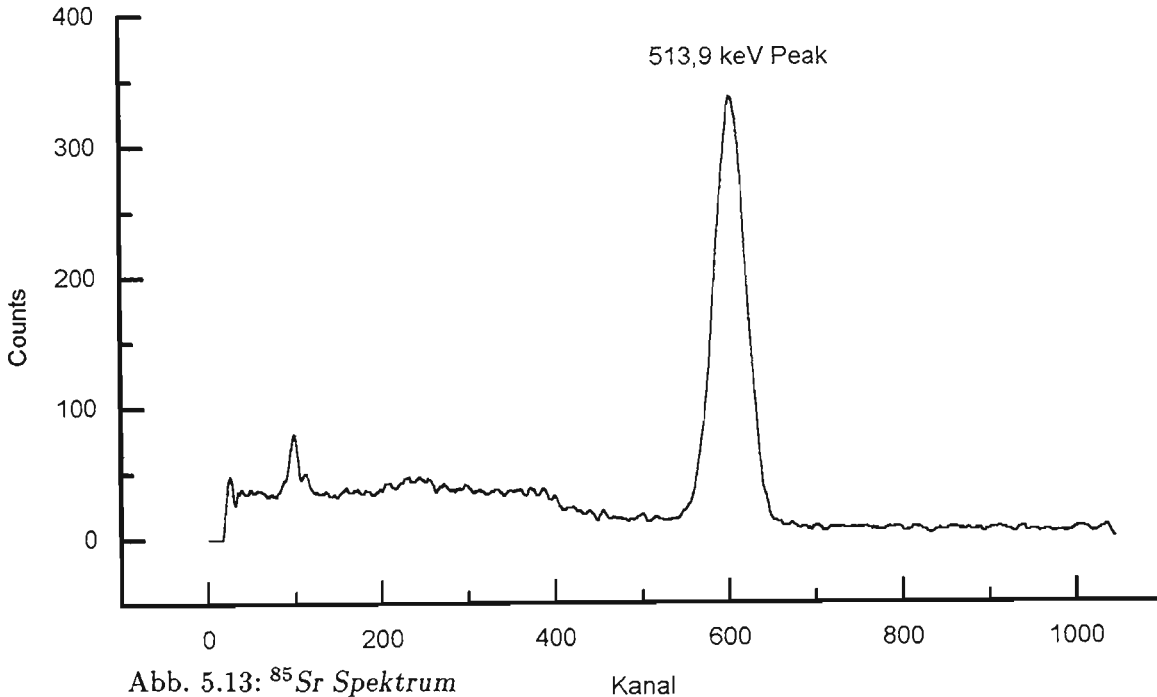
Kanal

Die Linien bei 563,2 keV, 569,3 keV und 604,7 keV verschmelzen im NaI-Spektrum zu Peak II. Ebenso die Linien bei 795,8 keV und 801,9 keV zu Peak III sowie die Linien von 31,8 bis 36,4 keV zu Peak I. Von diesen drei Peaks weisen nur die beiden hochenergetischen nennenswerte Zählraten auf und können zur Auswertung herangezogen werden.

^{85}Sr zerfällt mit einer Halbwertszeit von 64,8 Tagen in das stabile ^{85}Rb . Dabei werden folgende γ -Quanten emittiert:

Tab. 5.5: γ -Linien des ^{85}Sr

| E_γ [keV] | 13,3 | 13,4 | 15,0 | 513,9 | 868,5 |
|------------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| η | 0,170 | 0,330 | 0,086 | 0,993 | 0,001 |



Im NaI-Spektrum ist nur der 513,9 keV-Peak zu sehen. Dieser wird zur Auswertung herangezogen.

Auswertung

Die eigentliche Auswertung beginnt damit, daß WECHSLER die festgelegten ROIs der gemessenen Nuklide, den Wert des Untergrundes der Umgebungsstrahlung und die Informationen zur aktuellen Reihemessung lädt. Dann werden die Kanalinhalte des zuletzt gemessenen Spektrums eingelesen.

Im einfachsten Fall wird nur ein Nuklid gemessen. Die zur ROI (= *Region of Interest*, interessierender Bereich von Kanälen im Spektrum, hier: um einen Peak herum) dieses Nuklids gehörenden Kanäle werden aufintegriert und der Untergrund der Umgebungsstrahlung abgezogen. Erste Versionen von WECHSLER.EXE errechneten einen trapezförmigen Untergrund unter dem betrachteten Peak. Diese Lösung stellte sich für Spektren eines NaI-Detektors als nicht praktikabel heraus. Durch statistische Schwankungen des Untergrundes können sich die Zählraten benachbarter Kanäle stark unterscheiden. Je nachdem, welche Kanäle man dann zur Berechnung des Untergrundtrapezes heranzieht, unterscheidet sich der mögliche Untergrundabzug von Kanal zu Kanal.

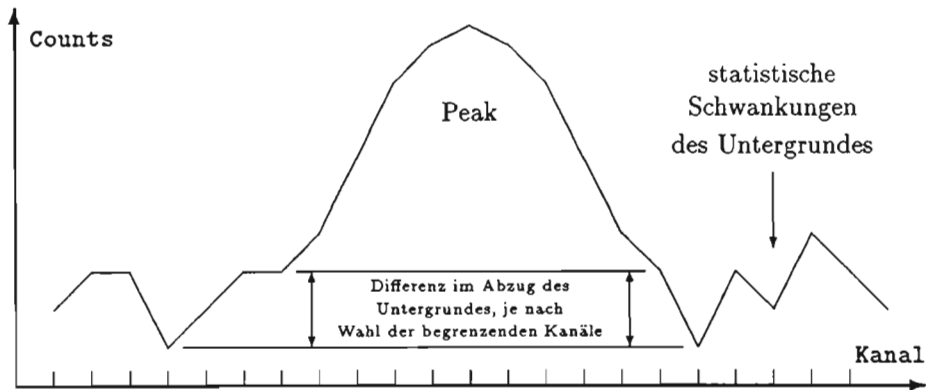


Abb. 5.14: Untergrundabzug durch Trapez

Stattdessen wurde der Untergrund einmal über mehrere Tage kontinuierlich aufgenommen und die zu den ROIs gehörenden Kanäle integriert. Es wird nun ein für jede ROI festgelegter Wert abgezogen. Je länger die Meßzeit, desto genauer stimmen Untergrund in den ROIs und der Durchschnittswert aus der Untergrundmessung überein.

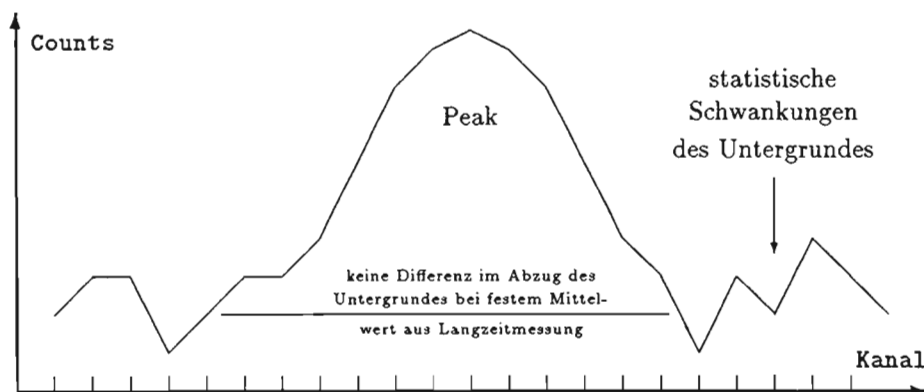


Abb. 5.15: Fester Untergrundabzug

Sind genug Nettocounts gemessen worden oder wurde die vorgegebene maximale Meßzeit pro Schale erreicht, so wird der Zahlenwert der Nettocounts in einer Reportdatei abgelegt. Die gemessene Schale wird ausgeworfen und die nächste in den Detektor eingefahren. Sind noch nicht genug Counts zusammengekommen und die maximale Meßzeit ist noch nicht erreicht, so wird die Meßzeit erhöht und die Messung der gleichen Schale fortgesetzt. Am Ende der Meßreihe enthält die Reportdatei alle Informationen über die vorgenommenen Messungen und die Nettocounts der gemessenen Nuklide. Die Reportdatei kann ausgedruckt oder in andere Programme importiert werden.

Kombinierte Messungen

Werden ^{125}I und ^{134}Cs (oder ^{85}Sr) zusammen gemessen, so wird für beide Nuklide wie oben beschrieben verfahren. Da sich jedoch der Iod-Peak im Compton-Untergrund des Caesiums befindet und ^{134}Cs darüber hinaus auch einen Peak in der Iod-ROI besitzt, muß der Anteil des ^{134}Cs von der Iod-Zählrate subtrahiert werden. Dieses ist möglich, da die Counts im ausgewerteten ^{134}Cs -Peak proportional zu den vom ^{134}Cs verursachten Counts in der Iod-ROI sind.

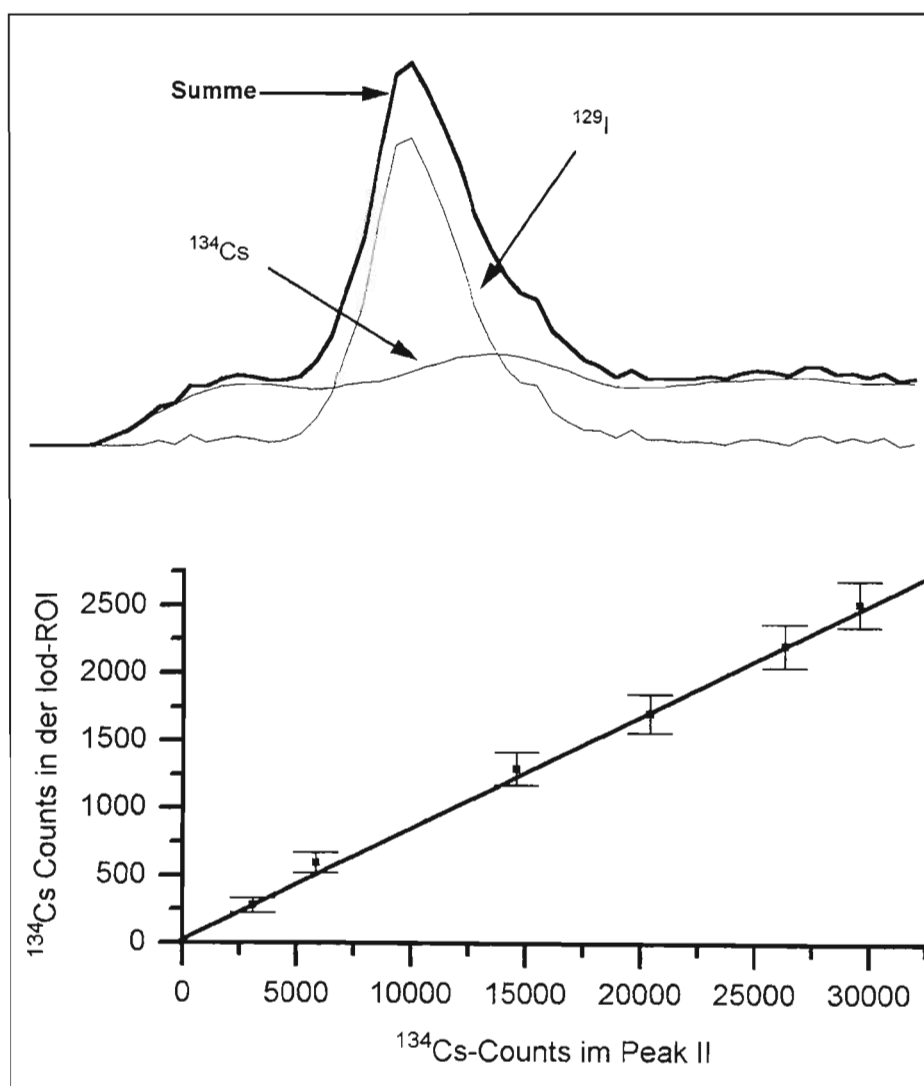


Abb. 5.15: ^{134}Cs -Untergrund im ^{125}I -Peak

1000 Counts im großen ^{134}Cs -Peak entsprechen 90 Counts in der ^{125}I -ROI.

Für den ^{85}Sr -Anteil in der ^{125}I -ROI wird auf die gleiche Art verfahren.

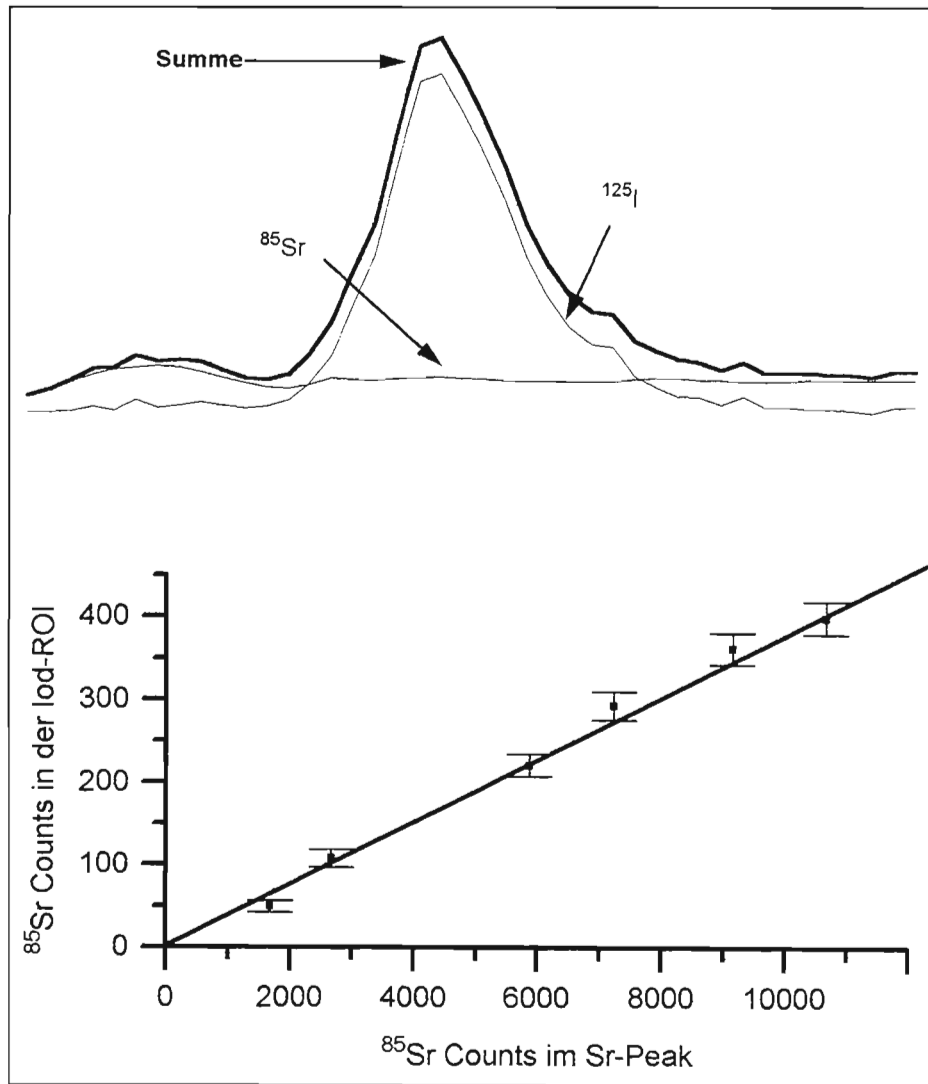


Abb. 5.16: ^{85}Sr -Untergrund im ^{125}I -Peak

1000 Counts im ^{85}Sr -Peak entsprechen 40 Counts in der ^{125}I -ROI.

Problematisch ist die gleichzeitige Messung von ^{134}Cs und ^{85}Sr , da sich die zugehörigen ROIs überlappen:

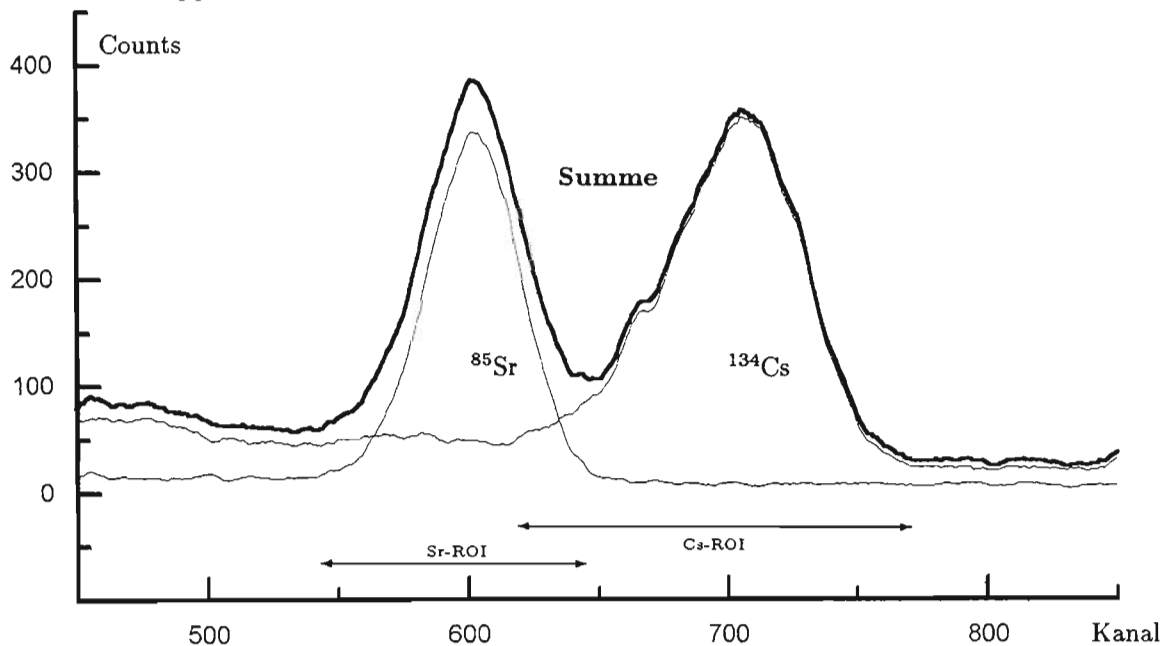


Abb. 5.17: ^{85}Sr und ^{134}Cs

Für das ^{134}Cs kann auf den 2. Peak ausgewichen werden. Da hier in Vergleich zum größten Peak (vgl. Abb. (5.12)) weniger Ereignisse gezählt werden, erhält man bei gleicher Meßzeit eine schlechtere Zählstatistik. Beim ^{85}Sr steht kein weiterer Peak zur Verfügung.

Leider läßt sich der Anteil des ^{134}Cs nicht auf einfache Art aus dem ^{85}Sr rausrechnen. Bei wenigen Counts liegt der ^{134}Cs -Peak vollständig hochenergetisch vor der ^{85}Sr -ROI, wird aber ab einer Nettofläche von ca. 2000 Counts so breit, daß er sich mit der ^{85}Sr -ROI überschneidet. Ein Fit des ^{134}Cs -Anteils in der ^{85}Sr -ROI mit verschiedenen Funktionen brachte keine zufriedenstellenden Ergebnisse, da diese nach jeder kleinen Veränderung an der Meßplatzelektronik den ^{134}Cs -Anteil in der ^{85}Sr -ROI nicht mehr korrekt wiedergeben und neue Funktion gefittet werden müßten. Beim jetzt angewandten Verfahren müssen nach Änderungen an der Elektronik nur die ROIs neu bestimmt werden. Ebenso sollten die oben angeführten Faktoren überprüft und der Untergrund der Umgebungsstrahlung neu gemessen werden.

Um ^{134}Cs und ^{85}Sr trotzdem gleichzeitig messen zu können, hat sich folgende Lösung als am geeignetsten herausgestellt: Statt des ganzen ^{85}Sr -Peaks wird nur die vordere Hälfte aufintegriert. Das Maximum des ^{85}Sr -Peaks liegt stets im gleichen Kanal, welcher vom ^{134}Cs -Peak nicht erreicht wird. Dieses Verfahren ist nur möglich, weil das Verhältnis aus

Counts im ganzen Peak N_g zu Counts im halben Peak N_h unabhängig der Aktivität der Probe und der Meßzeit konstant ist.

Tab. 5.6: *Verhältnis ganzer zu halber ^{85}Sr -Peak*

| ^{85}Sr -Lösung [μl] | N_g (1000 s) | N_h (1000 s) | N_g / N_h |
|--|-----------------|----------------|-----------------|
| 20 | 2341 ± 70 | 1101 ± 48 | $2,13 \pm 0,1$ |
| 50 | 5880 ± 91 | 2782 ± 63 | $2,11 \pm 0,06$ |
| 70 | 7229 ± 98 | 3432 ± 68 | $2,10 \pm 0,05$ |
| 90 | 9149 ± 108 | 4389 ± 74 | $2,08 \pm 0,04$ |
| 100 | 10665 ± 115 | 5049 ± 79 | $2,11 \pm 0,04$ |

Von den errechneten Counts für ^{85}Sr muß neben dem Untergrund auch der Effekt des ^{134}Cs abgezogen werden. Wird auch noch ^{125}I gemessen, so muß hier der Einfluß des ^{134}Cs und des ^{85}Sr beachtet werden.

Fehlerbetrachtung

Die Fehler hängen stark von der Aktivität der gemessenen Proben und der Meßzeit ab. Generell gilt: Wird nur ein Nuklid gemessen oder wird Iod in Kombination mit Strontium oder Caesium gemessen, funktioniert das oben beschriebene Verfahren sehr gut. Nur gleichzeitiges Messen von ^{134}Cs und ^{85}Sr ist problematisch und kann je nach Verhältnis der Nuklide in der Analysenprobe zu inakzeptabel großen Fehlern führen.

Die folgenden Betrachtungen sind für typische Konfigurationen von Batchversuchen durchgeführt. Die Fehler beziehen sich nur auf die Messung und das Auswerteverfahren.

1. Es wird ein Nuklid gemessen.

Unabhängig vom gemessenen Nuklid hängt der Meßfehler nur vom Netto-Integral des zur Auswertung herangezogenen Peaks ab. Der statistische Fehler errechnet sich nach Formel (7.3). Wird lange genug gemessen, kann ein statistischer Fehler unter einem Prozent erreicht werden.

Die einzige Einschränkung liefert der Untergrund der Hintergrundstrahlung, welcher im betrachteten Fall die Nachweisgrenzen festlegt. Diese liegen bei 1000 Sekunden Meßzeit für ^{125}I bei 0,14 cps, für ^{134}Cs bei 0,3 cps und für ^{85}Sr bei 0,26 cps [Din25]

In der Praxis liegt in den Proben stets genug Aktivität vor, so daß keine Einschränkung durch das Niveau der Hintergrundstrahlung auftritt.

2. Es werden ^{125}I und ^{134}Cs (oder ^{85}Sr) zusammen gemessen.

Für ^{134}Cs (bzw. ^{85}Sr) gilt der in 1 angeführte Fall, da das Iod keine Auswirkungen auf den zur Auswertung herangezogenen Peak des Caesiums (Strontiums) hat. Liegt im Verhältnis zum Caesium (Strontium) wenig Iod in der Probe vor, so bestimmt die Höhe des Compton-Untergrundes des ^{134}Cs (^{85}Sr) den Fehler bei der Auswertung des ^{125}I -Peaks. Je länger gemessen wird, desto genauer stimmen theoretischer und tatsächlicher ^{134}Cs -Untergrund (bzw. ^{85}Sr -Untergrund) in der Iod-ROI überein und desto genauer wird das ^{134}Cs (^{85}Sr) aus dem ^{125}I herausgerechnet.

In der Praxis liegt in den Proben viel mehr Iodaktivität als Aktivität des Caesiums (Strontiums) vor, so daß auch hier durch genügend lange Meßzeit ein statistisch bedingter Meßfehler kleiner als einem Prozent erreicht werden kann.

3. Es werden ^{85}Sr und ^{134}Cs zusammen gemessen.

Für das ^{134}Cs gelten die gleichen Überlegungen wie unter 1. Jedoch besitzt der zweite Caesium-Peak nur etwa 60 % der Fläche des ersten Peaks, so daß hier eine längere Meßzeit notwendig ist, um auf eine genügend große Anzahl Nettocounts zu kommen. Beim ^{85}Sr gehen 50 % an Countrate verloren, da die höherenergetische Hälfte des Peaks nicht ausgewertet werden kann. Kann durch lange Meßzeit eine gute Zählstatistik für das ^{85}Sr erreicht werden, so kann über die Fläche im halben Strontium sehr genau auf die Fläche des vollständigen Peaks geschlossen werden. Entscheidend ist die Peakform, damit die festgelegte ROI den Peak genau im Kanal mit der höchsten Countrate teilt und das theoretische Verhältnis von ganzem zu halbem Peak mit dem in der Messung übereinstimmt.

In der Praxis ergeben sich für das ^{134}Cs - bis auf die etwas geringere Countrate - keine Einschränkungen. Für das Strontium entscheidet, wie genau der Peak durch die ROI geteilt wird. Bei sehr guter Einstellung der Meßplatz-Elektronik, exakter Anpassung der Auswertung und ausreichender Meßdauer liegt der Fehler unter 5 %, bei weniger als 2500 Nettocounts im *halben* ^{85}Sr -Peak beginnt die Unsicherheit für die durchgeführten Experimente zu groß zu werden.

Obige Überlegungen wurden durch Versuche mit Blindproben nachgeprüft. Die eingesetzten Mengen an Aktivität können bei Messung einzelner Nuklide (oder Iod und einem weiteren Nuklid) im schlechtesten Fall bis auf zwei Prozent bestimmt werden und die

Unsicherheit des Auswerteverfahrens liegt damit in der Größenordnung des ohnehin vorhandenen Pipettierfehlers (siehe Kap. 7.2). Bei gleichzeitiger Messung von ^{134}Cs und ^{85}Sr gilt diese Marke auch für das Caesium, beim Strontium werden bestenfalls fünf Prozent Genauigkeit erreicht, bei sehr ungünstigen Verhältnissen (wenig ^{85}Sr , kurze Meßzeit) versagt das Verfahren bei einem Fehler über 10 %.

In diesem Fall kann auf Ge(Li)- oder HPGe-Detektoren ausgewichen werden.

Um den notwendigen Probendurchsatz zu ermöglichen, sind im praktischen Einsatz aus Zeitgründen selten Messungen möglich, genug Counts für einen statistischen Fehler unter einem Prozent in allen ausgewerteten Peaks zu erreichen. Die gängigste Vorgehensweise ist, möglichst 1000 Nettocounts zu erreichen, was (außer für den Fall von $^{134}\text{Cs} + ^{85}\text{Sr}$) einen Fehler von ca. 4 % bedeutet. Für jede Meßreihe muß der bestmögliche Kompromiß von möglicher Meßdauer und tolerierbarem Fehler gefunden werden.

Sollte das System wie geplant auf die Messung anderer Nuklide erweitert werden, so kann die Auswertung durch einen Peaksearch und eine Spektrenentfaltung erweitert werden, um auch komplexe NaI-Spektren automatisch auswerten zu können.

Durch die Inbetriebnahme des Probenwechslers und die Entwicklung der oben beschriebenen Software zur automatischen Auswertung der gemessenen Spektren konnte der Probendurchsatz für die laufenden Batchversuche entscheidend erhöht werden. Gegenüber der manuellen Messung und Auswertung ist eine Steigerung um mindestens den Faktor 10 möglich geworden. Die Meßzeit eines Batches kann nunmehr sinnvoll zur Vorbereitung der nächsten Versuchsreihe genutzt werden. Darüber hinaus kann jetzt nachts ohne Aufsicht gemessen werden. Zu Zeiten der vollständigen Auslastung läuft das System völlig problemlos 24 Stunden am Tag ohne Unterbrechnung durch. Durch die sehr flexible Vorgabe von Meßparametern kann bei geringeren Probenmengen die Genauigkeit der einzelnen Meßergebnisse nahezu beliebig erhöht werden.

5.6 Nulleffektüberwachung und Formatkonvertierung

Nulleffektüberwachung

Bisher fand keine kontinuierliche Überwachung der Zählrate der Hintergrundstrahlung statt. Obwohl Detektor und Proben vor der Messung auf Kontamination geprüft werden, besteht z.B. durch Undichtigkeiten der Probenbehälter die Möglichkeit, daß Aktivität in der Detektorabschirmung verbleibt und spätere Messungen beeinflusst. Außerdem ist die Auswertesoftware des Probenwechslers auf den aktuellen Wert des Untergrundniveaus angewiesen.

Um den Untergrund kontinuierlich zu überwachen, wurde das Programm NULLEFF.EXE entwickelt. Dieses führt eine Nulleffekt-Messung durch und überprüft das erhaltene Spektrum auf Kontamination des Detektors.

NULLEFF läuft in der TMCA-Programmumgebung. Über einen Menüpunkt wird NULLEFF für den zu überwachenden Detektor gestartet. Die Meßzeit beträgt eine Stunde. Eine längere Meßdauer wäre wünschenswert, ist aber aufgrund der teilweise vollständigen Auslastung der Detektoren nicht möglich. Eine Stunde Meßzeit stellt einen guten Kompromiss zwischen Detektorauslastung und notwendiger Meßzeit dar.

Um einen Richtwert für das Niveau der Hintergrundstrahlung zu erhalten, wurden die Detektoren gereinigt und die Umgebungsstrahlung für einen Zeitraum von mehreren Tagen gemessen. Der erhaltene Wert dient als Referenz.

Nach dem Ende einer einstündigen Nulleffekt-Messung werden alle Kanäle des Spektrums addiert und die Summe mit der Vorgabe verglichen. Auf dem Detektor mit automatischem Probenwechsler werden zusätzlich die festgelegten ROIs für die Nuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr aufintegriert und mit den aktuellen Werten verglichen, welche von der automatischen Auswertung benutzt werden. Beträgt die Abweichung von gemessenem zu eingetragendem Wert mehr als die maximal zugelassene Abweichung Δ_{max} , so wird eine Warnung ausgegeben. Das gemessene Spektrum wird gespeichert und steht zur späteren Untersuchung zur Verfügung.

Derzeit gültigen Werte für die maximale Abweichung Δ_{max} (Meßzeit 3600 s):

Tab. 5.7: Nulleffektüberwachung: Δ_{max} aller Detektoren

| Detektor | Labor | $\Sigma(Kanäle)$ | $1/\sqrt{N}$ | Δ_{max} |
|----------|-----------|------------------|--------------|----------------|
| NaI(Tl) | Iod | 35.000 | 0,5 % | 1 % |
| Ge(Li) | Iod | 30.000 | 0,6 % | 1 % |
| NaI(Tl) | Strontium | 4.000 | 1,5 % | 3 % |
| Ge(Li) | Strontium | 10.000 | 1,0 % | 2 % |

und für den NaI(Tl)-Detektor im sog. Iod-Labor gilt zusätzlich:

Tab. 5.8: Δ_{max} für NaI(Tl) im Iod-Labor

| ROI | $\Sigma(ROI)$ | $1/\sqrt{N}$ | Δ_{max} |
|-------------------|---------------|--------------|----------------|
| ^{125}I | 1000 | 3,1 % | 5 % |
| ^{134}Cs | 3700 | 1,6 % | 3 % |
| ^{85}Sr | 3100 | 1,8 % | 3 % |

Die Überwachung der Detektoren schafft die Grundlage für kontaminationsfreie Messungen. Wenn auch die Kontamination eines Detektors durch undichte Probenbehälter sehr unwahrscheinlich ist, so schafft dieses kleine und einfache Programm zusätzliche Sicherheit. Im Laufe dieser Arbeit wurde durch NULLEFF zweimal eine Kontamination eines Detektors gemeldet. Im ersten Fall war der Detektor sauber, aber in der Nähe gelagerte Proben verursachten ein erhöhtes Hintergrundniveau und wurden deshalb aus der Umgebung des Meßplatzes entfernt. Im zweiten Fall war der Detektor tatsächlich durch kleinste Probenteilchen kontaminiert, was ohne die Überwachung durch NULLEFF längere Zeit unentdeckt geblieben wäre.

Formatkonvertierung

Das Programm CONVERT.EXE konvertiert die unterschiedlichen Spektrenformate der am Institut genutzten Meßwerterfassungssysteme ohne Informationsverlust ineinander. CONVERT kann folgende Formate erkennen, lesen und schreiben:

Tab. 5.9: Dateiformate

| Bezeichnung | Verwendung | Extension | Format der Daten |
|-------------|---------------------------------|-----------|------------------|
| TMCA | Meßplätze im Isotopentraktlabor | .SPC | binär |
| MAESTRO | Meßplatz im Bestrahlungsbereich | .CHN | binär |
| ACCUSPEC | ehem. Meßplatz im Chemielabor | .DAT | binär |
| ND-66 | Meßplätze in der MHH | .ND6 | text+binär |
| GAMMA | hauseigenes Format | .DAT | binär |
| ASCII | Importformat für Fremdsoftware | .ASC | text |
| HEADER | Importformat für Fremdsoftware | .ASC | text |

Die Formate TMCA, MAESTRO, ACCUSPEC, GAMMA und ND-66 wurden im Rahmen dieser Arbeit entschlüsselt und Funktionen zum Einlesen bzw. Abspeichern der zugehörigen Spektrumdateien geschrieben. Die Struktur von ASCII und HEADER ist so festgelegt, daß diese Formate zum Exportieren der Spektraldateien in Programme wie z.B. Microsoft Excel oder Origin dienen können [Bot96].

Nach dem Start von CONVERT.EXE kann die zu konvertierende Datei eingelesen werden. CONVERT identifiziert den Typ des gewählten Spektrums eindeutig mittels einiger Bytes an festgelegten Positionen der Datei, die für jeden Spektrentyp individuell ausgewählt sind. Nach erfolgreicher Identifizierung werden aus der Datei alle Kanalhalte sowie alle weiteren Informationen eingelesen. CONVERT ist in der Lage, von AM2 Zusatzinformationen über Experiment, Probe, Einwaage, Detektor und Geometrie zu erkennen und zu entschlüsseln.

Bei einer Konvertierung werden die gespeicherten Informationen in das für den neuen Dateityp passende Format umgewandelt, und die neue Datei wird erstellt. CONVERT legt die von AM2 angelegten Zusatzinformationen an passenden Stellen des neuen Formates ab.

Als Alternative zur menügeführten Programmausführung steht die Konvertierung durch

Kommandozeilen-Parameter zur Verfügung. Hierzu wird CONVERT mit den Parametern DATEINAME und ZIELFORMAT aufgerufen. Die Konvertierung erfolgt ohne jegliche Bildschirmausgabe. Dieser Modus kann bei automatisierten Abläufen eingesetzt werden.

Convert ist das Bindeglied zwischen den verschiedenen am ZSR benutzten Spektrenformaten. Es ist jetzt möglich, alle Spektren einer automatisierte Auswertung zuzuführen. Die Grenzen der einzelnen Meßplatzsysteme wurden aufgehoben. Durch die Erweiterung auf für fremde Software importierbare Formate (ASCII, HEADER) können gemessene Spektren in beliebige Programme eingebunden werden.

Kapitel 6

Beispielhafte Anwendung

6.1 ^{129}I -Analyse mittels RNAA

Um den Weg von radioaktivem Iod vom Boden über Pflanzen und Tiere zum Menschen zu erforschen, werden am ZSR mittels RNAA Proben von Böden, Weidepflanzen und Schilddrüsen auf ihren Gehalt an ^{129}I untersucht.

Als Beispiel für die Analyse von ^{129}I in diesen Umweltproben soll die Erforschung der Verlagerung des ^{129}I in Böden der Ukraine dienen. Im April 1986 wurden diese Böden durch den Reaktorunfall von Chernobyl mit radioaktiven Iodisotopen kontaminiert. Das Iod wandert langsam in tiefere Bodenschichten. Durch die Untersuchung von Bodenproben aus verschiedenen Tiefen erhält man Informationen über das Verlagerungsverhalten und den Gesamteintrag an ^{129}I .

Zwei zur Zeit untersuchte Bodenproben stammen aus Nemirowka bzw. Woronewo aus der nördlichen Ukraine. Diese Gebiete zählen zu den mittelkontaminierten Gebieten. Es wurden dort mehrere Bodensäulen von 400 cm² Grundfläche entnommen und in Schichtprofile aufgeteilt.

Nach der Aufbereitung (Lufttrocknung und Sieben) werden diese Bodenproben jetzt mittels RNAA auf den Gehalt an ^{129}I untersucht. Für die Böden Nemirowka 2 und Woronewo 4 sind die oberen sechs von insgesamt zehn Schichten untersucht worden. Da das Verfahren sehr zeit- und arbeitsintensiv ist, ist nur ein Probendurchsatz von ca. 50 Proben pro Jahr möglich. Daher sind die ^{129}I -Konzentrationen der Bodenschichten ab einer Tiefe von 10 cm zum gegenwärtigen Zeitpunkt noch nicht ermittelt worden.

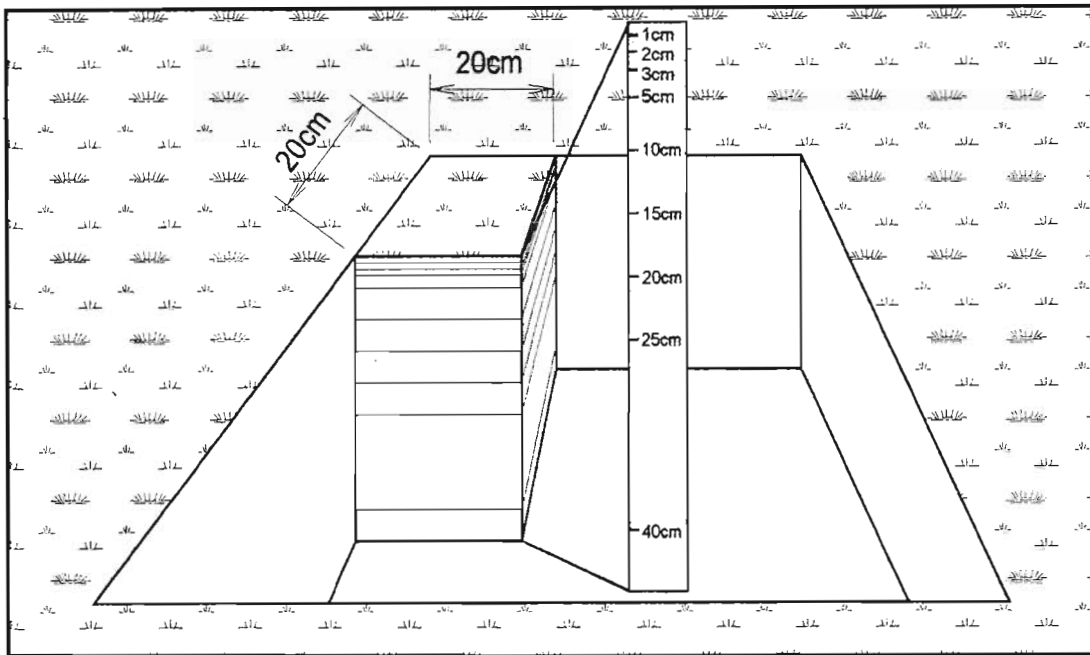


Abb. 6.1: Bodensäule

Tab. 6.1: Konzentration ^{129}I

| Tiefe [cm] | Nemirowka 2 | Woronewo 4 |
|---------------|--|------------|
| | Konzentration ^{129}I [mBq kg ⁻¹ TG] | |
| Humus | 1,7 ± 0,2 | 7,9 ± 0,7 |
| 0-1 | 1,3 ± 0,1 | 7,7 ± 0,8 |
| 1-2 | 2,1 ± 0,2 | 4,8 ± 0,5 |
| 2-3 | 1,9 ± 0,2 | 1,2 ± 0,1 |
| 3-5 | 1,5 ± 0,2 | 1,4 ± 0,1 |
| 5-10 | 1,1 ± 0,1 | 0,4 ± 0,1 |
| 10-40 | | |

Nachdem der Gehalt an ^{129}I in allen Bodenschichten bestimmt worden ist, wird der gesamte Bodeneintrag an ^{129}I durch Integration über die ganze Bodensäule berechnet. Über das Verhältnis von freigesetztem ^{131}I zu ^{129}I kann auf den Eintrag an ^{131}I geschlossen werden. Aus dem Gesamteintrag und der Tiefenverteilung des ^{129}I werden Informationen über die Pflanzenverfügbarkeit des Iods gewonnen. So kann der Weg des radioaktiven Iods zum Menschen berechnet und modelliert werden.

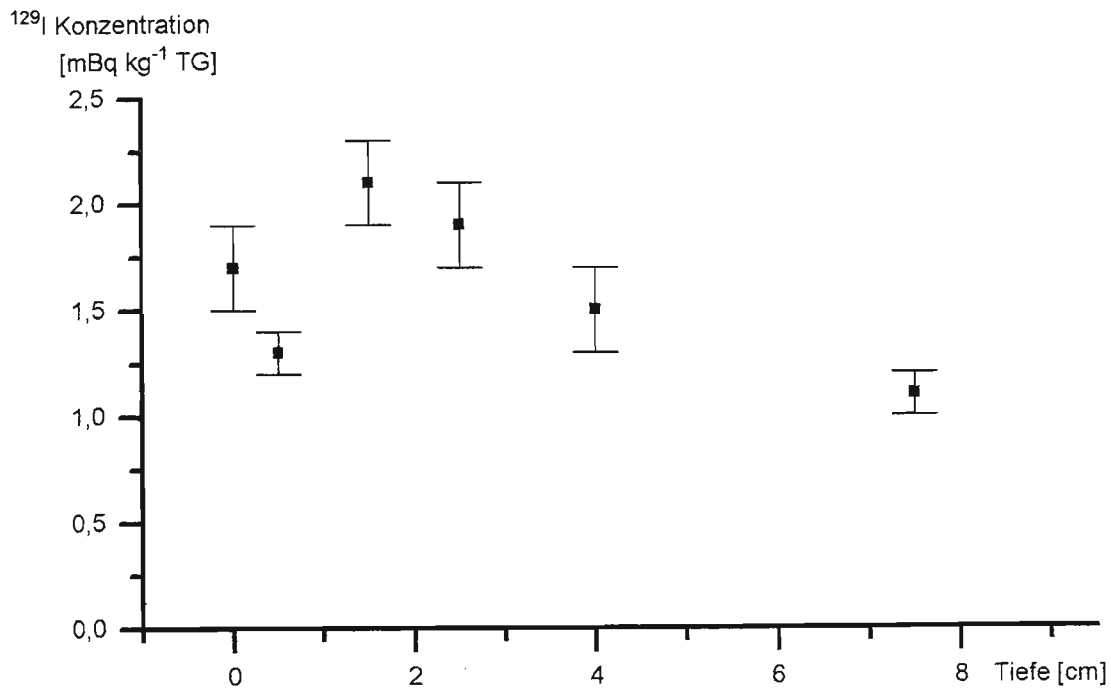


Abb. 6.2: Konzentration ^{129}I in der Bodensäule Nemirovka 2

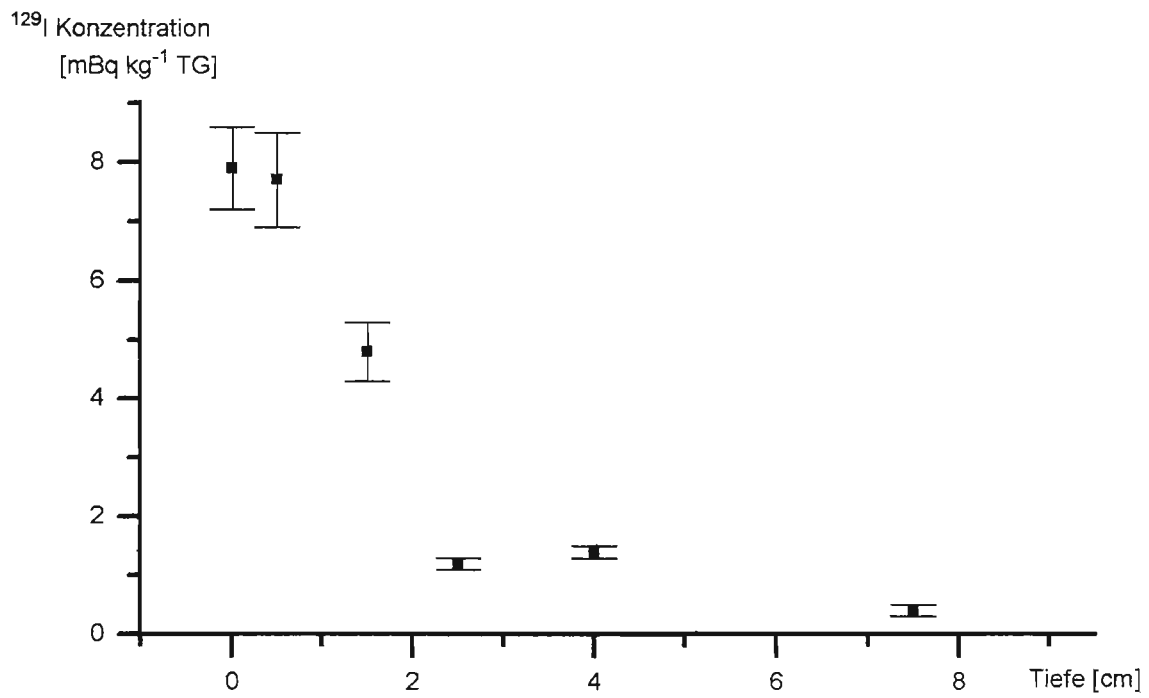


Abb. 6.3: Konzentration ^{129}I in der Bodensäule Woronowo 4

6.2 Sorptionsversuche

Im Rahmen des von der DFG geförderten Projektes „Organomineralische Komplexe“ werden vier verschiedene Gesamtböden sowie einzelne Fraktionen dieser Böden auf ihr Sorptionsverhalten von Radionukliden untersucht. Der für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Sorptionsversuche verwendete Gesamtboden trägt die Bodennummer 176 und die Bezeichnung Querfurt Z. Der Entnahmeort der Bodenproben ist die Magdeburger Börde, nahe Halle. Entnahmezeit war Oktober 1995. Es handelt sich um eine erodierte Schwarzerde aus weichselzeitlichem Löß, speziell um den A_p -Horizont in der Tiefe von 0 - 20 cm.

Die ersten Versuche beschäftigen sich mit der Sorption von Iod an diesem Boden. Versuche zur Caesium- bzw. Strontium-Sorption sowie zum Konkurrenzverhalten bei der Sorption verschiedener Nuklide sind noch nicht abgeschlossen bzw. sind für die Zukunft geplant.

Um das für die Batchversuche günstigste Verhältnis von Boden zu Flüssigkeit zu ermitteln, wurden für die erste Versuchsreihe verschiedene Einwaagemengen (2-6 Gramm) an Boden verwendet. Der Boden wurde zusammen mit 10 ml destilliertem Wasser und 50 μ l trägerarmer ^{125}I -Tracerlösung in 30 ml-Zentrifugenröhrchen (Fa. Nalgene) gefüllt. Da im Boden (im Vergleich zu Kationen) nur wenig Anionen gebunden werden, wurde keine Trägerlösung benötigt. Die Ionenkonzentration in der Tracerlösung erwies sich für die Versuche zur Iodisorption stets als ausreichend. Die Zentrifugenröhrchen wurden in Halterungen befestigt und auf einen Horizontal-Reziproschüttler gestellt. Um den Fortgang der Sorption zu untersuchen, wurden die Proben nach der Sorptionszeit von einigen Stunden bzw. Tagen aus dem Schüttler genommen und 10 Minuten bei 15.000 Umdrehungen pro Minute zentrifugiert. Vom klaren Überstand wurde jeweils ein Aliquot von 100 μ l abgenommen und in eine Petrischale mit zwei Lagen Aktivkohlefilter gegeben. Die Petrischalen wurden verschlossen und die Aktivität des Überstandes gemessen. Der Boden in den Zentrifugenröhrchen wurde aufgeschüttelt und die Röhrchen für den Fortgang der Sorption wieder auf den Schüttler gestellt.

Um zu untersuchen, welchen Einfluß die Mikroorganismen in nichtsterilem Boden auf die Sorption haben, sollte ermittelt werden, welche Vorbehandlung des Bodens und welche Arbeitsweise notwendig ist, um möglichst die rein physikalisch-chemischen Sorptionsprozesse untersuchen zu können. Dazu wurde die zweite Versuchsreihe unter normalen Laborbedingungen, d.h. unsteril, und parallel unter keimarmen Bedingungen unter einem sterilen

Abzug durchgeführt [Gil96]. Das Labormaterial wurde unmittelbar vor dem Benutzen autoklaviert, die Tracerlösung durch Filtration gesäubert.

Um die Versuchsreihen auf ungewollte Nebeneffekte zu überprüfen, wurden alle Proben in vierfacher Ausführung angesetzt. Pro Versuchsansatz wurden zwei zusätzliche Proben ohne Boden verwendet, um die Sorption an der Oberfläche der Probengefäße zu untersuchen.

6.2.1 Auswerteverfahren

Da die Untersuchung des Bodens Querschnitt Z zeitgleich mit der Inbetriebnahme des automatischen Probenwechslers am TMCA-System begann, bot sich die Gelegenheit, die automatische Auswertung zu testen. Dazu wurden die gemessenen Spektren sowohl automatisch als auch von Hand ausgewertet.

Analog zur automatischen Auswertung wird bei der Auswertung von Hand um den interessierenden Peak eine ROI definiert. Alle Kanalinhalt innerhalb der ROI werden aufaddiert und bilden das Bruttosignal. Durch die Kanäle am Rand der ROI wird das abzuziehende Untergrundtrapez festgelegt. Man erhält so die Nettoimpulse. Festlegen der ROI erfolgt ‚nach Augenmaß‘, wobei die Breite des interessierenden Peaks und die Form des Untergrundes berücksichtigt wird, indem eine ROI von etwa 2,5 Halbwertsbreiten um den Peak gelegt wird.

Die erhaltenen Meßergebnisse werden zerfallskorrigiert. Nach Formel 3.10 wird die prozentuale Sorption berechnet. Die Ergebnisse beider Auswerteverfahren sind innerhalb der Fehlergrenzen identisch.

Zur Funktionskontrolle des gesamten Meßplatzes mit Probenwechsler wurde die erste Meßreihe zusätzlich auf dem NaI-Detektor im Strontium-Labor gemessen und sowohl von Hand als auch automatisch ausgewertet. Wieder zeigten sich keine Abweichungen zwischen beiden Arten der Auswertung. Darüber hinaus waren die Ergebnisse beider Meßplätze innerhalb der Fehlergrenzen identisch.

Nach dieser Testreihe war die Funktionsfähigkeit von Hard- und Software des Meßplatzes mit automatischem Probenwechsler bestätigt und alle weiteren Meßreihen wurden auf diesem Detektor gemessen und automatisch ausgewertet.

6.2.2 Ergebnisse

Versuch 1

Boden: **Querfurth Z, feldfeucht, durch Bestrahlung mit ⁶⁰Co sterilisiert.**

Versuchsansatz: 4 Röhrrchen mit je 2 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

4 Röhrrchen mit je 4 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

4 Röhrrchen mit je 6 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

2 Röhrrchen ohne Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

Arbeitsweise: unsteril

Probennahme: nach 1, 2, 4, 7, 15, 22 und 29 Tagen

Tab. 6.2: Sorptionskinetik (sorbiertes Anteil des ¹²⁵I in %):

| | 1. Tag | 2. Tag | 4. Tag | 7. Tag | 15. Tag | 22. Tag | 29. Tag |
|-----|--------|--------|--------|--------|---------|---------|---------|
| 2 g | 65 ± 2 | 66 ± 2 | 68 ± 2 | 69 ± 2 | 75 ± 2 | 76 ± 2 | 79 ± 3 |
| 4 g | 66 ± 2 | 68 ± 2 | 69 ± 2 | 72 ± 2 | 78 ± 2 | 80 ± 3 | 83 ± 3 |
| 6 g | 69 ± 2 | 69 ± 2 | 72 ± 2 | 75 ± 2 | 81 ± 2 | 83 ± 3 | 85 ± 3 |

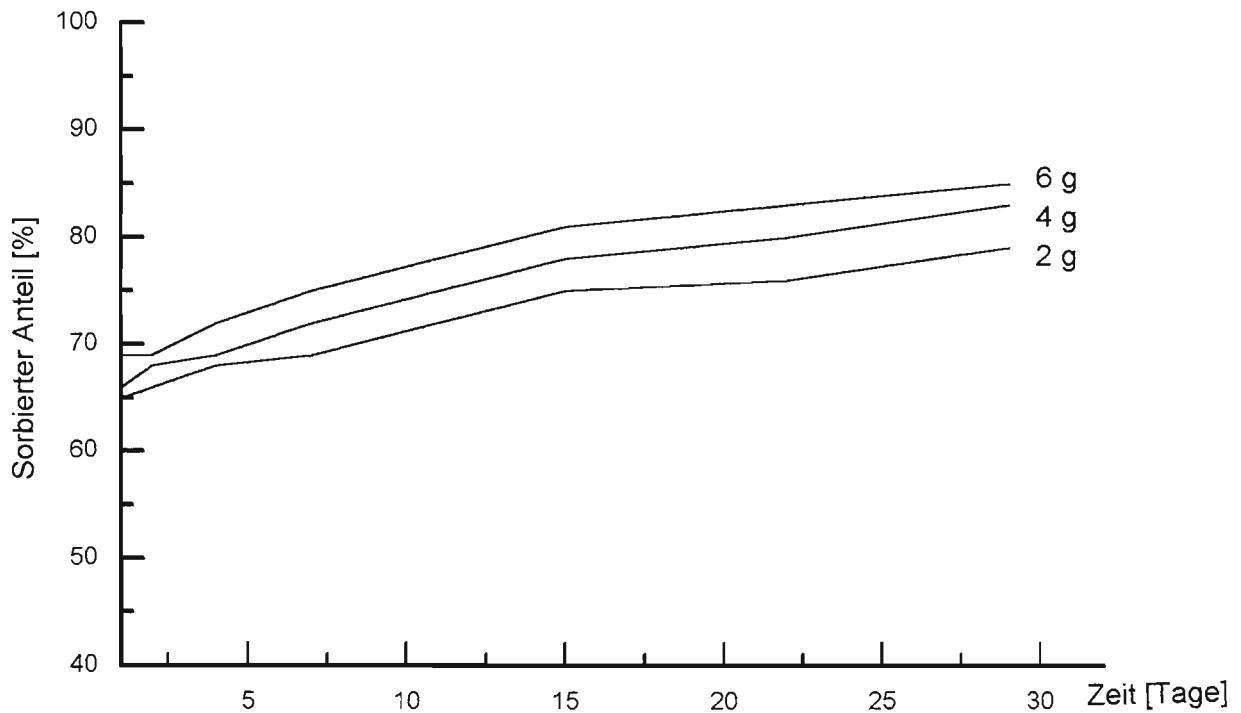


Abb. 6.4: Sorptionsverhalten von Iod in feldfeuchtem bestrahltem Boden

Versuch 2

Boden: Querfurth Z, gefriergetrocknet, nicht sterilisiert.

Versuchsansatz: 4 Röhrchen mit je 2 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 4 Röhrchen mit je 4 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 4 Röhrchen mit je 6 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 2 Röhrchen ohne Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

Arbeitsweise: unsteril

Probennahme: nach 1, 2, 3, 7, 13, 20 und 27 Tagen

Tab. 6.3: Sorptionskinetik (sorbierter Anteil des ¹²⁵I in %):

| | 1. Tag | 2. Tag | 3. Tag | 7. Tag | 13. Tag | 20. Tag | 27. Tag |
|-----|--------|--------|--------|--------|---------|---------|---------|
| 2 g | 75 ± 2 | 81 ± 2 | 84 ± 2 | 86 ± 2 | 88 ± 2 | 90 ± 3 | 94 ± 3 |
| 4 g | 80 ± 2 | 86 ± 2 | 89 ± 2 | 91 ± 2 | 94 ± 3 | 95 ± 3 | 97 ± 3 |
| 6 g | 83 ± 2 | 88 ± 2 | 91 ± 2 | 93 ± 3 | 96 ± 3 | 97 ± 3 | 98 ± 3 |

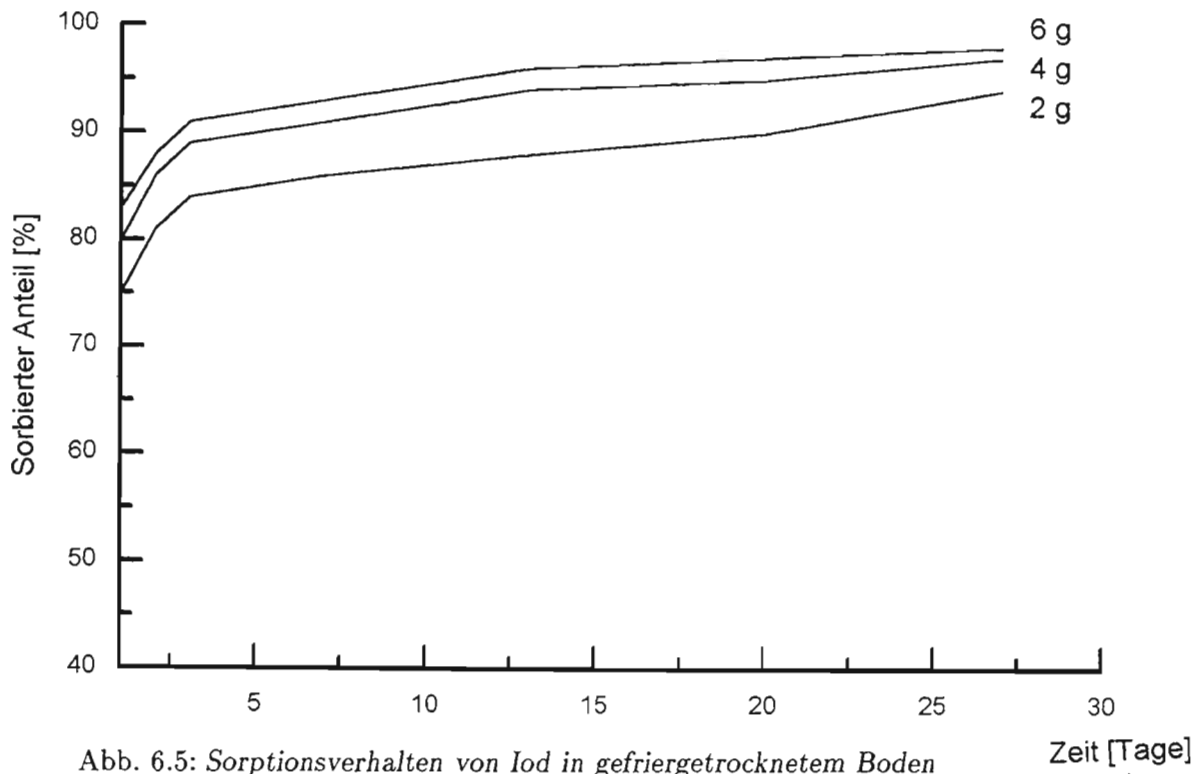


Abb. 6.5: Sorptionsverhalten von Iod in gefriergetrocknetem Boden

Versuch 3

Boden: **Querfurth Z, autoklaviert.**

Versuchsansatz: 4 Röhrrchen mit je 2 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 4 Röhrrchen mit je 4 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 4 Röhrrchen mit je 6 g Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung
 2 Röhrrchen ohne Boden, 10 ml H₂O (dest.), 50 µl Tracerlösung

Arbeitsweise: unsteril

Probennahme: nach 1, 2, 4, 6, 9, 12 und 19 Tagen

Tab. 6.4: Sorptionskinetik (sorbiertes Anteil des ¹²⁵I in %):

| | 1. Tag | 2. Tag | 4. Tag | 6. Tag | 9. Tag | 12. Tag | 19. Tag |
|-----|--------|--------|--------|--------|--------|---------|---------|
| 2 g | 9 ± 1 | 17 ± 1 | 28 ± 1 | 31 ± 1 | 34 ± 1 | 41 ± 1 | 50 ± 2 |
| 4 g | 11 ± 1 | 18 ± 1 | 33 ± 1 | 35 ± 1 | 43 ± 1 | 52 ± 1 | 65 ± 2 |
| 6 g | 15 ± 1 | 21 ± 1 | 37 ± 1 | 43 ± 1 | 55 ± 1 | 63 ± 2 | 70 ± 2 |

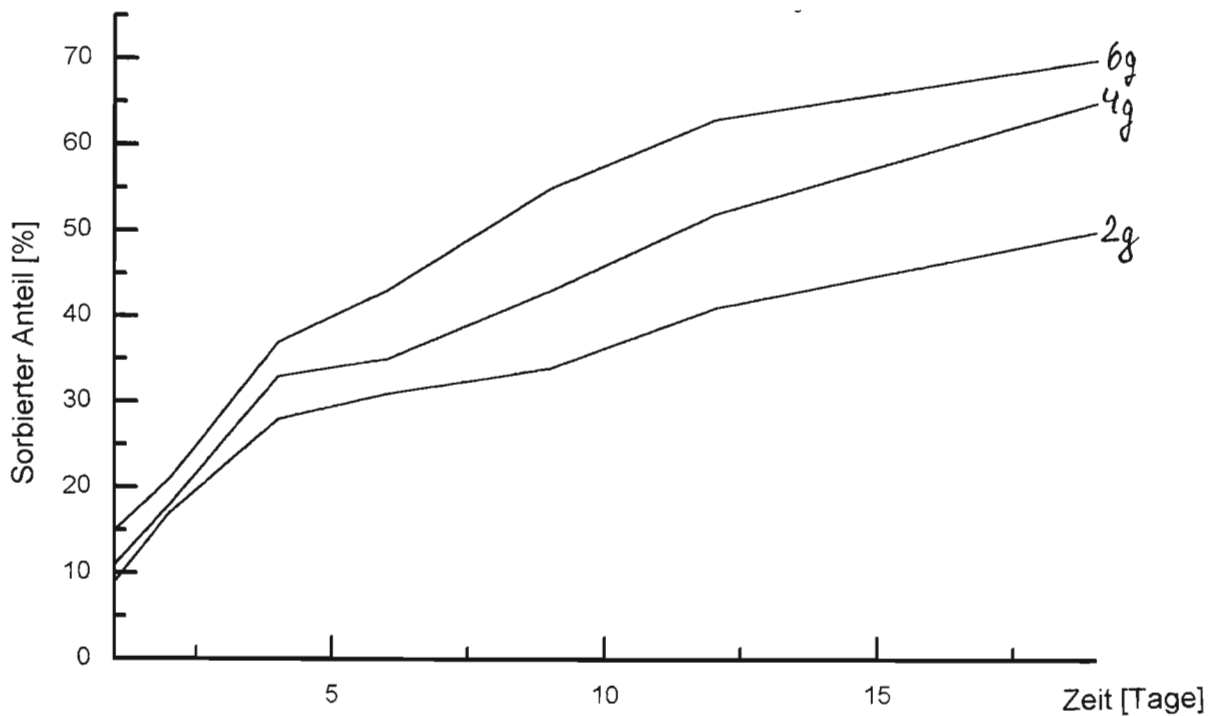


Abb. 6.6: Sorptionsverhalten von Iod in autoklaviertem Boden

Kapitel 7

Diskussion der Ergebnisse

7.1 Sorptionsverhalten

Wie in [Mei87] beschrieben, zeigte sich auch bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Sorptionsversuchen von ^{125}I am Gesamtboden Querfurt Z eine Abhängigkeit der Sorption vom Verhältnis der Einwaage an Boden zur Menge der zugegebenen Sorptionslösung. Je mehr Boden zur Verfügung stand, desto geringer war die spezifische Sorption (Sorption pro g Boden). Dieses war unabhängig von der Art der Bodenvorbehandlung. Für alle weiterführenden Versuchsreihen wurde ein Verhältnis von 5 g Boden auf 10 ml Sorptionslösung gewählt. Für die Batchmethode war mit 6 g Boden auf 10 ml Lösung das mögliche Maximum bereits überschritten, weil sich der Boden hierbei nicht mehr vollständig auflösen konnte.

Die Kontrollproben ohne Boden zeigten, daß auch Sorption an der Wand der Zentrifugenröhrchen stattfindet. Dieser Prozess ist bereits nach kurzer Zeit abgeschlossen. Bereits vom ersten Tag an blieb bei den Kontrollproben die Konzentration an Iod konstant. Bei allen Versuchsreihen lag der Anteil des an der Gefäßwand adsorbierten Iods 20-30 % der zugegebenen Menge. Zu den Berechnungen zur Sorption des Iods am Boden ist dieser Anteil abgezogen, da er für den Boden nicht zur Verfügung steht.

Bei allen Versuchsreihen konnte trotz der Schütteldauer von bis zu einem Monat keine Gleichgewichtseinstellung erreicht werden. Je länger Boden und Lösung in Kontakt standen, desto mehr Iod wurde an den Boden gebunden. Desweiteren verlief die Sorption in

zwei Phasen. Die erste Phase dauerte maximal zwei Tage. Dabei wurde schnell ein großer Teil des Iods an den Boden gebunden. In der zweiten Phase verlief die Sorption wesentlich langsamer. Diese Kinetik ist auch in [Bor91] und [Pät96] gefunden worden.

Dieses Verhalten läßt auf das Vorhandensein von zwei verschiedenen Sorptionmechanismen schließen. Da kein Gleichgewicht erreicht werden konnte, scheint ein Einfluß der im Boden enthaltenen Mikroorganismen auf die Sorption von Iod vorzuliegen. Der Stoffwechsel dieser Mikroorganismen sorgt dafür, daß das Iod an den Boden gebunden wird. Diese Annahme wird durch das Sorptionsverhalten der unterschiedlich vorbehandelten Bodenproben bestärkt.

Gefriergetrockneter, aber nicht sterilisierter Boden sorbiert am stärksten. Trotz der Lagerzeit von über einem Jahr haben ein Großteil der Mikroorganismen überlebt. Die Zugabe von Wasser hat ihnen ermöglicht, sich zu vermehren und durch ihren Stoffwechsel das Iod an den Boden zu binden.

Sterilisierter feldfeuchter Boden sorbiert wesentlich schwächer. Die Bestrahlung mit ^{60}Co hat einen Großteil des Lebens im Boden zerstört. Einige Mikroorganismen waren dennoch in der Bodenprobe. Diese haben die Bestrahlung entweder unbeschadet überstanden, oder sie sind während der Lagerung in den Boden gelangt. Die Arbeitsweise (keimarm oder nicht keimarm) spielte bei der Sorption keine wesentliche Rolle.

Autoklavierter Boden zeigt zu Beginn eine sehr geringe Sorption. Durch das Erhitzen unter Wasserdampf und Überdruck sind alle Bodenorganismen getötet worden, so daß zumindest in der Anfangsphase eine rein physikalisch-chemische Sorption erfolgte. Im Laufe der Versuchsdurchführung erhöhte sich die Sorption beständig, was darauf hindeutet, daß sich erneut Mikroorganismen im Boden ansiedelten. Da dieses Verhalten sowohl unter normalen Laborbedingungen als auch unter keimarmen Bedingungen auftrat [Gil96], konnte trotz des großen Aufwands für die Experimentdurchführung unter keimarmen Bedingungen das Eindringen von Mikroorganismen in die Proben nicht verhindert werden.

Generell zeigte sich nicht der erwartete Unterschied zwischen beiden Arbeitsweisen. Die Vorbehandlung des Bodens hat entscheidenden Einfluß auf die Biomasse des Bodens. Bei der Iod-Sorption spielen die biologischen Sorptionsprozesse gegenüber den rein chemisch-physikalischen die wichtigere Rolle.

7.2 Fehlerbetrachtung

Bei der Bestimmung des Verteilungsverhältnisses R_D bzw. der prozentualen Sorption S_{proz} gehen experimentelle Größen ein, deren Bestimmung mit experimentellen Unsicherheiten behaftet ist. Die Ausgangsaktivität des Ansatzes A_0 und die der Lösung A_l werden durch die Gammaskopimetrie ermittelt. Deshalb sind sie mit statistischen Fehlern behaftet. Die Größe des absoluten Fehlers $(\Delta N)_{abs}$ einer solchen Messung richtet sich nach der Anzahl der gemessenen Impulse N und ist bestimmt durch:

$$(\Delta N)_{abs} = \sqrt{N} \quad (7.1)$$

Für den relativen Fehler $(\Delta N)_{rel}$ gilt:

$$(\Delta N)_{rel} = \frac{1}{\sqrt{N}} \quad (7.2)$$

Da sowohl Bruttoimpulse N_{brutto} als auch Untergrund N_{back} mit diesem Fehler behaftet sind, ergeben sich die Nettoimpulse N_{netto} zu

$$N_{netto} = \sqrt{N_{brutto} - 2 \cdot N_{back}} \quad (7.3)$$

In den Versuchsreihen wurden immer mehrere identische Ansätze parallel gemessen. Nach 7.4 wird dann der Mittelwert der Meßgrößen bestimmt.

$$\bar{N} = \frac{1}{N} \sum_i N_i \quad (7.4)$$

Der gesamte Fehler der Zählrate N wird durch die Standardabweichung der Einzelmessungen N_i abgeschätzt durch

$$\Delta N = \left[\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (N_i - \bar{N})^2 \right]^{1/2} \quad (7.5)$$

Dazu kommen die Ungenauigkeiten bei der Zugabe von Boden und Lösung. Ist der Boden fein gesiebt und wird eine Analysenwaage verwendet, so liegt der Fehler für die Bodeneinwaage unter 0.1 g. Gleiches gilt für die zugegebene Menge an destilliertem Wasser. Auch der Pipettierfehler muß berücksichtigt werden. Beim Abpipettieren erreicht ein geübter und vorsichtiger Laborarbeiter einen Fehler von unter 1 μ l. Ein Test ergab, daß mein persönlicher Pipettierfehler bei ca. 2 μ l liegt.

Diese zufällig auftretenden, miteinander verketteten Fehler werden bei der Fehlerfortpflanzungsrechnung nach Gauß aus partiellen Ableitungen und absoluten Fehlern der Einzelgrößen berechnet:

$$\Delta f(x, y, \dots) = \left[\left(\frac{\partial f}{\partial x} \cdot \Delta x \right)^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial y} \cdot \Delta y \right)^2 + \dots \right]^{1/2} \quad (7.6)$$

Übertragbarkeit

Neben den experimentell bedingten Unsicherheiten gibt es bei der Übertragung der durch die Batch-Methode gewonnenen Verteilungsverhältnisse R_D auf die Sorption in natürlichen Systemen weitere Einschränkungen.

Da Diffusions- und Strömungseffekte bei dieser Methode unterdrückt werden, sind die so bestimmten Verteilungsverhältnisse zu hoch. Sie sind außerdem abhängig vom Verhältnis Volumen zu Masse. Je größer das V/m Verhältnis, desto größere Oberflächen stehen dem Ion zur Verfügung. Damit steigt der R_D -Wert für größere V/m-Verhältnisse [Mei87].

Die Bestimmung des sorbierten Ionenanteils aus der Differenz der Aktivitäten führt zu sehr großen Fehlern bei der Berechnung sehr großer und sehr kleiner R_D -Werte. Nur bei mittleren R_D -Werten bleibt der durch Fehlerfortpflanzungsrechnung bestimmte Fehler relativ gering.

Vergleichsversuche mit Rotationsschüttlern haben gezeigt, daß die Schüttelmethode Einfluß auf das Sorptionsverhalten hat [Pät96]. Durch die Reibung kann die Partikelgröße der Minerale verkleinert werden, wodurch neue Bindungsstellen erzeugt werden können. Auch ohne Schütteln findet Sorption am Boden statt, dieser Vorgang dauert dann aber viel länger.

Als Alternative bieten sich Durchlaufsäulenversuche an. In Säulen wird direkt die Migration der Radionuklide durch Bestimmung der Ionenkonzentration unterschiedlicher Bodenhorizonte verfolgt. Dabei überlagern sich Diffusions-, Strömungs- und Sorptionsprozesse. Allerdings sind Säulenexperimente nur unter erheblichem Zeitaufwand durchzuführen. Außerdem müssen sehr breite Säulen verwendet werden, andernfalls verfälschen Störeffekte an der Säulenwand die Ergebnisse [Pät94].

Kapitel 8

Zusammenfassung

Im Zuge der Modernisierung der Gammaskpektrometriesysteme wurden die festverdrahteten Vielkanalanalysator-Systeme durch das aktuelle PC-gesteuerte System ersetzt. Mit den neuen TMCA-System und neuer Elektronik wurden drei Meßplätze aufgebaut. Die alte Elektronik wurde ersetzt, alle Meßplätze sind auf die Anforderungen des Probenaufkommens der laufenden Experimente abgestimmt, kalibriert und getestet worden.

Der automatische Probenwechsler im sog. Iod-Labor wurde wieder in Betrieb genommen und in das TMCA-System integriert. Proben aus Batchversuchen mit beliebigen Kombinationen der Nuklide ^{125}I , ^{134}Cs und ^{85}Sr können jetzt gemessen und vollautomatisch ausgewertet werden. Der möglichen Probendurchsatz an diesem Detektor wurde entscheidend gesteigert.

Die für alle am ZSR eingesetzten Systeme identische Meßplatzoberfläche ermöglicht jetzt eine einfache Handhabung der Detektorsteuerung. Alle Messungen sind jetzt nicht nur nachvollziehbar geworden, sondern auch gegen versehentlichen Datenverlust geschützt, was besonders für die RNAA von großer Bedeutung ist. Das Programm zur Formatkonvertierung ermöglicht es, Spektren verschiedener Systeme direkt zu vergleichen und auf identische Art auszuwerten oder weiterzuverarbeiten. Ebenso ist Kompatibilität zu den vorhandenen Einrichtungen am Standort ‚Am Kleinen Felde‘ erreicht worden.

Das integrierte Gammaskpektrometriesystem hat seine Einsatzfähigkeit in den Untersuchungen zum Migrationsverhalten des ^{129}I in den Böden der Ukraine sowie in den Messungen zur Sorption von Radionukliden im Boden unter Beweis gestellt.

Anhang A

Abkürzungsverzeichnis

| | | | |
|------------|--|---------------|---|
| RNAA | Radiochemische Neutronen-Aktivierungsanalyse | n^+ | n-hochdotiertes Material |
| | | p^+ | p-hochdotiertes Material |
| $T_{1/2}$ | Halbwertszeit | ε | Efficiency (Ansprechvermögen) |
| a | Jahre | | |
| d | Tage | FWHM | Halbwertsbreite |
| h | Stunden | FWTM | Zehntelwertsbreite |
| Bq | Bequerel, 1 Bq = 1 Zerfall pro Sekunde | FHFM | Fünftelwertsbreite |
| E_e | Energie eines angeregten Elektrons | ADC | Analog-Digital-Converter |
| E_γ | Energie eines γ -Quants | MCB | Multi-Channel-Buffer |
| E_{Bind} | Bindungsenergie eines Elektrons | AM2 | Programm Automess-II |
| Z | Kernladungszahl | ROI | Region of Interest, interessanter Bereich von Kanälen im Spektrum |
| A | Massenzahl | HPGe | High-Purity Germanium Detektor |
| η | Entkommwahrscheinlichkeit | Ge(Li) | Litium-gedrifteter Germanium Detektor |
| E_{dep} | Energie des Double-Escape-Peaks | NaI / NaI(Tl) | Thallium-dotierter Natriumiodid-Szintillationsdetektor |
| E_{sep} | Energie des Singel-Escape-Peaks | | |
| E_{fep} | Energie des Full-Energy-Peaks | TG | Trockengewicht |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|------|---|----|
| 3.1 | Boden zwischen Lithosphäre, Hydrosphäre und Atmosphäre | 8 |
| 3.2 | Strukturmodelle | 10 |
| 4.1 | Aktivitätsverlauf bestrahlter Proben | 18 |
| 4.2 | Abtrennung und Anreicherung von Iod | 21 |
| 5.1 | ^{22}Na -Spektrum | 25 |
| 5.2 | Wechselwirkungen | 25 |
| 5.3 | Gammaskopie-Meßplatz | 26 |
| 5.4 | Szintillationsdetektor | 29 |
| 5.5 | Bildung von Elektron-Loch-Paaren | 31 |
| 5.6 | Kristall eines Halbleiterdetektors | 32 |
| 5.7 | Ausführungsformen von Halbleiterdetektoren | 33 |
| 5.8 | Blockbild TMCA-Meßsystem | 37 |
| 5.9 | Blockbild MAESTRO-Meßsystem | 38 |
| 5.10 | NaI-Detektor mit automatischem Probenwechsler | 47 |
| 5.11 | ^{125}I -Spektrum | 49 |
| 5.12 | ^{134}Cs -Spektrum | 50 |
| 5.13 | ^{85}Sr -Spektrum | 51 |
| 5.14 | Untergrundabzug durch Trapez | 52 |
| 5.15 | fester Untergrundabzug | 52 |
| 5.16 | ^{134}Cs -Untergrund im ^{125}I -Peak | 53 |
| 5.17 | ^{85}Sr -Untergrund im ^{125}I -Peak | 53 |

| | | |
|------|--|----|
| 4.18 | ^{134}Cs und ^{85}Sr | 54 |
| 6.1 | Bodensäule | 62 |
| 6.2 | Konzentration von ^{129}I in der Bodensäule Nemirowka 2 | 63 |
| 6.3 | Konzentration von ^{129}I in der Bodensäule Woronewo 4 | 63 |
| 6.4 | Sorption in feldfeuchtem, bestrahlten Boden | 68 |
| 6.5 | Sorption in gefriergetrocknetem Boden | 69 |
| 6.6 | Sorption in autoklaviertem Boden | 70 |

Tabellenverzeichnis

| | | |
|-----|--|----|
| 3.1 | Kornfraktionen im Boden | 9 |
| 4.1 | Neutronenaktivierung von Kupfer | 17 |
| 4.2 | Kern- und Reaktionsdaten der Iod-Isotope | 19 |
| 5.1 | Indirekt ionisierende Strahlung | 23 |
| 5.2 | Freisetzungsenergien | 30 |
| 5.3 | γ -Linien des ^{125}I | 49 |
| 5.4 | γ -Linien des ^{134}Cs | 50 |
| 5.5 | γ -Linien des ^{85}Sr | 50 |
| 5.6 | Verhältnis ganzer zu halber ^{85}Sr -Peak | 56 |
| 5.7 | Nulleffektüberwachung: Δ_{max} aller Detektoren | 60 |
| 5.8 | Δ_{max} für NaI(Tl) im Iod-Labor | 60 |
| 5.9 | Dateiformate | 61 |
| 6.1 | Konzentration von ^{129}I in zwei Böden | 64 |
| 6.2 | Sorption in feldfeuchtem, bestrahltem Boden | 68 |
| 6.3 | Sorption in gefriergetrocknetem Boden | 69 |
| 6.4 | Sorption in autoklaviertem Boden | 70 |

Literaturverzeichnis

- [And78] T.J. Anderson, *Methodology for determination of environmental ^{129}I and ^{99}Tc* , Conf. of the Am. Soc. for testing and materials on Effluent monitoring in environm. rad. surveillance, Johnson, Vermont, 1978
- [Ans86] ANSI/IEEE, *IEEE Standard 325-1986: Standard test procedures for germanium gamma-ray detectors*, The Institute of Electrical and Electronic Engineers, 1986
- [Bos92] Dr. Oliver Boslau. *Halbleiterdetektoren für die Röntgen- und Gammaskopie*, Silena Detektor Systeme GmbH, Stuttgart, 1992.
- [Bor91] J. Bors, H. Erten und R. Martens, *Sorption Studies of Radioiodine on Soils with Special References to Soil Microbiol Biomass*, *Radiochemica Acta* 52/53, 317-325 (1991)
- [Bot96] W. Botsch, *Programmbeschreibungen: Automess II, Wechslersteuerung, Nulleffekt und Convert*, Universität Hannover, 1996
- [Brö85] B. Bröcker, *dtv-Atlas zur Atomphysik*, Deutscher Taschenbuch Verlag München, 1985
- [Bun96] C. Bunnenberg, *Endlagerung radioaktiver Abfälle und ihre radioökologischen Folgen*, Vortragsscript, Universität Hannover, Juli 1996
- [Deb80] K. Debertin, *Bericht Ra-19, Meßanleitung für die Bestimmung von Gammastrahlen-Emissionsraten mit Germanium-Detektoren*, Radioaktivität, Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig, 1980
- [Deb92] K. Debertin, *Meßanleitung Umweltradioaktivität*, Gustav Fischer Verlag, Stuttgart 1992

- [Din25] DIN 25 482, Teil I, *Nachweisgrenze und Erkennungsgrenze bei Kernstrahlenmessungen*, Normenausschuß Kerntechnik im Deutschen Institut für Normung
- [Fen65] E. Fenyves, O. Haiman, *Die physikalischen Grundlagen der Kernstrahlenmessungen*, Verlag der Ungarischen Akademien der Wissenschaften, Budapest 1965
- [Fug73] R. Fuge, *Iodine*, Springer Verlag, Heidelberg 1973
- [Ger89] C. Gerthsen, H.O. Kneser und H. Vogel, *Physik*, Springer-Verlag, 16. Aufl., 1989
- [Gil96] M. Gilles, Persönliche Mitteilung, ZSR, 1996
- [Glo95] M. Gloris, *Programme - geschrieben oder geändert von Martin Gloris*, Universität Hannover, 1995
- [Hai85a] A. Haisch, P. Capriel und S. Forster, *Strontiumverfügbarkeit für Pflanzen auf drei verschiedenen Böden – Transferfaktoren Boden - Pflanze*, Landwirtschaftliche Forschung 38, 229
- [Hai85b] A. Haisch, P. Capriel und S. Forster, *Caesiumverfügbarkeit für Pflanzen auf drei verschiedenen Böden – Transferfaktoren Boden - Pflanze*, Landwirtschaftliche Forschung 38, 237
- [Han90] J. Handl, A. Pfau und F.W. Huth, *Measurements of ^{129}I in human and bovine thyroids in europe - transfer of ^{129}I into the food chain*, Health Phys. 58 (1990), 609
- [Han95] J. Handl und L. Van Middlesworth, *Two methods to estimate ^{131}I radiation doses to thyroid glands after a nuclear accident*, Int. Conf. on Health Consequences of the Chernobyl Accident, WHO, Geneva, Switzerland, 1995
- [Iae94] IAEA Report 1994, *Thyroid cancer in children exposed to the radioactive fallout from Chernobyl*, Annex III, D65, Vienna 1994
- [Jas93] K. Jasmund und G. Lagaly, *Tonminerale und Tone*, Steinkopff Verlag, Darmstadt 1993
- [Kuh97] J. Kuhnenn, *Modernisierung eines integrierten Gammaskopiersystems und Anwendung auf Messung von Umweltproben aus der Ukraine*, Diplomarbeit, Universität Hannover, 1997

- [Lie91] K.H. Lieser, *Einführung in die Kernchemie*, VCH, Weinheim, 1991
- [Lit87] N. Litz und B. Tietz, *Das Verhalten von natürlichen und künstlichen Radionukliden im Boden als Teil von Ökosystemen*, Landschaftsentwicklung und Umweltforschung, Fachbereich Landschaftsentwicklung der TU Berlin, Nr. 46, 1987
- [Mei87] E. Meier, E. Zimmerhackl, G. Zettler, P. Menge und W. Hecker, *Influence of Liquid/Solid Ratios in Radionuclide Migration Studies*, J. Radioanal. Nucl. Chem. 109, 1987
- [Pät94] G. Pätzold, D. Jakob, R. Sache, J. Bors, J. Handl und C. Bunnenberg, *Einfluß von physikalischen, physiochemischen und biologischen Prozessen auf Migration und Pflanzenverfügbarkeit des ^{129}I in drei landwirtschaftlich relevanten Bodentypen* Abschlußbericht, Auftragsnummer StSch. 4018, ZRS, 1994
- [Pät96] G. Pätzold, Persönliche Mitteilung, ZSR, 1996
- [Pfr81] Dr. Gerd Pfrepper, Dr. Wolf Görner, Prof. Dr. Siegfried Niese, *Spurenelementbestimmung durch Neutronenaktivierung*, Akademische Verlagsgesellschaft Leipzig, 1981
- [SSc92] P. Schachtschabel, H.-P. Blume, G.Brümmer, K.-H. Hartge und U. Schwertmann, *Lehrbuch der Bodenkunde*, Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 1992
- [Sky90] B. Schadomsky und K. Hemme, *Quick C 2.0 Toolbox*, Markt & Technik Verlag, Haar bei München, 1990
- [Sdt95] A. Schmidt, *Vergleich von Methoden zur Bestimmung von stabilem und radioaktivem Iod in Umweltproben*, Diplomarbeit, Universität Hannover, 1995
- [See81] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel und H. Klewe-Nebenius, *Nuklidkarte*, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1981
- [Stu62] M.H. Studier, C. Postmus, J. Mech, R.R. Walters und E.N. Sloth, *The use of I-129 as an isotopic tracer and its determination along with normal I-127 by neutron activation - the isolation of iodine from a variety of materials*, J. Inorg. Nucl. Chem. 24, 1962

- [Wil96] B. Wilgmann, *Migration von Radionukliden im Boden - Sorption an organophilen Tonmineralien*, Examensarbeit, Universität Hannover, 1996
- [Zie90] W. Ziechmann und U. Müller, *Bodenchemie*, BI-Wissenschaftsverlag, Mannheim, 1990

Anhang B

Daten verwendeter Detektoren

Detektor im Iod-Labor

Der Halbleiterdetektor im Iod-Labor wurde 1981 von Fa. PGT (Princeton Gamma Tech) geliefert. Es ist ein zylindrischer Ge(Li)-Koaxial-Detektor mit folgenden Spezifikationen:

- Kristall:
 - Länge: 52 mm
 - Durchmesser: 52 mm
 - Volumen: 133 cm³
 - Abstand zum Eintrittsfenster: 5 mm
- Betriebsspannung: + 5000 V
- für die 1,33 MeV-Linie von ⁶⁰Co gilt:
 - relative Efficiency: 19,1%
 - Peak-zu-Compton-Verhältnis: 44,8 : 1
 - Auflösung FWHM: 1,79 keV bei 1,33 MeV
 - Auflösung FWTM: 3,35 keV bei 1,33 MeV
- und für 122 keV:
 - Auflösung FWHM: 849 eV

Der Detektor besitzt einen Probenhalter zur Realisierung variabler Abstände zwischen Detektorkappe und Probe. Zur Zeit werden die zu messenden Proben in einer Petrischale fixiert und ohne Halter auf die Detektorkappe gelegt. Der aufgelöste Energiebereich erstreckt sich von ca. 40 keV bis 1.8 MeV. Auf diesem Detektor werden Iodisotope aus RNAA sowie ^{85}Sr gemessen.

Detektoren im Bestrahlungsbereich

An diesem Meßplatz befinden sich zur Zeit drei Detektoren. Seit Ende 1994 ist ein koaxialer P-Typ High Purity Germanium Detektor von Firma Ortec in Betrieb. Spezifikationen:

- Kristall:
 - Länge: 53,5 mm
 - Durchmesser: 59,9 mm
 - Volumen: 151 cm³
 - Abstand zum Eintrittsfenster: 4 mm
 - Inaktive Abdeckschicht: 0,3 μm Germanium,
Eintrittsfenster: **0,5 mm Beryllium**
- Betriebsspannung: - 2500 V
- für ^{60}Co gelten bei 1000 cps:
 - relative Efficiency: 33,1%
 - Peak-zu-Compton-Verhältnis: 58,2 : 1
 - Auflösung FWHM: 1,84 keV bei 1,33 MeV
 - Peakform (FWTM/FWHM): 3,91 keV bei 1,33 MeV
- und für ^{55}Fe :
 - Auflösung FWHM: 792 eV bei 5,9 keV

Das empfindliche Beryllium-Eintrittsfenster des Detektors kann durch einen Plastikschutz abgedeckt werden. Mehrere aufeinandersteckbare Distanzstücke ermöglichen variable Abstände zwischen Probe und Kristall. Es gibt Probenhalter für Petri-Schalen, Marinelli-Becher sowie einige Spezialanfertigungen, z.B. für eine Armbanduhr.

Aufgrund seines dünnen Eintrittsfensters und der damit verbundenen Möglichkeit, sehr niederenergetische Gammastrahlung (inklusive Röntgenstrahlung) zu messen, wird dieser Detektor zur Messung von I-125 eingesetzt. Weiterhin werden alle Proben aus der Abluftüberwachung des Isotopenlabors auf diesem Detektor gemessen und durch spezielle Auswertprogramme auf Einhaltung der Grenzwerte überprüft.

Aus dem Chemielabor sind Ende 1996 zwei weitere Detektoren in den Bestrahlungsblock verlegt worden. Diese kommen von von Firma PGT bzw. Firma Ortec. Der von PGT gelieferte Detektor wurde Ende 1989 in Betrieb genommen. Es handelt sich um einen intrinsischen P-Typ Koaxialdetektor. Spezifikationen:

- Kristall:
 - Länge: 74 mm
 - Durchmesser: 65 mm
 - Volumen: 236 cm³
 - Abstand zum Eintrittsfenster: 5 mm
 - Inaktive Abdeckschicht: 0,9 mm
- Betriebsspannung: + 4000 V
- für ⁶⁰Co:
 - Relative Efficiency: 53,9%
 - Peak-zu-Compton-Verhältnis: 63,6 : 1
 - Auflösung FWHM: 2,10 keV bei 1,33 MeV
 - Auflösung FMTM: 3,91 keV bei 1,33 MeV
- für ⁵⁷Co:
 - Auflösung FWHM: 980 eV bei 122 keV

Der von Ortec gelieferte Detektor wurde 1990 in Betrieb genommen. Es handelt sich um einen P-Typ High Purity Germanium Koaxialdetektor. Seine Spezifikationen lauten:

- Kristall:
 - Länge: 82 mm
 - Durchmesser: 64,5 mm
 - Volumen: 261 cm³
 - Abstand zum Eintrittsfenster: 4 mm
 - Inaktive Abdeckschicht: 0,7 mm Aluminium und 0,7 mm inaktives Germanium
- Betriebsspannung: + 2000 V
- für ⁶⁰Co:
 - Relative Efficiency: 58,8%
 - Peak-zu-Compton-Verhältnis: 76,1 : 1
 - Auflösung FWHM: 1,95 keV bei 1,33 MeV
 - Peakform (FMTM/FWHM): 1,89 keV bei 1,33 MeV
 - Peakform (FMFM/FWHM): 2,60 keV bei 1,33 MeV
- für ⁵⁷Co:
 - Auflösung FWHM: 850 eV bei 122 keV

Beide Detektoren werden zur Messung von Radionukliden in Bodenproben aus der Ukraine eingesetzt, derzeit ¹³⁴Cs und ¹³⁷Cs. Die aufbereiteten Bodenproben werden in Plastikflaschen gefüllt und entweder direkt auf die Detektorkappe gesetzt oder mittels eines Probenhalters auf definierte Abstände zur Detektorkappe gebracht.

Danksagung

Diese Arbeit wurde in der Zeit vom Februar 1996 bis Januar 1997 im Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover unter Leitung von Herrn Prof. Dr. R. Michel angefertigt.

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. R. Michel für seine Betreuung, Unterstützung und seine Diskussionsbereitschaft.

Bei Frau Dipl.-Chem. M. Gilles und Herrn Dipl.-Chem. M. Filß möchte ich mich für die gute Zusammenarbeit während dieser Diplomarbeit bedanken.

Mein spezieller Dank gilt meinem Kollegen Herrn J. Kuhnhenh für das gute Teamwork, das lockere Arbeitsklima und den fruchtbaren Ideenaustausch während des letzten Jahres.

Herrn Dr. D. Jakob danke ich für die stete Diskussionsbereitschaft und Unterstützung. Besonders danke ich auch für die intensive Durchsicht des Manuskripts.

Bei Herrn K.-H. Ivannek bedanke ich mich für die gründliche Einweisung in wissenschaftliches Arbeiten im Labor und das immer herzliche Arbeitsklima.

Herrn Dipl. Biol. G. Pätzold möchte ich dafür danken, daß er auch die kleinsten Ungeheimheiten in meinen Programmen gefunden hat. Ohne seine Unterstützung wären viele ‚Bugs‘ unentdeckt geblieben.

Ich bedanke mich bei allen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern des ZRS für das angenehme Arbeitsklima. Besonderer Dank gilt auch den Mitarbeitern der Feinmechanikwerkstatt, die sich auch meiner unmöglichsten Wünsche schnell und unkompliziert angenommen haben.

Ich möchte meinen Eltern dafür danken, daß sie mir dieses Studium und diese Diplomarbeit ermöglicht und mich auf meinem Weg immer unterstützt haben.

Ich erkläre hiermit, vorliegende Arbeit selbständig angefertigt und alle verwendeten Hilfsmittel angegeben zu haben.

Hannover, Januar 1997