

# Kernchemisches Praktikum I

Institut für Kernchemie\*  
Johannes Gutenberg – Universität Mainz

September 2017

<b>Erste Auflage:</b>	K.E. Seyb (1961)
<b>Zweite, erweiterte Auflage:</b>	W. Grimm, W. Herzog, J.V. Kratz (1972)
<b>Dritte, überarbeitete Auflage:</b>	G. Klein, G. Tittel, M. Weis (1977)
<b>Vierte, weitgehend erneuerte Fassung:</b>	H. Ohm (1982)
<b>Fünfte, aktualisierte Fassung:</b>	T. Blaich, H. Tetzlaff, T. Karlewski (1986)
<b>Sechste Auflage:</b>	K. Lützenkirchen, H. Rimke, J. Rogowski, U. Scherer (1989)
<b>Siebte Auflage:</b>	K. Lützenkirchen (1992)
<b>Achte, revidierte Auflage:</b>	K. Lützenkirchen (1995)
<b>Neunte, modifizierte Auflage:</b>	N. Erdmann, K. Lützenkirchen, C. Wirtz (1998)
<b>Zehnte, modifizierte Auflage:</b>	J. Brockmann, C. Grüning, E. Strub (2000)
<b>Elfte, modifizierte Auflage:</b>	N. Erdmann, H. Hummrich, M. Piel, Ta. Reich (2005)
<b>Zwölfte, modifizierte Auflage:</b>	F. Beyerlein, K. Eberhardt, H. Humrich, M. Jahn, M. Piel (2009)
<b>Dreizehnte, modifizierte Auflage:</b>	M. Lochmann (2010)
<b>Vierzehnte, überarbeitete Auflage:</b>	D. Renisch (2012)
<b>Fünfzehnte, überarbeitet Auflage:</b>	C. Willberger, D. Schönenbach, S. Leidich (2017)

---

\*15. Auflage 2017

# Vorwort

Die radiochemischen Experimente, die in diesem Skript beschrieben sind, basieren auf einem Kurs **Praktische Radiochemie**, wie ihn Otto Hahn am Kaiser-Wilhelm-Institut in Berlin-Dahlem abhielt, um seine Mitarbeiter mit dem Umgang radioaktiver Substanzen vertraut zu machen. Nach dem zweiten Weltkrieg wurde dieser Kurs von Fritz Strassmann am Institut für Anorganische Chemie der Universität Mainz eingerichtet.

Das Kernchemische Praktikum I wendet sich an Studenten der Chemie, der Physik und der Geowissenschaften, sowohl im Bachelor- als auch im Masterstudium. Es vermittelt Grundlagen aus Kernchemie und Kernphysik, deren Beherrschung zum Umgang mit Radioaktivität notwendig ist. Neben dem radiochemischen Arbeiten wird die Messtechnik für radioaktive Strahlung intensiv behandelt.

Das Praktikum findet in der vorlesungsfreien Zeit ganztägig an zehn Arbeitstagen statt. Jeder Praktikumstag beginnt mit einem Einführungsseminar. Die Teilnehmer sollten sich bereits **vor Beginn des Praktikums** ein Grundwissen über Kernchemie angeeignet haben, das in einem Abschlusskolloquium behandelt wird. Zur Vorbereitung wird folgende Lektüre empfohlen:

Cornelius Keller: Grundlagen der Radiochemie, 3. Auflage  
Verlag Diesterweg, Salle, Sauerländer (1993) (*nur gebraucht erhältlich*)

Eine umfangreichere Darstellung des Stoffes findet man in folgenden Büchern:

G. Friedlander et al.: Nuclear and Radiochemistry, 3rd Edition  
John Wiley and Sons (1981)

K. H. Lieser: Einführung in die Kernchemie, 3. Auflage  
Verlag Chemie (1991) (*nur gebraucht erhältlich*)

M.F. L'Annunziata: Radioactivity – Introduction and History  
1. Auflage, Elsevier, Amsterdam (2007)

Das vorliegende Skript gliedert sich in zehn Kapitel, die jeweils das Programm eines Praktikumstages enthalten. Zu Beginn jedes Kapitels werden Literaturhinweise zu dem behandelten Stoff gegeben.

***Es ist unbedingt notwendig, zum Kernchemischen Praktikum eine Schutzbrille mitzubringen! Ein Laborkittel wird für die Dauer des Praktikums vom Institut für Kernchemie gestellt.***

Ort des Praktikums: Institut für Kernchemie,  
Fritz-Strassmann-Weg 2

Beginn des Kurses: Jeweils montags um 08:30 Uhr im großen Seminarraum

## Protokolle

Nach Abschluss des Praktikums soll ein Ergebnisprotokoll angefertigt werden. Das bedeutet, dass eine klassische Aufteilung wie in bisherigen Praktika mit Theorie, Beobachtungen, Durchführung etc. nicht erwünscht ist. Vielmehr soll das Protokoll dem „Results and Discussion“-Teil einer Veröffentlichung gleichen. Formal bedeutet das:

1. Es wird 1 (!) Gesamtdatei per E-Mail im pdf-Format abgegeben, die die Ergebnisse aller 8 Tage enthält (Strahlenschutz-Tag und PET-Tag müssen nicht ins Protokoll). Hierbei ist auf Einheitlichkeit im Hinblick auf Layout (Schriftart, Schriftgröße usw.) und Nummerierungen von Abbildungen, Tabellen und Formeln zu achten.
2. Die Abgabefrist für die erste Version beträgt 2 Wochen nach Ende des Kurses, spätestens dann muss das Protokoll bei einem der betreuenden Assistenten eingegangen sein.
3. Das Protokoll beginnt mit einem Deckblatt mit Namen, E-Mail-Adressen, betreuendem Assistenten und Datum des Kurses. Wichtig zu beachten ist hierbei: Alle Mitglieder einer Gruppe stehen mit ihren Namen auf diesem Deckblatt, das heißt, es sind auch alle gleichermaßen für den Inhalt und die Richtigkeit des gesamten Protokolls verantwortlich. Dies gilt auch dann, wenn die einzelnen Protokollteile unter den Gruppenmitgliedern aufgeteilt wurden. Täuschungsversuche fallen auf die gesamte Gruppe zurück. Eine gegenseitige Korrektur und Kontrolle vor Abgabe ist daher sinnvoll.
4. Sämtliche Graphen, die bei der täglichen Auswertung erstellt wurden, werden an der entsprechenden Stelle im Protokoll eingefügt. Es ist nicht nötig, Wertetabellen von Zerfallskurven und Spektren im Anhang anzufügen, die Messdaten müssen sich jedoch auf den Messrechner im Messraum des Praktikums befinden.
5. Die täglichen Ergebnisse kommen alle ins Protokoll, auch die Ergebnisse, die in Auswertungen des gesamten Kurses erhalten wurden.
6. Alle Ergebnisse werden mit Literaturwerten verglichen und auf Basis dieses Vergleichs wird eine Einordnung der Aussagekraft des eigenen Wertes vorgenommen. Bei größeren Abweichungen oder zu erwartenden Diskrepanzen sollen die möglichen Fehlerquellen diskutiert werden.
7. Die tägliche Abschlussbesprechung liefert hierzu alle notwendigen Literaturwerte und Fehlerquellen für eure Diskussion, aufpassen lohnt sich also.
8. Es soll keine Durchführung beschrieben werden. Dennoch soll mit einem, maximal 2 Sätzen beschrieben werden, was gemacht und was gemessen wurde, z.B.: Ba-137m wurde durch Fällung von BaSO<sub>4</sub> aus dem Gleichgewicht mit Cs-137 abgetrennt. Um die Nachbildung des Ba-137m zu beobachten, wurde das Filtrat für 54 mal 30 s am GMZ gemessen.

Bei der Korrektur durch die betreuenden Assistenten wird darauf geachtet, dass das Protokoll wissenschaftlich korrekt verfasst ist. Im Folgenden werden die hierbei wichtigsten Punkte, die es zu beachten gilt, zusammengefasst:

9. Alle erhaltenen Ergebnisse werden mit Einheiten angegeben, sämtliche Zerfallsraten sind in Bq (1/s) anzugeben. Zwischen Einheit und Zahl kommt immer ein geschütztes Leerzeichen (um Zeilensprünge zu vermeiden) und Einheiten werden nicht kursiv geschrieben.
10. Bei der Angabe von Werten bitte auf signifikante Stellen achten.
11. Es gibt genau 2 zulässige Schreibweisen für Nuklide:  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  oder Ba-137m.
12. Alle angegebenen Tabellen, Abbildungen und Formeln werden nummeriert. Tabellen werden mit Überschriften und Graphen mit Unterschriften versehen. Zudem handelt es sich bei Beschriftungen von Graphen und Tabellen und auch bei Formeln um Sätze, die mit einem Punkt beendet werden.
13. Die Achsen eines Graphen haben grundsätzlich Achsenbeschriftungen mit der dargestellten Größe und deren Einheit.
14. Alle verwendeten Variablen für physikalische Größen müssen definiert werden. In Formeln und auch im Fließtext werden solche Variablen *kursiv* geschrieben. Physikalische Konstanten (wie z.B. die ideale Gaskonstante R) und Einheiten dagegen werden nicht kursiv geschrieben.

Zum Abschluss noch 2 Bemerkungen:

- Auf einen wissenschaftlichen Stil ist beim Schreiben eines wissenschaftlichen Protokolls generell zu achten.
- Obwohl es sich bei dem Protokoll zum Kernchemischen Praktikum 1 nicht um eine Germanistik-Hausarbeit handelt, sollte es dennoch bitte in vollständigen Sätzen verfasst und ohne Rechtschreib- und Grammatikfehlern abgegeben werden!

# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Herstellung und Messung radioaktiver Präparate</b> .....	- 1 -
<b>1.1 Die Messung radioaktiver Strahlung mit einem Geiger-Müller Zählrohr</b> .....	- 1 -
1.1.1 Bedienung einer Geiger-Müller-Zählordnung .....	- 1 -
1.1.2 Durchführung: Bestimmung der Charakteristik eines Geiger-Müller-Zählrohrs.....	- 2 -
1.1.3 Durchführung unter Verwendung eines Standardpräparats .....	- 3 -
1.1.4 Bestimmung des Nulleffekts .....	- 3 -
<b>1.2 Totzeit des Geiger-Müller-Zählrohrs</b> .....	- 4 -
1.2.1 Durchführung: Bestimmung der Totzeit des Geiger-Müller-Zählers.....	- 5 -
<b>1.3 Radiochemische Arbeitsregeln</b> .....	- 5 -
<b>1.4 Herstellung fester radioaktiver Präparate durch Filtration; Verwendung inaktiven Trägermaterials</b> .....	- 6 -
1.4.1 Durchführung: Herstellung eines <sup>35</sup> S-Präparats .....	- 8 -
<b>1.5 Bestimmung des Geometriefaktors für das Geiger-Müller-Zählrohr</b> .....	- 9 -
1.5.1 Durchführung: Bestimmung des Geometriefaktors durch Messung eines <sup>234</sup> Pa-Präparats bekannter Zerfallsrate .....	- 10 -
<b>1.6 Absorption von <math>\beta</math>-Strahlung in Materie</b> .....	- 10 -
1.6.1 Durchführung: Aufnahme einer Absorptionskurve .....	- 11 -
<b>2. <math>\beta</math>-Zerfall, radioaktives Gleichgewicht und <math>\gamma</math>-Spektroskopie</b> .....	- 16 -
<b>2.1 Zerfall und Nachbildung radioaktiver Strahlung</b> .....	- 16 -
2.1.1 Allgemeines Nachbildungsgesetz für ein radioaktives Tochternuklid ...	- 17 -
2.1.2 Diskussion der Formeln (26) und Formel (27).....	- 17 -
<b>2.2 Zerfall und Nachbildung von <sup>137m</sup>Ba (säkulares Gleichgewicht)</b> .....	- 20 -
2.2.1 Durchführung: Messung der Nachbildung von <sup>137m</sup> Ba aus <sup>137</sup> Cs .....	- 21 -
2.2.2 Durchführung: Messung des Zerfalls von <sup>137m</sup> Ba.....	- 21 -
<b>2.3 Wechselwirkung von <math>\gamma</math>-Strahlung mit Materie</b> .....	- 22 -
<b>2.4 Messung von <math>\gamma</math>-Spektren mit dem NaI(Tl)-Detektor</b> .....	- 25 -
2.4.1 Durchführung: Kanal-Energiekalibrierung des NaI(Tl)-Detektors mit <sup>137</sup> Cs und <sup>60</sup> Co.....	- 32 -
2.4.2 Durchführung: Das $\gamma$ -Spektrum von <sup>24</sup> Na .....	- 33 -
2.4.3 Durchführung: Der Einfluss der Messgeometrie auf die Form der $\gamma$ -Spektren .....	- 33 -
2.4.4 Durchführung: Absorptionsgesetz für $\gamma$ -Strahlung .....	- 34 -
<b>3. Untersuchung von Zerfall und Nachbildung der Folgeprodukte von <sup>219</sup>Rn</b> .....	- 36 -
<b>3.1 Nachweis von <math>\alpha</math>-Strahlung</b> .....	- 36 -
3.1.1 Proportionalzähler .....	- 36 -
3.1.2 Oberflächensperrschicht-Zähler.....	- 38 -
<b>3.2 Versuche</b> .....	- 38 -

3.2.1	Durchführung: Nachbildung von $^{211}\text{Bi}$ aus $^{211}\text{Pb}$ ( $\alpha$ -Zählung).....	- 39 -
3.2.2	Durchführung: Nachbildung von $^{207}\text{Tl}$ aus $^{211}\text{Bi}$ ( $\beta$ -Zählung).....	- 39 -
3.2.3	Durchführung: Kalibrationsmessung am OSZ .....	- 40 -
3.2.4	Durchführung: Zerfall von $^{211}\text{Bi}$ ( $\alpha$ -Messung am OSZ) .....	- 40 -
3.2.5	Durchführung: Zerfall von $^{207}\text{Tl}$ -Rückstoß-Atomen ( $\beta$ -Zählung).....	- 40 -
3.2.6	Durchführung: Indirekte Bestimmung der Halbwertszeit von $^{211}\text{Pb}$ durch Abmelken von $^{207}\text{Tl}$ .....	- 41 -
4.	Biologische Strahlenwirkung und Strahlenschutz .....	- 43 -
5.	Positronen-Emissions-Tomographie (PET) .....	- 44 -
5.1	Grundlagen.....	- 44 -
5.1.1	Nuklearmedizinisch relevante Radionuklide.....	- 44 -
5.1.2	Radionuklidgeneratoren am Beispiel des $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ -Generators.....	- 49 -
5.2	Durchführung: Experimente mit einem $^{68}\text{Ga}$ -Generator .....	- 52 -
6.	Kernreaktionen mit Neutronen.....	- 54 -
6.1	Erzeugung von radioaktiven Ag-Isotopen.....	- 57 -
6.1.1	Durchführung: Aktivierung von Ag.....	- 57 -
6.1.2	Durchführung: Absorption von Neutronen.....	- 59 -
6.2	Neutronenaktivierungsanalyse zum Nachweis von Spurenelementen .....	- 59 -
6.3.1	Durchführung: Bestimmung des Cu-Gehalts in Al-Folie mittels NAA..	- 60 -
7.	Angeregte Kernzustände, $\beta$ -Endpunktsenergie und $\beta$ -verzögerte Neutronen .....	- 62 -
7.1	Gamma-spektroskopie mit Halbleiterdetektoren .....	- 62 -
7.2	Aufstellung eines Zerfallsschemas eines $\beta$ -Strahlers mit Hilfe gamma-spektroskopischer Untersuchungen .....	- 64 -
7.2.1	Durchführung: $\gamma$ -spektroskopische Untersuchung des $^{190\text{m}}\text{Os}$ -Zerfalls ..	- 66 -
7.3	$\beta$ -Spektroskopie .....	- 67 -
7.3.1	Durchführung: Energiekalibrierung des $\beta$ -Spektrometers.....	- 71 -
7.3.2	Durchführung: Bestimmung der Endpunktsenergien von $\beta$ -Spektren..	- 73 -
7.4	Delayed Neutron Activation Analysis (DNAA).....	- 73 -
7.4.1	Theoretische Grundlagen .....	- 73 -
7.4.2	Durchführung: DNAA-Versuche mit $^{235}\text{U}$ und $^{232}\text{Th}$ .....	- 77 -
8.	Nachweis der Kernspaltung mittels Mitfällung von Radioisotopen durch Mischkristallbildung .....	- 80 -
8.1	Versuche .....	- 83 -
8.1.1	Durchführung: Bestimmung der Spaltausbeute des $^{139}\text{Ba}$ .....	- 83 -
8.1.2	Durchführung: Fraktionierte Fällung von $\text{BaCrO}_4$ in Gegenwart von $^{139}\text{Ba}$ und $^{224}\text{Ra}$ in Mikromengen.....	- 84 -
9.	Anwendung von Radioisotopen.....	- 87 -
9.1	Die Untersuchung des Elektronenaustauschs in einem System $\text{X}^+/\text{X}^{3+}$ .....	- 87 -

9.2	Versuche .....	- 88 -
9.2.1	Durchführung: Herstellung der markierten $Tl^{3+}$ -Lösung .....	- 88 -
9.2.2	Durchführung: Messung der Halbwertszeit des Elektronenaustauschs im System $Tl^+/Tl^{3+}$ .....	- 89 -
10.	Transurane – Die Chemie des Neptuniums .....	- 92 -
10.1	Fällungsversuche zur Neptunium Chemie .....	- 92 -
10.1.1	Durchführung: 1. Präparat – Re ähnlich? .....	- 92 -
10.1.2	Durchführung: 2. Präparat – U ähnlich? .....	- 93 -
10.1.3	Durchführung: 3. Präparat – Re ähnlich? .....	- 93 -
10.1.4	Durchführung: 4. Präparat – U ähnlich? .....	- 93 -
10.1.5	Durchführung: 5. Präparat – Re ähnlich? .....	- 93 -
10.1.6	Durchführung: 6. Präparat – U ähnlich? .....	- 93 -
10.1.7	Durchführung: Standardpräparat .....	- 94 -
11.	Der Forschungsreaktor TRIGA Mainz .....	- 96 -
11.1	Einleitung .....	- 96 -
11.2	Aufbau .....	- 96 -
11.2.1	Reaktortank .....	- 97 -
11.2.2	Steuerstäbe .....	- 97 -
11.2.3	Bestrahlungseinrichtungen .....	- 98 -
11.3	Brennstoff und Moderation .....	- 99 -
11.4	Betriebsarten .....	- 101 -
11.5	Wissenschaftliche Nutzung .....	- 101 -
11.5.1	Angewandte Wissenschaft .....	- 102 -
11.5.2	Grundlagenforschung .....	- 102 -
11.5.3	Ausbildung .....	- 102 -
12.	Anhang .....	- 104 -
12.1	Abbildungsverzeichnis .....	- 104 -
12.2	Tabellenverzeichnis .....	- 105 -

# 1. Herstellung und Messung radioaktiver Präparate

Literatur: Keller, S. 84-90  
Lieser, S. 165-172  
Friedlander, S. 243-252

## 1.1 Die Messung radioaktiver Strahlung mit einem Geiger-Müller Zählrohr

**Versuchsziel: Bestimmung der Zählrohrcharakteristik (Einsatzspannung  $U_E$ , Arbeitsspannung  $U_A$ , relative Zählratenänderung bei Spannungsvariation  $\Delta I/I$ )**

Beim Durchgang von hochenergetischen Elektronen ( $\beta$ -Strahlen) oder  $^4\text{He}$ -Kernen ( $\alpha$ -Strahlen) durch ein Gas werden die Gasatome angeregt und ionisiert. Die dabei erzeugte Ladung kann zum Nachweis der Strahlung ausgenutzt werden. Das einfachste auf diesem Prinzip beruhende Instrument ist das Geiger-Müller-Zählrohr (GMZ).

Das Geiger-Müller-Zählrohr besteht aus zwei Elektroden, einer Kathode, die normalerweise als Metallzylinder geformt ist, und einer dünnen Drahtanode, die entlang der Zylinderachse gespannt ist. Im Zählrohr befindet sich ein unter vermindertem Druck stehendes Zählgas. Durch ein dünnes Glimmerfenster kann die Strahlung in das Zählrohr eindringen. Durchläuft ein energiereiches Teilchen das Zählgas, so werden durch Ionisation Elektronen erzeugt. Diese Primärelektronen werden im stärkeren elektrischen Feld nahe des Anodendrahtes auf hohe kinetische Energie beschleunigt, die zur Weiterionisation des Zählgases und damit zur Erzeugung von Sekundärelektronen führen. Die entstehende Lawine von etwa  $10^8$  Sekundärelektronen induziert einen negativen Spannungspuls an der Anode, der über einen Verstärker in einen Zähler geführt wird. Der Zähler registriert die Impulse nur während der von einem Zeitgeber vorbestimmten Dauer. Die Messdauer kann in Schritten von 1 s eingestellt werden. Alle elektronischen Komponenten, wie Hochspannungsversorgung, Verstärker, Zähler und Zeitgeber, sind in einem Gerät zusammengefasst und werden über einen PC gesteuert.

### 1.1.1 Bedienung einer Geiger-Müller-Zählordnung

Vor dem Einschalten ist unbedingt zu prüfen, ob die Hochspannung (HV) auf den kleinstmöglichen Wert eingestellt ist! Beim plötzlichen Anlegen einer hohen Spannung kann das Zählerrohr beschädigt werden! Nach dem Einschalten erwärmt sich das Gerät. Kommt es bei Messungen auf gute Reproduzierbarkeit an, sollte man etwa fünf Minuten warten, bis sich die Temperatur stabilisiert hat. Zum Einstellen der Messung legt man ein radioaktives Präparat unter das Zählerrohr und startet die Messung, damit das Ansprechen des Röhrchens auf die einfallenden Teilchen rechtzeitig festgestellt werden kann. Die Spannungserhöhung darf nicht zu schnell erfolgen. Bei einer bestimmten Spannung werden die ersten Pulse registriert. Diese Einsatzspannung dient zur Kontrolle des Zählrohrs. Eine starke Änderung der Einsatzspannung lässt auf einen Defekt im Zählerrohr oder im Zählergerät schließen. Die Einsatzspannung dient auch zur Bestimmung der Messspannung des Zählerrohrs aufgrund seiner Charakteristik (siehe Abschnitt 1.1.2). Die Messspannung



bleibt während eines Arbeitstages eingestellt. Radioaktive Präparate sollten nicht länger als zur Messung notwendig unter dem Zählrohr liegen, da sonst, auch wenn die Messung beendet ist, durch ständigen Verbrauch von Löschgasmolekülen die Lebensdauer des Zählrohrs unnötig verkürzt wird. Nach der Messung werden die Zahlen der registrierten Impulse  $N$  und die Messdauer  $t$  aufgeschrieben.  $N/t$  ist gleich der Zählrate  $I$ .

### 1.1.2 Durchführung: Bestimmung der Charakteristik eines Geiger-Müller-Zählrohrs

Bei der folgenden Messung darf das Abschirmgehäuse des Geiger-Müller-Zählrohrs nicht geschlossen werden, damit ein etwaiges - von wilden Entladungen herrührendes - Klirren des Zählerrohrs bei zu hoher Spannung rechtzeitig bemerkt wird. In solch einem Fall muss die Hochspannung sofort verringert werden, sonst würde das Zählerrohr schnell zerstört werden.

Ein radioaktives Präparat wird unter das Zählrohr gebracht und die Einsatzspannung bestimmt. Die Spannung wird danach um 30 Volt erhöht und die erste Messung durchgeführt. Die Zählrate sollte wegen der Totzeit des Geiger-Müller-Zählrohrs (siehe Abschnitt 1.2) nicht mehr als 50000 Impulse pro Minute betragen; ist sie höher, muss die Position des Präparates geändert werden. Weitere Messungen werden nach jeweiligem Erhöhen der Spannung um 30 Volt durchgeführt. Spannung und Zählrate werden aufgeschrieben und in einem Diagramm gegeneinander aufgetragen (siehe Abbildung 1).

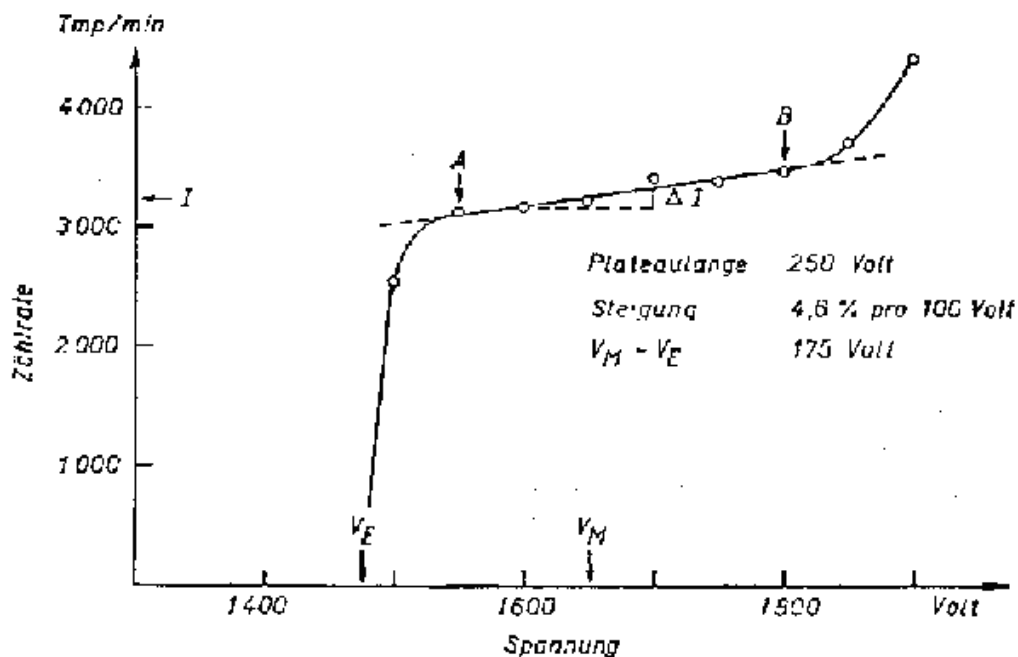


Abbildung 1: Charakteristik eines Geiger-Müller-Zählrohrs. Die Spannungswerte gelten nicht für die im Praktikum verwendeten GMZ.

Nachdem einige Messungen nur wenige ansteigende Zählraten ergeben haben, wird bei einer weiteren Erhöhung der Spannung eine Zunahme der Zählrate festzustellen sein. Die erhöhte Zählrate rührt von selbständigen Entladungen her. Die Spannung muss in diesem Fall sofort vermindert werden, da das Zählrohr eine derartige Belastung nicht lange aushält. **In keinem Fall sollte die Spannung auf mehr als 600 Volt erhöht werden.** Die Abhängigkeit der Zählrate von der Zählrohrspannung wird als Charakteristik des Zählrohrs bezeichnet.

1. Durch den nahezu waagrechten und gradlinig verlaufenden Teil der Charakteristik, das Plateau, wird eine Gerade gezogen. Wie in der Skizze werden Einsatzspannung  $V_E$ , Plateauanfang  $A$  und -ende  $B$  markiert und die Messspannung  $V_M$  50-100 Volt über den Plateauanfang eingetragen.
2. Die Differenz  $B-A$  ergibt die Plateaulänge. Sie beträgt bei einem neuen Zählrohr mindestens 300 Volt. Ein altes Zählrohr mit weniger als 150 Volt Plateaulänge ist für genaue Messungen unbrauchbar.
3. Die Differenz  $V_M - V_E$  ergibt die Spannung, die zur täglichen kontrollierten Einsatzspannung addiert werden muss, um die notwendige Messspannung zu erhalten. Dabei wird angenommen, dass sich bei einer kleinen Änderung der Einsatzspannung die Messspannung in gleichem Maße ändert. Bei größeren Änderungen der Einsatzspannung muss die Charakteristik des Zählrohrs nachgeprüft werden.

$100 \cdot \Delta I / I$  ergibt den prozentualen Anstieg des Plateaus pro 100 Volt, wobei (wie in der Skizze eingezeichnet)  $\Delta I$  die Zunahme der Zerfallsrate pro 100 Volt und  $I$  die Zerfallsrate bei der Messung ist. Spannungsschwankung  $\pm 10$  Volt würden bei einem Zählrohr mit 10 % Plateauanstieg pro 100 Volt einen Fehler der Messwerte um  $\pm 1$  % ergeben. Die Plateaus neuer Zählrohre sollen nicht mehr als 3 %, die alter nicht mehr als 10 % pro 100 Volt ansteigen.

### 1.1.3 Durchführung unter Verwendung eines Standardpräparats

Ein  $U_3O_8$ -Präparat, dessen letzte chemische Behandlung etwa 8-9 Monate zurückliegt, zeigt über lange Zeit eine konstante Zerfallsrate. Dieses Standardpräparat muss zur Kontrolle des Zählgeräts einmal täglich möglichst lange Zeit gemessen werden. Wenn das Zählgerät in Ordnung ist, muss die Zählrate konstant sein. Werden radioaktive Präparate über Wochen und länger wiederholt gemessen, so kann das Standardpräparat zur Korrektur verwendet werden: Wird statt der am ersten Messtag ermittelten Zählrate des Standardpräparats  $I_{S,1}$  an einem späteren Tag ein kleinerer Wert  $I_{S,t}$  gemessen, so ist anzunehmen, dass an diesem Tag auch die Zählraten der anderen Präparate  $I_t$  entsprechend zu klein sind. Die korrigierte Zählrate  $I_t(\text{korr})$  ergibt sich dann nach Formel (1).

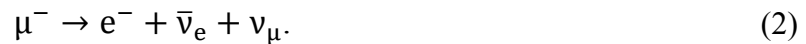
$$I_t(\text{korr}) = I_t \cdot \frac{I_{S,1}}{I_{S,t}} \quad (1)$$

Muss während einer Messreihe ein Zählrohr ersetzt werden, so kann das neue Zählrohr (gleichen Typs und gleicher Fensterdicke) mithilfe des Standardpräparats in die alte Position gebracht werden.

### 1.1.4 Bestimmung des Nulleffekts

Auch ohne die Anwesenheit eines radioaktiven Präparats wird von einer Messanordnung eine geringe Zählrate, der Nulleffekt (Untergrund), registriert. Er wird hervorgerufen durch die Höhenstrahlung und die natürliche Radioaktivität. Die Höhenstrahlung besteht zum größten Teil aus  $\gamma$ -Quanten, schnellen Protonen, Heliumkernen und schweren Ionen. Durch Kollision der Kerne mit Gasmolekülen in der Atmosphäre werden Pionen gebildet, die in Myonen zerfallen.

Abgesehen von einer größeren Masse und seiner Instabilität hat das Myon dieselben Eigenschaften wie das Elektron. Das Myon zerfällt nach Formel (2) in ein Elektron und in Neutrinos.



Der Nulleffekt ist praktisch konstant, solange er nur durch die Höhenstrahlung und die natürliche Radioaktivität der Umgebung verursacht wird. Eine Erhöhung des Nulleffekts kann auf einer radioaktiven Verunreinigung der Umgebung des Zählrohrs beruhen. Der Nulleffekt  $I_{NE}$  ist in jeder gemessenen Zählrate enthalten. Die Nettozählrate  $I$  eines Präparats ergibt sich wie folgt als Differenz aus der Gesamt-Zählrate  $I_{ges}$  und dem Nulleffekt.

$$I = I_g - I_{NE}. \quad (3)$$

Der Nulleffekt muss, besonders wenn  $I_g$  in der gleichen Größenordnung liegt, sehr genau gemessen werden, wozu eine lange Messdauer erforderlich ist. Der Nulleffekt wird deshalb am besten in der Mittagspause gemessen. Während der Messung des Nulleffekts muss sich in der normalerweise benutzten Messposition unter dem Zählrohr ein leerer Präparateträger befinden.

## 1.2 Totzeit des Geiger-Müller-Zählrohrs

Literatur: Keller, S. 87-90  
Lieser, S. 168-170  
Friedlander, S. 361

### Versuchsziel: Bestimmung des Totzeitmodells und der Totzeit

Nach Registrierung eines ionisierenden Teilchens ist ein Geiger-Müller-Zählrohr für eine Zeit  $\tau$ , die Totzeit, unempfindlich für ein weiteres Ereignis. Bei zunehmender Stärke des radioaktiven Präparats gelangt ein immer größerer Anteil der zu registrierten Teilchen während der Totzeit ins aktive Zählrohrvolumen. Die gemessene Zählrate  $I_g$  ist dann niedriger als die wahre Zählrate  $I_w$ , die bei Abwesenheit von Totzeiteffekten zu erwarten wäre.  $I_g \cdot \tau$  ist der Bruchteil der Zeit, während dessen das Zählrohr unempfindlich ist. Der Verlust an Impulsen pro Zeiteinheit  $I_w - I_g$  ergibt sich als Produkt aus der wahren Zählrate  $I_w$  und dem Anteil der Totzeit an der Gesamtzeit  $I_g \cdot \tau$ , in dem das Zählrohr unempfindlich ist (Formel (4)). Durch Umstellen kann Formel (5) zur Bestimmung der Totzeit  $\tau$  erhalten werden.

$$I_w - I_g = I_w \cdot I_g \cdot \tau. \quad (4)$$

$$\tau = \frac{I_w - I_g}{I_w \cdot I_g}. \quad (5)$$

Bis zu einer Zählrate  $I_g = 10^{-2} / \tau$  beträgt der Totzeitverlust maximal 1 % und kann vernachlässigt oder mit den genannten Formeln (4) und (5) korrigiert werden.

### 1.2.1 Durchführung: Bestimmung der Totzeit des Geiger-Müller-Zählers

Eine Reihe von 17 Messpräparaten, hergestellt unter Verwendung der beiden Nuklide  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$ , wird zur Verfügung gestellt. Die Präparate sind verschieden stark und durch ihre relative  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Aktivität  $a$  gekennzeichnet.

Die Präparate werden nacheinander gemessen. Bei den drei schwächsten Präparaten soll die Messdauer zur Erzielung einer guten statistischen Genauigkeit fünf Minuten betragen. Bei den übrigen Präparaten genügt eine Messdauer von je einer Minute. Die gemessenen Zählraten werden gegen die relative Aktivität der Präparate aufgetragen.

Es resultiert eine Kurve, die zunächst geradlinig ansteigt und dann bei höheren Zählraten zunehmend flacher wird. Die wahren Zählraten  $I_g = a \cdot A$  steigen proportional zur relativen  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Aktivität  $A$  und stimmen für niedrige Zählraten mit den gemessenen überein.

## 1.3 Radiochemische Arbeitsregeln

Beim Arbeiten mit radiochemischen Substanzen bestehen die Gefahren einer äußeren Strahlenbelastung und einer radioaktiven Kontamination, die zur Beeinträchtigung der Messung und zu einer inneren Strahlenbelastung führen können.

### Maßnahmen zur Vermeidung einer äußeren Strahlenbelastung

1. Messung der Strahlung durch Dosimeter und Hand-Fuß-Kleider-Monitor; im Bedarfsfall hinter einer Blei-Abschirmung arbeiten, damit die Strahlenbelastung niedrig gehalten wird.
2. Durchführung der radiochemischen Operationen mit dem geringstmöglichen Zeitaufwand. Dazu Arbeitsgang vorher genau planen, alle notwendigen Reagenzien und Geräte bereitstellen und unbekannte Reaktionen zuerst mit inaktivem Material ausprobieren.

### Maßnahmen zu Vermeidung einer radioaktiven Kontamination

1. Vorher über radioaktive und chemische Eigenschaften der verwendeten Nuklide informieren. Die Verflüchtigung radioaktiver Substanzen während einer chemischen Operation kann zu gefährlicher Kontamination führen. Die Unterbrechung einer radiochemischen Arbeit ist durch gründliche Vorbereitung zu vermeiden.
2. In einem möglichst eng begrenzten Bereich arbeiten, der nach der Arbeit leicht auf radioaktive Kontamination überprüft werden kann. Arbeitsplätze mit Plastikfolie abdecken, die für die verwendeten Lösungen undurchlässig ist; darüber saugfähiges Papier auslegen. Arbeiten mit radioaktiven Lösungen sind in einer Kunststoffwanne durchzuführen. Radioaktive Lösungen dürfen nicht mit dem Mund pipettiert

werden. Beim Erhitzen radioaktiver Lösungen in einem Becherglas muss dieses mit einem Uhrglas abgedeckt werden, um das Verspritzen radioaktiver Substanz zu vermeiden. Zudem sollte ein Glasstab zur Verhinderung von Siedeverzügen in das Becherglas gestellt werden. Trockene radioaktive Präparate müssen vor Luftzug geschützt werden.

3. Trotz aller Vorsicht kann in einem begrenzten Bereich eine Kontamination vorkommen, wenn z.B. ein Spritzer einer radioaktiven Lösung oder ein offenes Messpräparat auf den Fußboden fällt. Es muss dann sofort versucht werden, die Kontamination zu beseitigen. Ist das nicht gleich vollständig möglich, muss die Stelle so abgegrenzt und gekennzeichnet werden, dass eine Verschleppung der Radioaktivität zu anderen Stellen unmöglich ist. Wer glaubt, eine durch Unvorsichtigkeit herbeigeführte Kontamination verheimlichen zu müssen, ist für ein radiochemisches Labor untragbar. Unbedingte Ehrlichkeit gegenüber Mitarbeitern ist in solchen Fällen das oberste Gebot.

Nach einer radiochemischen Arbeit (auch bei einer Unterbrechung der Arbeit) sind Arbeitsplatz, Hände und Schuhsohlen, sowie auch die nähere Umgebung des Arbeitsplatzes mit einem Monitor zu prüfen, damit auch unbemerkte Kontaminationen rechtzeitig festgestellt und nicht auf Türklinken, in die Messanordnung und in andere Bereiche verschleppt werden.

4. Behälter, die radioaktive Substanzen enthalten, sind auffallend zu kennzeichnen mit Angabe von Art und Menge der radioaktiven Substanz. Die Aufbewahrung einer solchen Substanz hat so zu erfolgen, dass eine Gefährdung anderer oder Missbrauch durch Unbefugte ausgeschlossen sind. Geräte, die mit Radioaktivität in Berührung gekommen sind, sind ebenfalls zu kennzeichnen und von anderen Geräten getrennt aufzubewahren.

Radioaktive Abfälle (Lösungen und feste Präparate) werden je nach Art und Konzentration der vorliegenden Radionuklide nach den Bestimmungen der Strahlenschutzverordnung beseitigt.

## 1.4 Herstellung fester radioaktiver Präparate durch Filtration; Verwendung inaktiven Trägermaterials

**Versuchsziel: Bestimmung des Absorptionsfaktors  $f_a$  für verschiedene Abdeckungen.**

Für die Messung radioaktiver Strahlung verwendet man im Allgemeinen dünne, feste Präparate, in denen ein möglichst geringer Teil der Strahlung absorbiert wird. Man stellt die Präparate am einfachsten durch Fällung aus einer wässrigen Lösung und anschließender Filtration her.

Lösungen radioaktiver Substanzen sind oft trägerfrei. Es liegen darin so wenige Atome vor, dass für gängige Fällungsreaktionen das Löslichkeitsprodukt nicht erreicht wird und die Fällung somit ausbleibt.

So enthält z.B. die zur Herstellung des  $^{35}\text{S}$ -Präparats (siehe Versuch 1.4.1) verwendete aktive Lösung etwa  $10^9 - 10^{10}$  Atome  $^{35}\text{S}$ . In solch einem Fall ist es nötig, vor der Fällung zur Aktivität isotopes, inaktives Trägermaterial zu geben, das sich chemisch in demselben Zustand

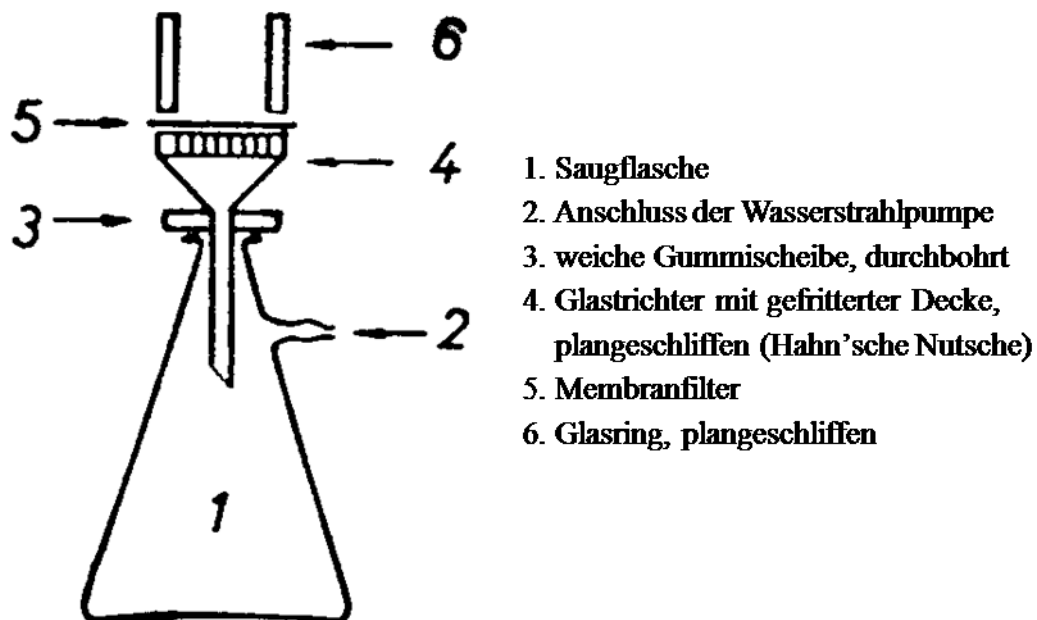
wie die Aktivität befindet. Als Träger werden in 1.4.1 10 mg inaktive  $\text{SO}_4^{2-}$ -Ionen in 10 ml Wasser zugegeben. Die Konzentration inaktiver Schwefelatome ( $^{32}\text{S}$ ) beträgt also etwa  $10^{-2}$  mol/l, was  $6 \cdot 10^{19}$  Atomen  $^{32}\text{S}$  entspricht; die Konzentration des Trägers ist zehn Größenordnungen höher als die der aktiven Isotope.

Ein weiteres Problem beim Arbeiten mit geringen Substanzmengen stellt sich ab Konzentrationen von kleiner als  $10^{-4}$  mol/l ein. In diesem Fall muss man mit einer merklichen Absorption der Atome an den Gefäßwänden rechnen. Der Umfang der Absorption hängt von den chemischen Eigenschaften der Verbindung ab, in der das betreffende Radionuklid vorliegt, sowie von den chemischen Eigenschaften der Gefäßwand. Glasoberflächen bestehen aus einem Silikatgerüst mit freien  $-\text{SiOH}$  Gruppen. Sie haben daher Ionenaustausch- und Absorptionseigenschaften. Die Ionenaustauschkapazität von Glasoberflächen liegt bei  $10^{-10}$  mol/cm<sup>2</sup>. Bei Arbeiten mit trägerfreien Mengen, im obigen Beispiel mit  $\approx 10^9$  Atomen oder  $10^{-15}$  mol, kann somit die Aktivität zum größten Teil an der Gefäßwand anhaften.

Die Anforderungen an ein Messpräparat sind:

1. Definierte Geometrie bezüglich des Detektors,
2. möglichst dünne und gleichmäßige Schichtdicke,
3. Reproduzierbarkeit bei der Herstellung des Präparats.

Zur Herstellung von Messpräparaten durch Filtration wird der in Abbildung 2 skizzierte Aufbau verwendet:



**Abbildung 2:** Skizze des Versuchsaufbaus zur Herstellung fester radioaktiver Präparate.

Vor der Filtration eines Niederschlags wird der angefeuchtete Membranfilter auf die Nutsche gelegt und der Glasring mit der plangeschliffenen Seite fest aufgedrückt. Wenn der Glasring unbeschädigt ist, kann keine Lösung unter dem Rand nach außen dringen.

Damit der Niederschlag gleichmäßig über den Filter verteilt wird, muss die Suspension des Niederschlags bei schwachem Vakuum auf den Filter gegeben werden, sodass der Glasring ständig wenigstens halbvoll ist, bis der Rest der Lösung zugegeben ist. Dann wird scharf abgesaugt. Das noch feuchte Präparat wird mit einer ausreichenden Menge Klebstoff auf einem mit Tesa überklebten Präparateträger befestigt. Eine zu große Menge Klebstoff löst den Filter auf oder deformiert ihn so, dass schlecht haftende Niederschläge verloren gehen können. Die Präparateträger (ca. 1 mm Aluminium-Blech) sollen insbesondere bei der Messung von  $\beta$ -Strahlung wegen des Auftretens von Rückstreuungseffekten einheitliche Dicke haben. Kristalline Niederschläge können sehr leicht vom Präparateträger rutschen und sind deshalb für Messpräparate weniger geeignet als flockige oder gelartige Niederschläge.

Messpräparate sollen möglichst trocken sein, da  $\alpha$ - und  $\beta$ -Strahlung durch Feuchtigkeit absorbiert werden kann. Das Trocknen eines Präparats erfolgt am besten mit einem elektrischen Heizstrahler.

Offene radioaktive Messpräparate können leicht zu einer Kontamination führen. Auch sind Messungen nicht zuverlässig, wenn die Möglichkeit besteht, dass Teile des radioaktiven Präparats verloren gehen. Aus diesen Gründen müssen radioaktive Präparate stets abgedeckt sein. Dabei muss berücksichtigt werden, dass ein zu dickes Abdeckmaterial Strahlung kurzer Reichweite absorbiert. Für harte,  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen ist eine Klebefolie ( $7,5 \text{ mg/cm}^2$ ) am zuverlässigsten. Für  $\alpha$ - und weiche  $\beta$ -Strahlen eignet sich eine Mylarfolie ( $0,8 \text{ mg/cm}^2$ ).

#### 1.4.1 Durchführung: Herstellung eines $^{35}\text{S}$ -Präparats

$^{35}\text{S}$ -Lösung, in der das radioaktive Nuklid als Sulfat vorliegt, wird in ein Becherglas gegeben, das 10 mg inaktive  $\text{SO}_4^{2-}$ -Ionen enthält. Die Lösung wird mit Wasser auf ca. 10 ml verdünnt und auf einer Heizplatte erwärmt. Das Becherglas muss währenddessen mit einem Uhrglas verschlossen sein, damit die Lösung nicht verspritzen kann. Zur Vermeidung eines Siedeverzugs wird ein dünner Glasstab in das Becherglas gestellt.

Bevor die Lösung zum Sieden kommt, wird tropfenweise mit  $\text{Ba}^{2+}$ -Lösung  $\text{BaSO}_4$  gefällt. Der Niederschlag wird abfiltriert und das feuchte Präparat auf einen Präparateträger geklebt. Das Präparat wird je einmal eine Minute lang unter folgenden Bedingungen mit einem Geiger-Müller-Zählrohr gemessen:

1. feucht, unbedeckt
2. nach dem Trocknen, unbedeckt
3. trocken, mit Mylarfolie bedeckt
4. trocken, mit aluminisierter Mylarfolie bedeckt
5. trocken, mit Klebefolie bedeckt

Die Zählraten werden in Prozent der Zählrate des trockenen, unbedeckten Präparats angegeben.

## 1.5 Bestimmung des Geometriefaktors für das Geiger-Müller-Zählrohr

Die radioaktive Strahlung wird von einem Präparat gleichmäßig in allen Richtungen emittiert. Der Anteil, der zum Zählrohr gelangt, ist proportional dem Raumwinkel zwischen Zählrohr und Präparat. Dieser Anteil wird als Geometriefaktor  $f_g$  bezeichnet. Bei einem punktförmigen Präparat ist  $f_g$  gegeben durch Formel (6).

$$f_g = 0,5 \cdot \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}}\right). \quad (6)$$

Hierin ist  $h$  der Abstand zwischen Präparat und Zählrohrfenster und  $r$  der Fensterradius.

Der Geometriefaktor kann experimentell bestimmt werden, indem man die Zählrate  $I$  misst, die von einem radioaktiven Präparat mit bekannter Zerfallsrate  $A$  hervorgerufen wird. Bei der Messung von  $\beta$ -Strahlung muss jedoch berücksichtigt werden, dass Absorptions- und Streueffekte die Zählrate beeinflussen.

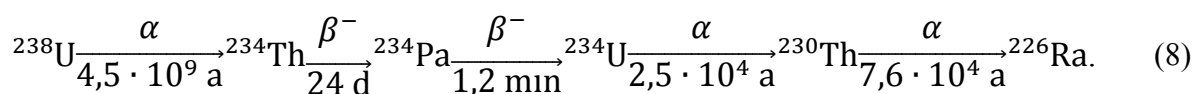
Absorption in der Abdeckfolie des Präparats und Selbstabsorption im Präparat vermindern die Zählrate. Dieser Einfluss kann durch Aufnehmen der Absorptionskurve und Bestimmung des Absorptionsfaktors  $f_a$  erfasst werden (siehe Versuch 1.5.1).

Die Rückstreuung von  $\beta$ -Strahlung durch den Präparateträger erhöht die Zählrate um den Faktor  $f_r$ . Dieser Rückstrefaktor hängt von der Energie, sowie vom Material und der Dicke des Reflektors ab. Vernachlässigt man Streueffekte im Präparat und im Zählrohrgehäuse, so gilt Formel (7).

$$I = A \cdot f_g \cdot f_a \cdot f_r = A \cdot \varepsilon. \quad (7)$$

Das Produkt der Faktoren  $f_g \cdot f_a \cdot f_r$  heißt **Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$** .

Man kann als Präparat bekannter Zerfallsrate  $A$  eine definierte Menge  $^{238}\text{U}$  verwenden, das sich mit seinem Folgeprodukt  $^{234}\text{Pa}$  im Gleichgewicht befindet. Die Zerfallskette ist in Formel (8) dargestellt.



Wird ein Uransalz frisch gereinigt, findet eine Neubildung des  $^{234}\text{Th}$  statt, die nach  $10 \cdot t_{1/2} = 240 \text{ d}$  das Gleichgewicht erreicht. Das  $^{234}\text{Pa}$  ist dann schon nach ca. 12 min mit dem  $^{234}\text{Th}$  im Gleichgewicht. Die Zerfallsrate des  $^{234}\text{Pa}$  steigt daher praktisch im gleichen Maße an wie die Zerfallsrate des  $^{234}\text{Th}$ , es gilt dann Formel (9). Die Neubildung des  $^{230}\text{Th}$  aus dem  $^{234}\text{U}$  erreicht erst in  $t = 1000 \text{ a}$  etwa 1 % der Sättigungsaktivität. 240 Tage nach einer chemischen Trennung hat daher ein Uranpräparat für lange Zeit eine konstante Aktivität und kann somit als Standard verwendet werden.

Die Uranisotope emittieren  $\alpha$ -Strahlung, die schon in der Klebefolie absorbiert wird. Die maximale  $\beta$ -Energie des  $^{234}\text{Th}$  ist 0,19 MeV, was nach dem Energie-Reichweite Diagramm (Abbildung 4) einer Reichweite von 40 mg/cm<sup>2</sup> Al entspricht. Das  $^{234}\text{Pa}$  hat wesentlich härtere



$\beta$ -Strahlung mit einer maximalen  $\beta$ -Energie von 2,26 MeV. Um die  $\beta$ -Strahlung des  $^{234}\text{Th}$  zu absorbieren, werden im Folgenden alle Messungen unter Verwendung eines Aluminiumabsorbers der Dicke  $40 \text{ mg/cm}^2$  durchgeführt. Bei der Berechnung der Zerfallsrate des  $^{234}\text{Pa}$  wird davon ausgegangen, dass radioaktives Dauergleichgewicht herrscht (vergl. Abschnitt 2.1):

$$A(^{234}\text{Pa}) = A(^{238}\text{U}). \quad (9)$$

Die Zerfallsrate einer bekannten Menge  $^{238}\text{U}$  berechnet sich zu

$$A = N \cdot \lambda. \quad (10)$$

Die Atomzahl  $N$  ergibt sich aus der Masse  $m$  des Urans, der Molmasse  $M = 238,0 \text{ g/mol}$ , der Isotopenhäufigkeit  $\alpha$  des  $^{238}\text{U}$  (0,993) und der Avogadrozahl  $N_A$  ( $6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ).

$$N = \frac{m}{M} \cdot \alpha \cdot N_A. \quad (11)$$

Die Zerfallskonstante  $\lambda$  erhält man aus der Halbwertszeit  $t_{1/2}$  ( $4,47 \cdot 10^9 \text{ a}$ ) nach Formel (12).

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}}. \quad (12)$$

### 1.5.1 Durchführung: Bestimmung des Geometriefaktors durch Messung eines $^{234}\text{Pa}$ -Präparats bekannter Zerfallsrate

Das Präparat wird mit dem Geiger-Müller-Zählerrohr in allen Einschüben der Probenhalterung unter Verwendung eines Aluminiumabsorbers der Dicke  $40 \text{ mg/cm}^2$  gemessen. Mithilfe der gemessenen Absorptionskurve aus Abschnitt 1.6.1 wird  $f_a$  ermittelt. Mit  $f_r = 1,2$  (für  $^{234}\text{Pa}$  und einem Al-Präparatehalter von  $1 \text{ mm}$  Dicke) wird mittels Formel (7) der Geometriefaktor  $f_g$  berechnet. Mit der Punktquellenformel (6) wird  $f_g$  für alle Einschübe berechnet. Die berechneten Werte werden mit dem experimentellen Werten verglichen.

## 1.6 Absorption von $\beta$ -Strahlung in Materie

Literatur: Keller, S. 49-55, 72-75  
 Lieser, S. 150-155, 211-222  
 Friedlander, S. 74-93, 221-224

Beim Durchgang durch Materie werden  $\beta$ -Teilchen durch elektromagnetische Wechselwirkung mit den Hüllenelektronen und Atomkernen des Absorbermaterials abgebremst. Als Resultat der Wechselwirkung werden Atome des Absorbers ionisiert und die  $\beta$ -Teilchen stark aus ihrer Flugbahn abgelenkt. Bei dieser Ablenkung verlieren die  $\beta$ -Teilchen Energie in Form elektromagnetischer Strahlung (Bremsstrahlung). Für den Energieverlust  $\Delta E$

durch Ionisation und Bremsstrahlung gilt näherungsweise die in Formel (13) gezeigte Abhängigkeit der  $\beta$ -Energie  $E$  von der Ordnungszahl  $Z$  des Absorbers.

$$\frac{\Delta E_{\text{Bremsstrahlung}}}{\Delta E_{\text{Ionisation}}} = E \cdot \frac{Z}{800}. \quad (13)$$

Die Intensität der von einem radioaktiven Präparat ausgehenden  $\beta$ -Strahlung nimmt mit der Dicke des aufgelegten Absorbers stetig ab. Die halblogarithmische Auftragung der Zählrate gegen die Absorberdicke ergibt die Absorptionskurve. Das Verhältnis der Zählrate bei der Absorberdicke  $d$  zur Zählrate bei  $d = 0$  wird als Absorptionsfaktor  $f_a(d)$  bezeichnet.

$$f_a(d) = \frac{I_d}{I_0}. \quad (14)$$

Der komplizierte Absorptionsmechanismus und die kontinuierliche Energieverteilung der  $\beta$ -Teilchen machen eine exakte Berechnung der Absorptionskurve praktisch unmöglich. Näherungsweise ergibt sich in einem engen Bereich von Absorberdicken ein exponentieller Verlauf. Bei großer Absorberdicke wird die Kurve immer steiler; schließlich findet vollständige Absorption der Strahlung statt. Für praktische Zwecke definiert man als Reichweite der  $\beta$ -Strahlung diejenige Absorberdicke, bei der die Zählrate auf das  $10^{-4}$ -fache der ohne Absorber gemessenen Zählrate abgefallen ist. Bei großer Absorberdicke geht die Absorptionskurve in einen nahezu konstanten Untergrund über, der auf den Nulleffekt und die Registrierung von Bremsstrahlung zurückzuführen ist. Dieser Untergrund muss für die Bestimmung der Reichweite von den gemessenen Zählraten abgezogen werden. Die Reichweite von  $\beta$ -Strahlung in einem bestimmten Material hängt von dessen Ordnungszahl und von der maximalen  $\beta$ -Energie ab.

Reichweitemessungen hatten lange Zeit große Bedeutung als einfache Methode zur Bestimmung von maximalen  $\beta$ -Energien. Unter dem Gesichtspunkt des Strahlenschutzes ist die Kenntnis des Absorptionsgesetzes für  $\beta$ -Strahlung nach wie vor von Bedeutung. Im Allgemeinen werden Absorptionskurven für  $\beta$ -Strahlung mit Aluminiumabsorbern aufgenommen, da von diesen Metallfolien nahezu beliebiger Dicke erhältlich sind. Die Dicke von Absorbern wird als Massenbelegung in  $\text{mg}/\text{cm}^2$  angegeben; 1 mm Al entspricht  $270 \text{ mg}/\text{cm}^2$ . In Abbildung 4 ist die Beziehung zwischen der Reichweite von  $\beta$ -Strahlung in Aluminium und der maximalen  $\beta$ -Energie  $E_{\beta,\text{max}}$  dargestellt. Die Massenbelegung  $d$  ( $\text{g}/\text{cm}^2$ ) ergibt sich aus der Dicke  $x$  (cm) des Absorbers und der Dichte  $\rho$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) nach Formel (15).

$$d = x \cdot \rho. \quad (15)$$

### 1.6.1 Durchführung: Aufnahme einer Absorptionskurve

Für die Reichweitenmessung wird das Uranpräparat von Versuch 1.5.1 verwendet. Dieses Präparat enthält die  $\beta$ -Strahler  $^{234}\text{Th}$  ( $E_{\beta,\text{max}} = 0,19 \text{ MeV}$ ) und  $^{234}\text{Pa}$  ( $E_{\beta,\text{max}} = 2,26 \text{ MeV}$ ) im radioaktiven Gleichgewicht. Die Strahlung von  $^{234}\text{Th}$  wird durch  $40 \text{ mg}/\text{cm}^2$  Al vollständig absorbiert. Da nur die Absorptionskurve von  $^{234}\text{Pa}$  aufgenommen werden soll, wird der dünnste

Absorber  $d = 40 \text{ mg/cm}^2$  Al gewählt. Auch ohne Aluminiumabsorber wird die  $\beta$ -Strahlung schon durch das Zählrohrfenster, die Luftschicht zwischen Präparat und Zählrohr und durch die Klebefolie auf dem Präparat geschwächt. 1 cm Luft hat eine Massenbelegung von  $1,3 \text{ mg/cm}^2$ . Die Klebefolie auf dem Präparat ( $7,5 \text{ mg/cm}^2$ ) wirkt wie ein Al-Absorber mit einer Massenbelegung von  $5 \text{ mg/cm}^2$ . Schließlich findet im Präparat selbst Absorption statt. Insgesamt wirkt sich das aus, als sei ein Absorber mit der Massenbelegung von  $20 \text{ mg/cm}^2$  aufgelegt. Dieser Wert muss jeweils zur Massenbelegung der Al-Absorber addiert werden, um die effektive Massenbelegung zu erhalten.

Einige relevante Daten des Zählrohres sind auf dem Aushang an der Tür im Computerraum angegeben. Die Absorptionskurve wird wie folgt aufgenommen:

Je 1 min Messdauer mit 40,60,80,100,120 und 200  $\text{mg/cm}^2$  Al

Je 2 min Messdauer mit 200,350,500, und 650  $\text{mg/cm}^2$  Al

Je 5 min Messdauer mit 700,750,800,850,1200 und 1300  $\text{mg/cm}^2$  Al

Die erforderlichen Massenbelegungen können durch Kombination mehrerer Absorber erreicht werden. Die Zählraten werden halblogarithmisch gegen die Massenbelegung aufgetragen (siehe Abbildung 3). Die ohne Absorber zu erwartende Zählrate  $I_0$  wird durch lineare Rückextrapolation unterhalb der Massenbelegung  $d = 120 \text{ mg/cm}^2$  auf  $d = 0 \text{ mg/cm}^2$  ermittelt.

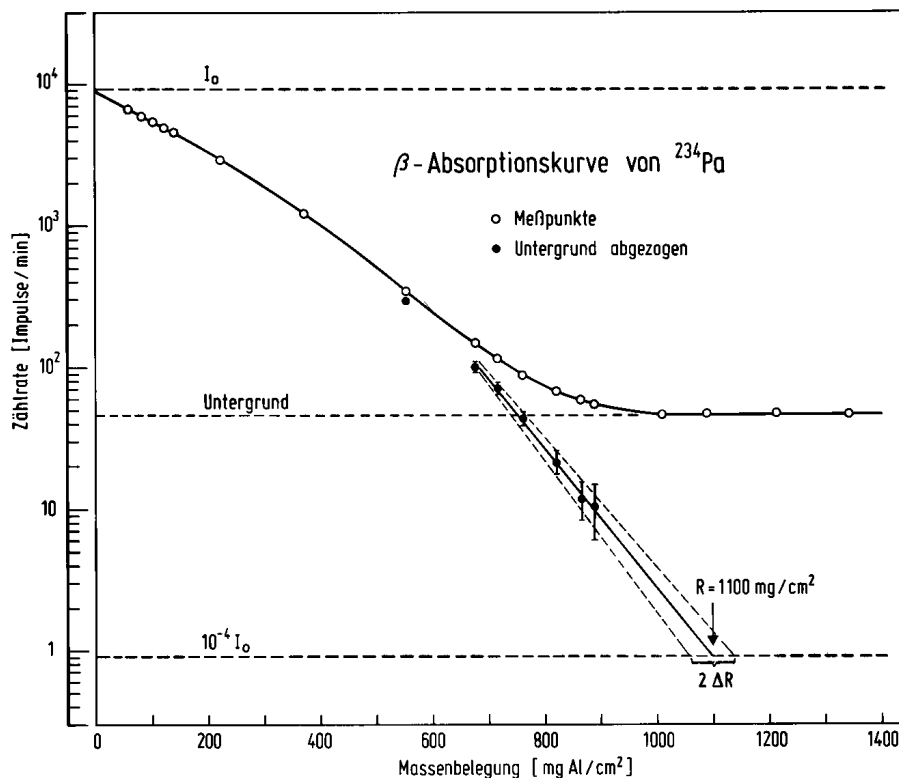


Abbildung 3: Absorptionskurve für die  $\beta$ -Strahlung von  $^{234}\text{Pa}$ .

Für die Bestimmung der Reichweite muss die Absorptionskurve auf  $10^{-4} \cdot I_0$  extrapoliert werden. Dies erfolgt oberhalb  $d = 650 \text{ mg/cm}^2$ . Dazu ist die Subtraktion des Untergrunds notwendig, der aus den beiden Messpunkten mit der höchsten Massenbelegung ermittelt wird. Diese beiden Untergrundzählraten stimmen im Allgemeinen innerhalb der statistischen Fehler überein. In diesem Fall kann der Mittelwert verwendet werden. Durch Extrapolation auf  $10^{-4} \cdot I_0$  erfolgt die Bestimmung der Reichweite. Mithilfe des Energie-Reichweite-Diagramms (siehe Abbildung 4) wird die maximale  $\beta$ -Energie  $E_{\beta, \text{max}}$  ermittelt.

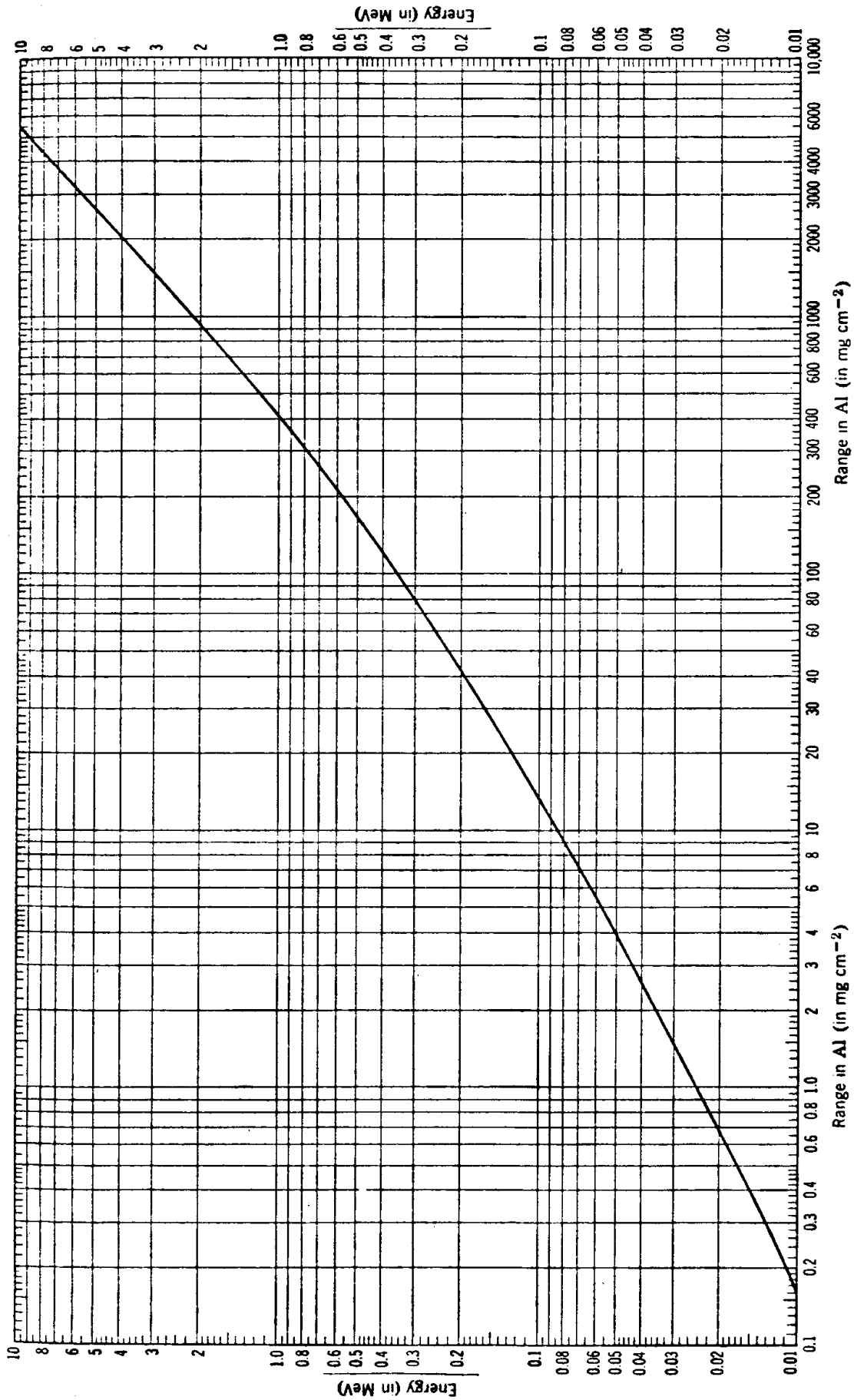


Abbildung 4: Energie-Reichweite-Diagramm für  $\beta$ -Teilchen und Elektronen in Aluminium.



### 1. Charakteristik des Geiger-Müller-Zählrohres

Standardpräparat ( $U_3O_8$ ) in den obersten Einschub stecken. Spannung sukzessive erhöhen. Ab Einsatzspannung  $U_E$  die Spannung in Schritten von 30 V erhöhen bis Zählrate steil ansteigt, jedoch bis höchstens 600 V. Messzeit je 1 min.

Auswertung: Zählrate linear gegen Messspannung auftragen. Daraus Arbeitsspannung  $U_A$  festlegen. Lage des Plateaus festlegen. Gerade fitten, relative Änderung bei Variation der Messspannung ermitteln:

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{I(U_A + 50 \text{ V}) - I(U_A + 50 \text{ V})}{I(U_A)}$$

Eintrag der Einsatzspannung und der Zählrate des Standardpräparats ins Logbuch.  $\Delta U = (U_A - U_E)$  notieren.

### 2. Bestimmung der Totzeitverluste

Die Präparate der Verdünnungsreihe messen (siehe Skript). Zählrate gegen relative Aktivitäten auftragen.  $I_w$  aus Zählraten bei niedrigen Aktivitäten extrapolieren. Totzeit für das 100 %-Präparat bestimmen:

$$\tau = \frac{I_w - I_g}{I_w \cdot I_g}$$

### 3. Nulleffekt

Während der Mittagspause Nulleffekt mit leerem Präparateträger im obersten Einschub messen. Wert ins Logbuch eintragen.

### 4. Herstellung eines $^{35}\text{S}$ -Präparates

Produktion:  $^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$ ;  $^{35}\text{S} \rightarrow ^{35}\text{Cl}$ ;  $t_{1/2} = 88 \text{ d}$ ;  $E_{\beta, \text{max}} = 167 \text{ keV}$   
 $^{35}\text{S}$ -Lsg. (ca. 100 - 200  $\mu\text{l} = 10.000 \text{ Imp/min}$ ), in der das radioaktive Nuklid als  $\text{SO}_4^{2-}$  vorliegt, in ein BG geben, das 10 mg inaktiven  $\text{SO}_4^{2-}$ -Träger enthält. Die Lsg. mit  $\text{H}_2\text{O}$  auf ca. 10 ml verdünnen und erwärmen. In der Wärme  $\text{SO}_4^{2-}$  mit tropfenweise  $\text{Ba}^{2+}$ -Lsg. fällen. Nds. abfiltrieren, feuchtes Präparat auf einen **unkleben** Präparateträger kleben und je 1 min wie folgt messen: feucht unbedeckt; trocken unbedeckt; trocken mit Mylarfolie; trocken mit Al-Mylarfolie; trocken mit Tesa abgeklebt.

ENTSORGUNG: Präparate nach der Messung in den  $\beta$ -kurz Abfall. Das Filtrat in die bereitgestellte Abfallflasche geben.

### 5. Messungen mit $^{234}\text{Pa}$ (Präparate liegen aus)

#### 5.1 Bestimmung des Geometriefaktors

In allen Einschüben mit ca. 40  $\text{mg/cm}^2$  Al-Absorber je 1 min lang messen und mit Formel (7)  $f_{g, \text{exp}}$  bestimmen und für 8. Tag notieren. (Der Absorber absorbiert die unerwünschte niederenergetische Komponente der  $\beta$ -Strahlung). Fensterradius & -dicke am Aushang ablesen. Mit der Punktquellenformel (6)  $f_{g, \text{theo}}$  für alle Einschübe errechnen. Vergleichen.

#### 5.2 Absorptionskurve

In einem passenden Einschub möglichst nahe am Zählrohr (wegen  $f_g$ ) Messungen - s. Skript - durchführen. Nebenbedingung: Zur Al-Dicke ca. 20  $\text{mg/cm}^2$  Al für Luft und Eintrittsfenster addieren.

## 2. $\beta$ -Zerfall, radioaktives Gleichgewicht und $\gamma$ -Spektroskopie

Der  $\beta$ -Zerfall ist eine sehr häufig auftretende Zerfallsart.  $\beta$ -Strahler sind leicht durch Kernspaltung oder durch die  $(n,\gamma)$ -Reaktion zugänglich. Man kann den  $\beta$ -Zerfall formal als die Umwandlung eines Neutrons  $n$  in ein Proton  $p$  verstehen (Formel (16)). Dabei wird zusätzlich ein elektrisch neutrales Teilchen, das Antineutrino  $\bar{\nu}$ , emittiert.



Durch diese Zerfallsart erniedrigt der Kern seinen Neutronenüberschuss. Dabei entsteht ein isobarer Kern mit einer um eine Einheit erhöhten Ordnungszahl. Formel zeigt dies am Beispiel des  $\beta^-$ -Zerfalls von  $^{35}\text{S}$ .



$\beta$ -Strahlen sind schnelle Elektronen mit Geschwindigkeiten bis zu 99,9 % der Lichtgeschwindigkeit und Energien bis etwa 10 MeV. Die beim  $\beta$ -Zerfall freigesetzte Energie verteilt sich in beliebigem Verhältnis auf Elektron und Antineutrino. Das hat zur Folge, dass die Energiespektren der  $\beta$ -Strahlung kontinuierlich sind.

### 2.1 Zerfall und Nachbildung radioaktiver Strahlung

Literatur: Keller, S. 33-44  
Lieser, S. 113-133  
Friedlander, S. 191-198

Der radioaktive Zerfall eines Nuklids kann zu einem Tochternuklid führen, das seinerseits radioaktiv ist. Die zeitliche Veränderung der Zahl  $N_2$  der Tochteratome ergibt sich dann nach Formel (18).

$$\frac{dN_2}{dt} = N_1 \cdot \lambda_1 - N_2 \cdot \lambda_2. \quad (18)$$

$N_1 \cdot \lambda_1$  ist die Zerfallsrate des Mutternuklids,  $N_2 \cdot \lambda_2$  die Zerfallsrate des Tochternuklids. Liegen zur Zeit  $t = 0$   $N_{1,0}$  Mutteratome vor, so folgt Formel (19).

$$\frac{dN_2}{dt} = N_{1,0} \cdot \lambda_1 \cdot e^{-\lambda_1 t} - N_2 \cdot \lambda_2. \quad (19)$$

Nach Erweitern dieser Gleichung mit  $e^{\lambda_2 t}$  kann folgender Ausdruck (Formel (20)) eingeführt werden.

$$N_2 \cdot \lambda_2 \cdot e^{\lambda_2 t} = N_2 \cdot \frac{d(e^{\lambda_2 t})}{dt}. \quad (20)$$

Formel (19) erhält dadurch eine leicht integrierbare Form, die in Formel (21) gezeigt ist.

$$\frac{dN_2}{dt} \cdot e^{\lambda_2 t} + N_2 \cdot \frac{d(e^{\lambda_2 t})}{dt} = N_{1,0} \cdot \lambda_1 \cdot e^{-\lambda_1 t} \cdot e^{\lambda_2 t}. \quad (21)$$

Links erkennt man die Ableitung des Produktes  $N_2 \cdot e^{\lambda_2 t}$ . Die Integration dieser Gleichung ergibt Formel (22).

$$N_2 \cdot e^{\lambda_2 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{1,0} \cdot e^{-\lambda_1 t} \cdot e^{\lambda_2 t} + C. \quad (22)$$

Für  $N_2 = N_{2,0}$  bei  $t = 0$  gilt Formel .

$$C = N_{2,0} - N_{1,0} \cdot \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}. \quad (23)$$

### 2.1.1 Allgemeines Nachbildungsgesetz für ein radioaktives Tochternuklid

Die Zahl der Tochteratome  $N_2$  eines ebenfalls wieder radioaktiven Tochternuklids berechnet sich auf Grund obiger Überlegungen nach Formel (24).

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{1,0} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{2,0} \cdot e^{-\lambda_2 t}. \quad (24)$$

Wenn bei  $t = 0$  keine Tochteratome vorhanden sind, fällt der letzte Summand in Formel (24) weg und es ergibt sich Formel (25).

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{1,0} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}). \quad (25)$$

Für die Aktivität des Tochternuklids gilt  $A_2 = N_2 \cdot \lambda_2$ , daraus folgt Formel (26).

$$A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot A_{1,0} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}). \quad (26)$$

Für die gesamte Aktivität  $A_1 + A_2$  von Mutter und Tochter gilt Formel (27).

$$A_1 + A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot A_{1,0} \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + A_{1,0} \cdot e^{-\lambda_1 t}. \quad (27)$$

### 2.1.2 Diskussion der Formeln (26) und Formel (27)

Zum besseren Verständnis der folgenden Diskussion siehe auch Abbildung 5.



**1. Grenzfall:**  $t_{1/2,1} \gg t_{1/2,2}$  und  $\lambda_1 \ll \lambda_2$  und  $t_{1/2,1} \gg t$

Zunächst wird der Grenzfall betrachtet, in dem die Halbwertszeit des Mutternuklids  $t_{1/2,1}$  sehr viel größer ist als die Halbwertszeit des Tochternuklids  $t_{1/2,2}$ . Für einen Untersuchungszeitpunkt  $t$ , der deutlich kleiner ist als die Halbwertszeit der Mutter gelten dann die Annahmen, dass die Zerfallskonstante  $\lambda_1$  der Mutter vernachlässigbar klein gegenüber der Zerfallskonstante  $\lambda_2$  der Tochter ist ( $\lambda_2 - \lambda_1 \approx \lambda_2$ ) und dass  $e^{-\lambda_1 t} \approx 1$ . Im Untersuchungszeitraum gilt dann  $A_1 = A_{1,0} = \text{const.}$ , und aus Formel (26) folgt dann Formel (28).

$$A_2 = A_{1,0} \cdot (1 - e^{-\lambda_2 t}). \quad (28)$$

Nach dieser Gleichung gelten für ein reines Mutternuklid die in folgender Tabelle 1 aufgelisteten Überlegungen.

**Tabelle 1:** Aktivitäten des Tochternuklids zu unterschiedlichen Zeitpunkten  $t$  bei Betrachtung des 1. Grenzfalls.

betrachteter Zeitpunkt $t$	mathematische Grundlage	Aktivität der Tochter $A_2$
$t = 0.$	$e^{-0} = 1.$	$A_2 = 0.$
$t \ll t_{1/2,2}.$	$1 - e^{-\lambda_2 t} \approx \lambda_2 t.$	$A_2 \approx \lambda_2 t \cdot A_{1,0}.$
$t = t_{1/2,2}.$	$e^{-\ln(2)} = 0,5.$	$A_2 = 0,5 \cdot A_{1,0}.$
$t = 2 \cdot t_{1/2,2}.$		$A_2 = 0,75 \cdot A_{1,0}.$
$t = 10 \cdot t_{1/2,2}.$		$A_2 = 0,999 \cdot A_{1,0}.$
$t_{1/2,2} \ll t \ll t_{1/2,1}.$		$A_2 = A_{1,0}.$

Nach zehn Halbwertszeiten des Tochternuklids zerfallen praktisch ebenso viele Atome des Tochternuklids, wie durch den Zerfall des Mutternuklids gebildet werden; dann ist  $A_1 = A_2$ . Diesen Zustand bezeichnet man als **säkulares** oder **Dauergleichgewicht**.

Zum Vergleich mit der Nachbildungsgleichung soll die **Zerfallsgleichung** (Formel (29)) des reinen Tochternuklids mit  $A_2 = A_1$  bei  $t = 0$  diskutiert werden.

$$A_2 = A_1 \cdot e^{-\lambda_2 t}. \quad (29)$$

Bei  $t = t_{1/2,2}$  ist  $A_2 = 0,5 \cdot A_1$ ; bei  $t = 2 \cdot t_{1/2,2}$  ist  $A_2 = 0,25 \cdot A_1$ ; bei  $t = 10 \cdot t_{1/2,2}$  ist  $A_2 = 0,001 \cdot A_1$  und bei  $t = \infty$  ist  $A_2 = 0$ . Die Summe von nachgebildeter und zerfallener Tochteraktivität ist zu jeder Zeit  $t$  konstant.

In der Praxis wird entsprechend der Nachweisempfindlichkeit  $\varepsilon$  des Messverfahrens nur ein Teil  $I = A \cdot \varepsilon$  der Zerfallsrate  $A$  gemessen. Außerdem kann eine reine Nachbildungsfunktion von  $A_2$  bzw.  $I_2 = 0$  nur unter folgenden Voraussetzungen gemessen werden:

1. Die Abtrennung des Tochternuklids vom Mutternuklid bei  $t = 0$  muss quantitativ sein.
2. Es darf nur Strahlung des Tochternuklids gemessen werden, andernfalls bildet die Strahlung des Mutternuklids einen konstanten Untergrund.

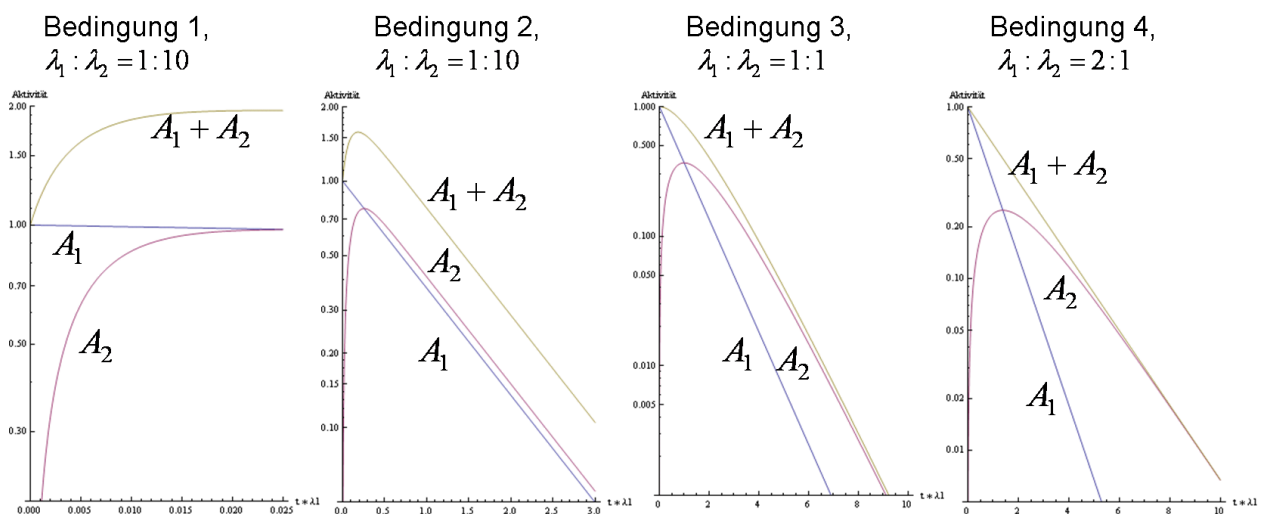
Aus Formel (28) folgt dann die messbare Nachbildungskurve, es ergibt sich Formel (30).

$$I = I_{\infty} \cdot (1 - e^{-\lambda_2 t}). \quad (30)$$

Durch Umformen erhält man daraus schließlich Formel (31).

$$\ln(I_{\infty} - I) = \ln(I_{\infty}) - \lambda_2 t. \quad (31)$$

Trägt man die Differenz zwischen dem Sättigungswert und den einzelnen Messwerten halblogarithmisch gegen  $t$  auf, so ergibt sich eine Gerade, aus der die Halbwertszeit des Tochternuklids ermittelt werden kann.



**Abbildung 5:** Nachbildungskurve für verschiedene Verhältnisse der Halbwertszeiten von Mutter- und Tochternuklid.

## 2. Grenzfall: $t_{1/2,1} > t_{1/2,2}$

Die Nachbildungskurve der Tochteraktivität (siehe Formel (26)) steigt von  $A_2 = 0$  an und geht durch ein durch Formel (32) beschriebenes **Maximum** zum Zeitpunkt  $t_{\max}$ .

$$t_{\max} = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right). \quad (32)$$

Bei großem  $t$  wird in Formel (26)  $e^{-\lambda_2 t}$  gegenüber  $e^{-\lambda_1 t}$  vernachlässigbar, sodass die Tochteraktivität mit der Halbwertszeit des Mutternuklids im **laufenden Gleichgewicht** abfällt. Im laufenden Gleichgewicht gelten dann die Formeln (33) und (34).

$$A_2 = \frac{t_{1/2,1}}{t_{1/2,1} - t_{1/2,2}} \cdot A_1. \quad (33)$$

$$N_2 = \frac{t_{1/2,2}}{t_{1/2,1} - t_{1/2,2}} \cdot N_1. \quad (34)$$

### 3. Grenzfall: $t_{1/2,1} = t_{1/2,2}$

Für diesen Grenzfall wird Formel (26) auf folgende Weise gelöst: Nach Reihenentwicklung der beiden e-Funktionen  $e^{-\lambda_2 t}$  und  $e^{-\lambda_1 t}$  wird die Differenz der Reihen durch  $(\lambda_2 - \lambda_1) \cdot t$  dividiert. Setzt man nun  $\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$ , so resultiert die Reihe für  $e^{-\lambda_1 t}$ . Die Nachbildungsgleichung für den Grenzfall  $t_{1/2,1} = t_{1/2,2}$  ist dann durch Formel (35) gegeben.

$$A_2 = \lambda \cdot t \cdot A_{1,0} \cdot e^{-\lambda t}. \quad (35)$$

### 4. Grenzfall: $t_{1/2,1} < t_{1/2,2}$

Die Aktivität der Tochter steigt nach Formel (26) von  $A_2(0) = 0$  an, erreicht bei  $t_{\max}$  nach Formel (32) das Maximum und fällt mit der Halbwertszeit der Tochter ab, wenn bei großem  $t$   $e^{-\lambda_1 t}$  vernachlässigbar klein gegenüber  $e^{-\lambda_2 t}$  wird (d.h. nach praktisch vollständigem Zerfall der Mutteraktivität). Ein Gleichgewicht stellt sich in diesem Fall nicht ein.

## 2.2 Zerfall und Nachbildung von $^{137m}\text{Ba}$ (säkulares Gleichgewicht)

Das Nuklid  $^{137}\text{Cs}$  zerfällt mit 30 a Halbwertszeit in einem angeregten Zustand des  $^{137}\text{Ba}$ , der mit 2,6 min Halbwertszeit in den stabilen Grundzustand übergeht (**Isomerer Übergang**). Ein Teil dieser Energieabgabe erfolgt durch Emission von  $\gamma$ -Quanten, ein anderer Teil durch Übertragung der Anregungsenergie des Kerns auf ein Hüllenelektron (**Konversion**). Das Zerfallsschema ist in Abbildung 6 gezeigt.  $^{137}\text{Ba}$  kann deshalb sowohl mit einem  $\beta$ -Detektor (z.B. mit dem Geiger-Müller-Zählrohr) als auch mit einem  $\gamma$ -Detektor gemessen werden.

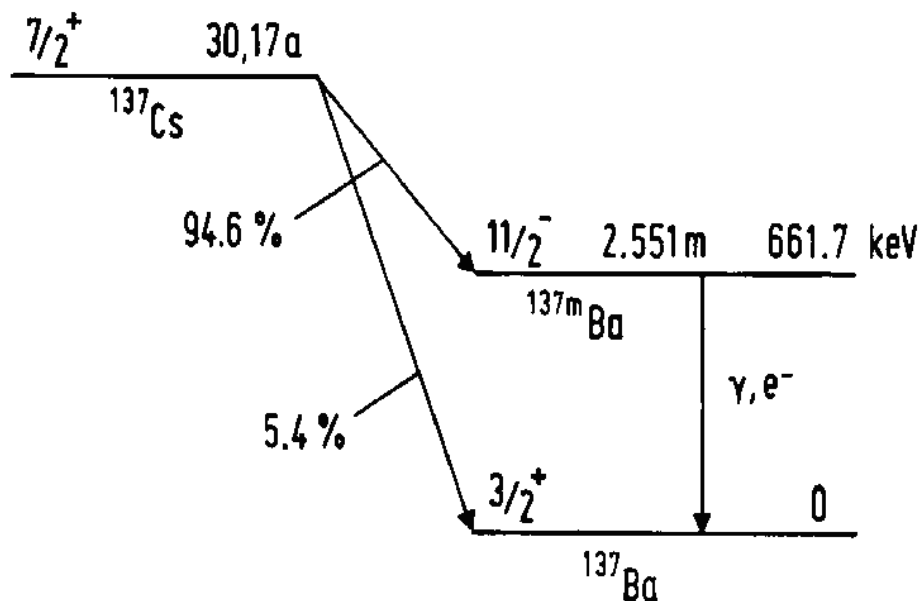


Abbildung 6: Das Zerfallsschema des  $^{137}\text{Cs}$ .

Die Abtrennung von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  aus dem Gleichgewicht mit  $^{137}\text{Cs}$  erfolgt durch Fällung als  $\text{BaSO}_4$ . Damit der Niederschlag nicht einen großen Teil des trägerfreien  $^{137}\text{Cs}$  mitreißt, muss vor der Fällung inaktives  $\text{Cs}^+$  als Rückhalteträger (hold-back-Träger) zugesetzt werden.

### 2.2.1 Durchführung: Messung der Nachbildung von $^{137\text{m}}\text{Ba}$ aus $^{137}\text{Cs}$

1 mL aktive  $^{137}\text{Cs}$ -Lösung wird in ein Becherglas gegeben, das 10 Tropfen  $\text{Ba}^{2+}$ -Träger und 20 Tropfen  $\text{Cs}^+$ -Träger enthält. Die Lösung wird mit Wasser auf 10 ml verdünnt und anschließend erwärmt. Mit wenigen Millilitern 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  wird  $\text{BaSO}_4$  gefällt und über einen Membranfilter abgesaugt. Das Filtrat wird in einem Reagenzglas aufgefangen, das in die Saugflasche gestellt wird. Bei der Fällung des  $\text{BaSO}_4$  ist darauf zu achten, dass das Lösungsvolumen nicht das Fassungsvermögen des Reagenzglases übersteigt. Der Filter wird **nicht** gewaschen. Das Reagenzglas wird mit einem Stopfen verschlossen, zum Schutz vor Kontamination in einen Handschuh gestellt und mit einem entsprechenden Probenhalter vor den  $\text{NaI}(\text{Tl})$ -Detektor gebracht. Als Messsequenz werden 50 x 30 s, dann 2 x 300 s gewählt. Besonders wichtig ist die genaue Ermittlung der Sättigungsaktivität  $I_\infty$ , die zehn Halbwertszeiten nach dem Trennzeitpunkt in den 300 s Messungen bestimmt wird. Die Zählraten werden halblogarithmisch gegen den mittleren Zeitpunkt des Messintervalls aufgetragen (siehe Abbildung 7). Für jedes Messintervall wird die Differenz  $I_\infty - I$  in dasselbe Diagramm eingetragen; gemäß Formel (31) ergibt sich eine Gerade. Aus der Steigung wird die Halbwertszeit von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  bestimmt. Bei der Konstruktion der Geraden muss berücksichtigt werden, dass Differenzen ähnlicher Zählraten mit großen statistischen Fehlern behaftet sind.

### 2.2.2 Durchführung: Messung des Zerfalls von $^{137\text{m}}\text{Ba}$

Wie oben wird  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  aus dem Gleichgewicht mit  $^{137}\text{Cs}$  abgetrennt. Diesmal soll die direkt der Zerfall des  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  im Niederschlag verfolgt werden. Der Niederschlag wird zweimal mit je 3 ml 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  gewaschen, trocken gesaugt, auf einen Präparateträger geklebt, mit Klebefolie abgedeckt und mit einem  $\text{NaI}(\text{Tl})$ -Detektor gemessen. Wegen der relativ kurzen Halbwertszeit des  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  müssen alle Arbeitsschritte gut vorbereitet werden (Zügig arbeiten!). Die Messintervalle sollten kurz im Vergleich zur Halbwertszeit von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  sein ( $< 1/5 \cdot t_{1/2}$ ); es empfiehlt sich eine Messzeit von 30 s. Die Messung wird fortgesetzt, bis  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  praktisch völlig zerfallen ist (nach  $10 \cdot t_{1/2}$ ). Zur genauen Bestimmung eines langlebigen Untergrunds werden zwei Messintervalle von je 5 min Dauer angeschlossen. Die Messsequenz kann also identisch zu der in Abschnitt 2.2.1 gewählt werden (50 x 30 s, dann 2 x 300 s). Die Zählraten werden nach Subtraktion des langlebigen Untergrunds halblogarithmisch gegen den mittleren Zeitpunkt des Messintervalls aufgetragen. Aus der Steigung der Geraden wird die Halbwertszeit von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  bestimmt.

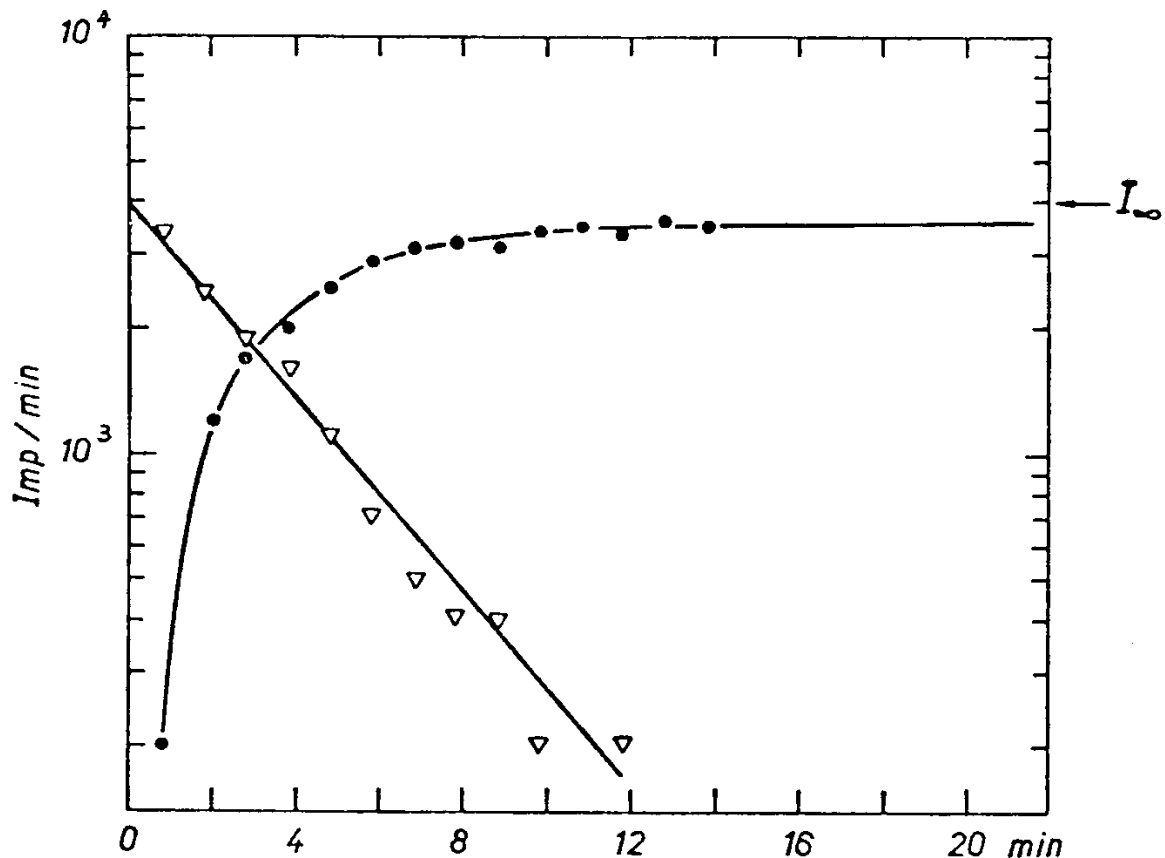


Abbildung 7: Die Nachbildung des  $^{137}\text{Ba}$  aus  $^{137}\text{Cs}$ . Punkte: Nachbildungskurve des  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ; Dreiecke: Zerfall von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  ( $I_\infty - I$ ).

### 2.3 Wechselwirkung von $\gamma$ -Strahlung mit Materie

Literatur: Keller, S. 55-60, 75-78  
 Lieser, S. 157-163, 222-231  
 Friedlander, S. 93-95, 224-232

Nach einem  $\alpha$ - oder  $\beta$ -Zerfall entstehen häufig Tochterkerne in angeregten Kernzuständen. Deren Abregung erfolgt zumeist auf einer Zeitskala von etwa  $10^{-12}$  s durch Emission von elektromagnetischer Strahlung ( $\gamma$ -Strahlung). Der angeregte Kern kann seine Energie auch direkt auf ein Hüllenelektron übertragen. Diesen Prozess nennt man **innere Konversion**. Dabei werden bevorzugt Elektronen innerer Schalen mit einer endlichen Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kern emittiert (K-Konversion).

Die Energien von  $\gamma$ -Quanten liegen im Bereich von 5 keV bis etwa 7 MeV. Besonders häufig beobachtet man  $\gamma$ -Übergänge im Energiebereich von 100 keV bis 2 MeV.

$\gamma$ -Quanten sind hochenergetische Photonen. Bei Wechselwirkungen mit Materie wird Energie nur in diskontinuierlichen Prozessen abgegeben. Für die Schwächung monoenergetischer  $\gamma$ -Strahlung beim Durchgang durch Materie gilt das in Formel (36) angegebene Absorptionsgesetz.

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu d}. \quad (36)$$

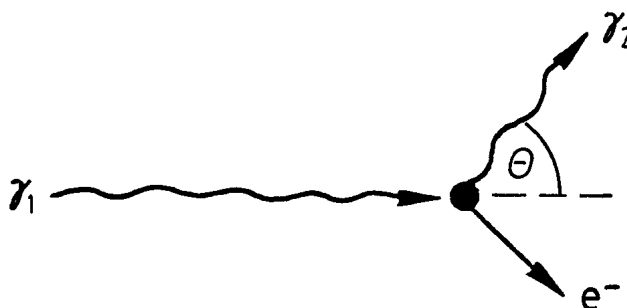
Hierbei ist  $I_0$  die Intensität der Primärstrahlung,  $I$  die Intensität der Strahlung nach dem Durchgang durch den Absorber,  $\mu$  der Absorptionskoeffizient (in  $\text{cm}^2/\text{g}$ ) und  $d$  die Massenbelegung des Absorbers (in  $\text{g}/\text{cm}^2$ ).

Die Halbwertsdicke  $D_{1/2}$  ist die Massenbelegung definiert, bei der die Intensität des Strahls um die Hälfte geschwächt wird (Formel (37)).

$$D_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\mu}. \quad (37)$$

Die Absorption von  $\gamma$ -Strahlung erfolgt im Wesentlichen durch drei Effekte:

1. Beim **Photoeffekt** überträgt das  $\gamma$ -Quant seine Energie vollständig auf ein Elektron des Absorbermaterials. Die kinetische Energie dieses Elektrons ist gleich der Energie des  $\gamma$ -Quants vermindert um die Bindungsenergie des Elektrons. Der Photoeffekt erfolgt bevorzugt an Elektronen innerer Schalen.
2. Beim **Comptoneffekt** wird das  $\gamma$ -Quant der Energie  $E_{\gamma,1}$  an einem Elektron des Absorbermaterials um den Winkel  $\theta$  gestreut (siehe Abbildung 8). Nach dem Streuvorgang besitzt es die Energie  $E_{\gamma,2}$ , die durch Formel beschrieben wird.



**Abbildung 8:** Graphische Darstellung des Comtoneffekts.

$$E_{\gamma,2} = \frac{m_0c^2}{\frac{m_0c^2}{E_{\gamma,1}} + (1 - \cos(\theta))}. \quad (38)$$

Hierbei ist  $m_0$  die Ruhemasse eines Elektrons,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Der Term  $m_0c^2$  entspricht genau 511 keV.

3.  $\gamma$ -Quanten mit Energien oberhalb von 1022 keV (was genau zweimal  $m_0c^2$  entspricht) können durch **Bildung eines Elektron-Positron-Paares** absorbiert werden. Das Positron wird nach dem Abbremsen vernichtet, indem es mit einem Elektron des Absorbermaterials rekombiniert. Dabei entstehen zwei  $\gamma$ -Quanten mit einer Energie von je 511 keV.

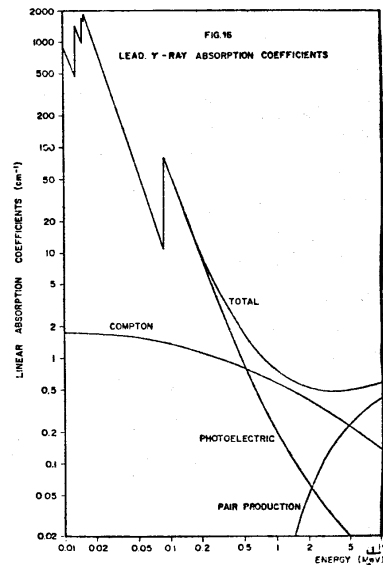
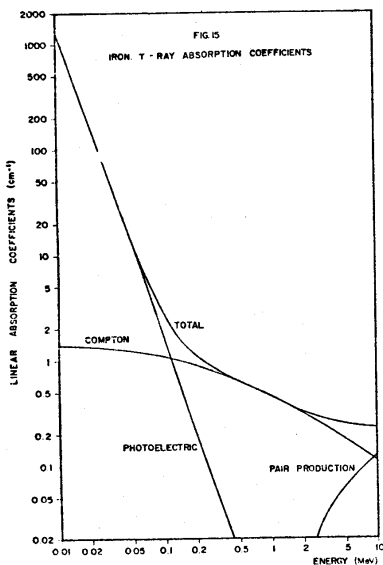
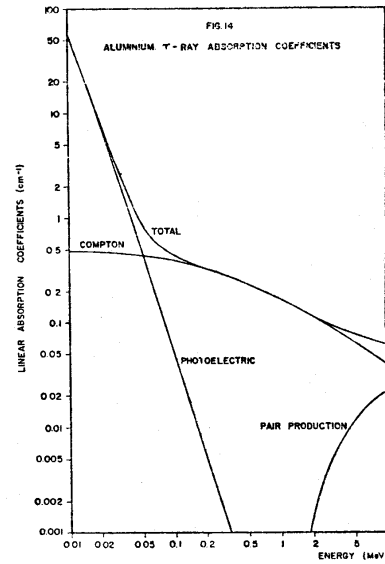
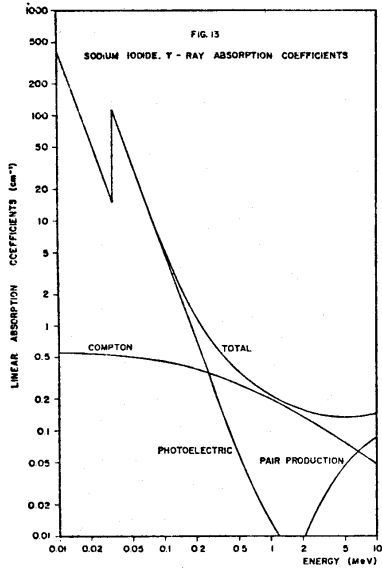
Der Absorptionskoeffizient  $\mu$  in Formel (37) setzt sich additiv aus den Beiträgen für den Photoeffekt ( $\mu_{\text{ph}}$ ), für den Comptoneffekt ( $\mu_c$ ) und für die Paarerzeugung ( $\mu_{\text{paar}}$ ). Dies ist in Formel (39) wiedergegeben.

$$\mu = \mu_{\text{Ph}} + \mu_{\text{C}} + \mu_{\text{Paar}} \quad (39)$$

Jeder einzelne Beitrag hängt von der  $\gamma$ -Energie des Radionuklids und von der Ordnungszahl des Absorbermaterials ab (vgl. Abschnitt 2.4.4 und Abbildung 9).

**Tabelle 2:** Die Abhängigkeit der Absorptionskoeffizienten für  $\gamma$ -Strahlung von der Ordnungszahl des Absorbers und der  $\gamma$ -Energie.

Wechselwirkung	Abhängigkeit von der Kernladungszahl	Abhängigkeit von der Energie
Photoeffekt ( $\mu_{\text{Ph}}$ )	$Z^4 - Z^5$	$E^{-3,5} - E^{-1}$
Comptoneffekt ( $\mu_{\text{C}}$ )	$Z$	$E^{-1}$
Paarbildung ( $\mu_{\text{Paar}}$ )	$Z^2$	$\ln(E)$ ( $E \geq 1,02 \text{ MeV}$ )



**Abbildung 9:** Der Absorptionskoeffizient für  $\gamma$ -Strahlung bei verschiedenen Materialien.

## 2.4 Messung von $\gamma$ -Spektren mit dem NaI(Tl)-Detektor

Literatur: Keller, S. 90-93  
Lieser, S. 45-49  
Friedlander, S. 261-263

Für die Messung von  $\gamma$ -Strahlung werden häufig Szintillationsdetektoren verwendet, die aus einem mit einer geringen Menge Thallium dotierten NaI-Einkristall bestehen. Absorbiert solch ein Detektor ein  $\gamma$ -Quant, so entsteht ein Lichtblitz (Szintillation), dessen Intensität mit einem Sekundärelektronen-Vervielfacher (Photomultiplier) gemessen werden kann.

Die Wirkungsweise eines NaI(Tl)-Szintillationsdetektors wird in Abbildung 10 veranschaulicht. Ein einfallendes  $\gamma$ -Quant wird absorbiert. Ein Teil seiner Energie  $E$  wird zur Erzeugung von  $N_0$  Lichtquanten verbraucht, die sich nach allen Richtungen ausbreiten. Damit möglichst viele dieser Photonen auf die Photokathode des nachfolgenden Photomultipliers auftreffen, wird der Szintillator mit einem Reflektor aus  $\text{TiO}_2$  umgeben. Der Anteil  $N$  der Photonen, die auf die Photokathode auftreffen, verursacht die Emission von  $T$  Photoelektronen. Diese werden durch eine angelegte Spannung zur ersten Dynode beschleunigt und schlagen dort weitere Sekundärelektronen heraus. Wenn  $R = 3-5$  die mittlere Anzahl der Sekundärelektronen pro einfallendem Elektron ist, dann erreichen  $R \cdot T$  Elektronen die nächste Dynode. Sind  $n$  Dynoden mit dem Multiplikationsfaktor  $R$  vorhanden, dann ist die an der Anode gesammelte Ladung  $Q_0 = R^n \cdot T \cdot e$ , wobei  $e$  die Elementarladung eines Elektrons ist. Je nach Photomultiplier-Typ und Betriebsspannung liegt  $R^n$  zwischen  $10^5$  und  $10^8$ .

Unter normalen Arbeitsbedingungen hat der Photomultiplier eine lineare Charakteristik und  $Q_0$  ist proportional zur Anzahl der einfallenden Lichtquanten. Da die Szintillationsausbeute nahezu energieunabhängig ist, ist die Ladung  $Q_0$  proportional zur Energie der einfallenden Strahlung. Daher kann das System zur Bestimmung der Energie von  $\gamma$ -Quanten verwendet werden.

Die Spannung der an der Anode auftretenden elektrischen Impulse ist ein Maß für die Energie der absorbierten Strahlungsquanten. Man kann die Energieverteilung ermitteln, indem man die vom Photomultiplier gelieferten Signale nach ihrer Höhe (Spannung) sortiert. Das kann am einfachsten mit einem ‚Diskriminator‘ durchgeführt werden, der nur die Signale zum Zähler gelangen lässt, die eine vorgegebene Gegenspannung übersteigen. Die Variation der Gegenspannung unter Registrieren der Zählrate liefert ein integrales Spektrum.

Mithilfe eines Doppelseitendiskriminators (Einkanaldiskriminator) kann man einem Zähler Signale zuführen, die in einem wählbaren Impulshöhenintervall  $\Delta u$  liegen. Durch eine Antikoinzidenzschaltung werden nur die Impulse akzeptiert, deren Spannung zwischen unterer Schwelle  $u$  und oberer Schwelle  $u + \Delta u$  liegen. Ein Analog-Digital-Wandler (ADC) analysiert automatisch jedes vom Detektor gelieferte Signal einzeln und sortiert es in einen Speicher. Breite Verwendung hat der ADC nach Wilkinson gefunden (vgl. Abbildung 11).



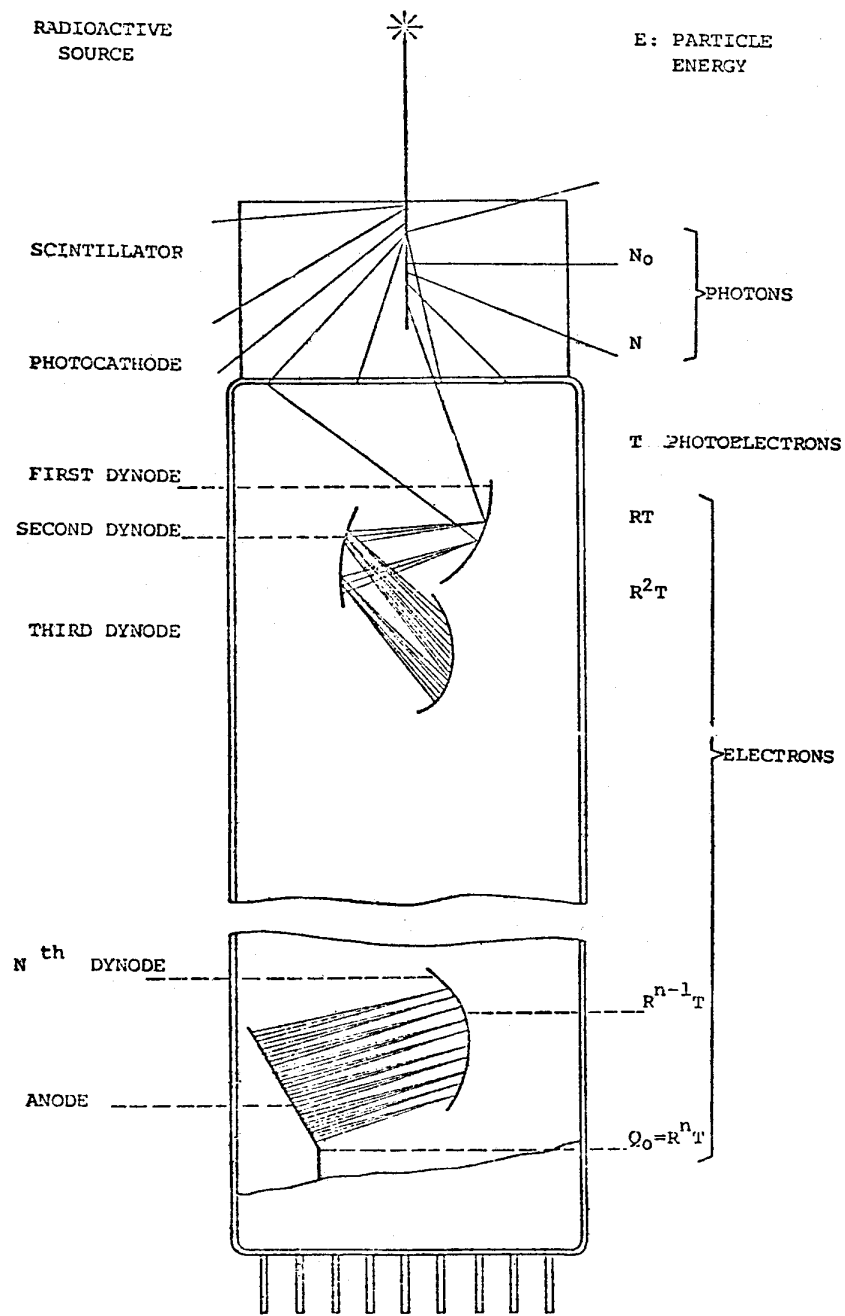


Abbildung 10: Die Funktionsweise eines Szintillationsdetektors mit Photomultiplier.

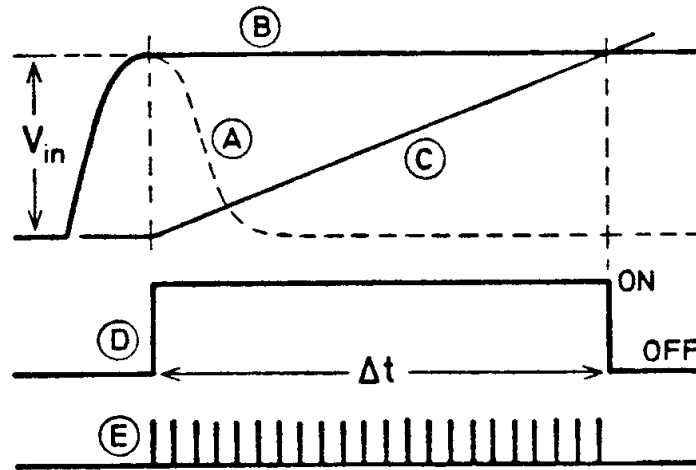


Abbildung 11: Zeitlicher Verlauf der Signale im Wilkinson-ADC.

Die Amplitude  $V_{in}$  des vom Verstärker gelieferten Signals (A) wird durch Aufladen eines Kondensators für die Zeit der Analyse festgehalten (B). Sobald der Eingangsimpuls (A) sein Maximum erreicht hat, wird ein Sägezahngenerator eingeschaltet, dessen Spannung linear mit der Zeit ansteigt (C). Gleichzeitig wird eine konstante Spannung (D) erzeugt. Die Spannungen (B) und (C) werden einer Vergleichsstufe zugeführt. Diese schaltet zu dem Zeitpunkt mit  $(B) = (C)$  die Spannung (D) ab. Die zeitliche Dauer des Signals (D) ist damit proportional zur Eingangsamplitude:  $\Delta t \sim V_{in}$ . Während der Signaldauer  $\Delta t$  wird durch die Spannung (D) ein elektronischer Zähler eingeschaltet, der die Perioden einer Wechsellspannung konstanter Frequenz (E) zählt. Die Zahl der Perioden  $n$  ist proportional zu  $\Delta t$  und damit auch zu  $V_{in}$ . Die Zahl  $n$  stellt das gewünschte digitale Äquivalent der Impulshöhe dar und kann direkt als Adresse (Kanalnummer) einer Speicherzelle benutzt werden, in der das Ergebnis gespeichert werden soll.

Während des Vergleichsvorgangs zwischen den Spannungen (B) und (C) kann der Wilkinson-ADC kein weiteres Signal verarbeiten. Er besitzt deswegen eine relativ große Totzeit, die vor allem durch die Frequenz der Wechsellspannung (E) bestimmt wird. Sehr schnelle ADC's arbeiten mit Frequenzen von mehreren hundert MHz. Der Verlust an Zählrate infolge der Totzeit kann vom Vielkanalanalysator durch eine Verlängerung der Messdauer kompensiert werden.

Für die Registrierung von Impulshöhenverteilungen finden Vielkanalspeicher Verwendung, die im Allgemeinen mehrere tausend Speicherplätze (Kanäle) besitzen. Das Spektrum kann auf einem Bildschirm dargestellt werden. Zur Auswertung werden die gespeicherten Daten zu einem Rechner transferiert oder über Drucker oder Speichermedium ausgegeben.

In Abbildung 12 ist der Aufbau einer Messanordnung mit einem NaI(Tl)-Detektor dargestellt.

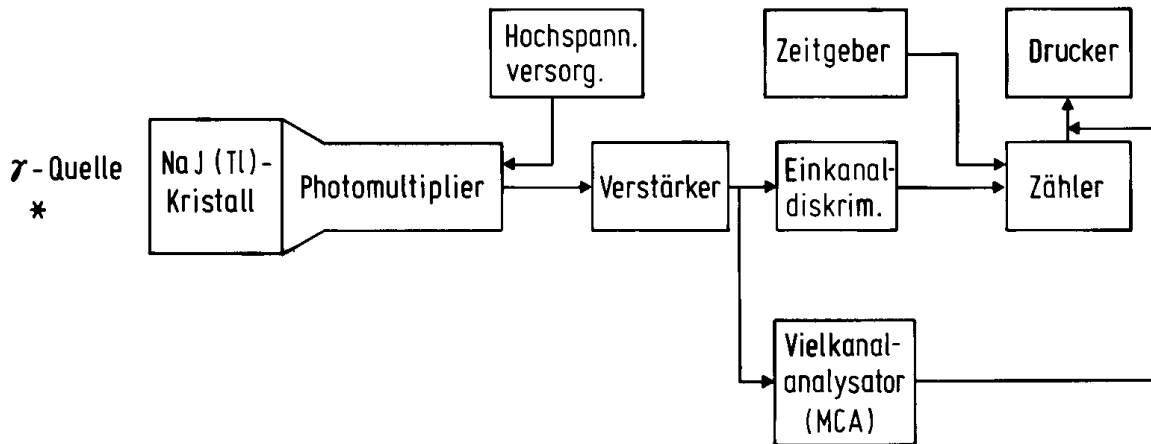


Abbildung 12: Blockschaltbild einer Messanordnung mit NaI(Tl)-Detektor.

In  $\gamma$ -Spektren können folgende charakteristischen Peaks beobachtet werden:

### Photopeak:

Vollständige Absorption von  $\gamma$ -Quanten durch den Photoeffekt führt zum Photopeak. Er ist der höchste Peak in einem  $\gamma$ -Spektrum und seine Energie  $E_\gamma$  ist charakteristisch für ein bestimmtes Nuklid.

### Compton-Kante und Compton-Kontinuum:

Die mehrfache Streuung von  $\gamma$  Quanten an Elektronen im NaI(Tl)-Kristall führt zum kontinuierlichen Compton-Kontinuum. Die in den Kristall eindringenden  $\gamma$ -Quanten verlieren einen Teil ihrer Energie und entweichen wieder aus dem Detektorvolumen. Die maximal mögliche Energieabgabe erfolgt durch Rückstreuung um  $180^\circ$  und macht sich als Compton-Kante bemerkbar. Die energetische Lage der Comptonkante  $E_C$  lässt sich unter Verwendung der Formel (40) mit  $\theta = 180^\circ$  bestimmen ( $E_C$  und  $E_\gamma$  in keV).

$$E_C = \frac{E_\gamma}{\frac{511 \text{ keV}}{2E_\gamma} + 1}. \quad (40)$$

### Rückstreupeak:

Werden  $\gamma$ -Quanten außerhalb des Detektors in den Detektor zurück gestreut, so tragen sie zum Rückstreupeak bei. Die Intensität des Rückstreupeaks ist umso größer, je mehr Material sich in der Nähe des Detektors befindet, an dem eine solche Rückstreuung stattfinden kann. Der Rückstreupeak besitzt eine niederenergetische Kante, deren Energie  $E_R$  nach Formel berechnet werden kann.

$$E_R = \frac{1}{\frac{2}{511 \text{ keV}} + \frac{1}{E_\gamma}}. \quad (41)$$

Die Summe der Energien von Comptonkante  $E_C$  und Rückstreupeak  $E_R$  entspricht der Energie des Photopeaks  $E_\gamma$ .

### **Summenpeak:**

In vielen Fällen geben angeregte Kerne ihre Energie durch schnell aufeinanderfolgende Emissionen mehrerer  $\gamma$ -Quanten ab ( $\gamma$ -Kaskade), deren zeitlicher Abstand kleiner ist als das Auflösungsvermögen des Detektors. Bei Absorption mehrerer  $\gamma$ -Quanten einer Kaskade im Detektor entsteht am Detektorausgang ein Signal, dessen Höhe der Summe der registrierten Energien entspricht; im Spektrum tritt ein Summenpeak auf. Bei  $^{60}\text{Co}$  ( $E_{\gamma,1} = 1,17 \text{ MeV}$ ,  $E_{\gamma,2} = 1,33 \text{ MeV}$ ) kann man beispielsweise einen Summenpeak bei  $E_S = 2,50 \text{ MeV}$  beobachten. Mit zunehmendem Abstand zwischen Präparat und Detektor nimmt die Intensität der Summenlinie aus statistischen Gründen schneller ab als die Intensität der Einzellinien. Daher empfiehlt es sich, bei spektroskopischen Arbeiten einen größeren Abstand zwischen Detektor und Probe zu wählen, um Störungen durch Summeneffekte zu vermeiden.

### **Charakteristische Röntgenstrahlung:**

Ist ein  $\gamma$ -Übergang konvertiert, so folgt der Emission des Konversionselektrons die Emission der charakteristischen Röntgenstrahlung.

### **Single Escape Peak und Double Escape Peak:**

Bei  $\gamma$ -Strahlung hoher Energie treten als Folge von Paarbildung und Paarvernichtung der Single Escape Peak ( $E_{SE} = E_\gamma - 511 \text{ keV}$ ) und der Double Escape Peak ( $E_{DE} = E_\gamma - 1022 \text{ keV}$ ) auf. Dieser Effekt liegt vor, wenn eines (SE) bzw. beide (DE) bei der Annihilation erzeugten Photonen aus dem Detektor entkommt. Der Energie des Photopeaks  $E_\gamma$  fehlt in diesem Fall genau die Energie eines (511 keV) bzw. zweier (1022 keV) bei der Annihilation vernichteter Teilchen (Positron bzw. Elektron). Entkommt keines der beiden Photonen wird wegen der zu geringen Zeitauflösung des Detektors die Energie des Photopeaks  $E_\gamma$  gemessen.

### **Iod Escape Peak und Germanium Escape Peak:**

Bei der Messung von  $\gamma$ -Strahlung niedriger Energie mit dem NaI(Tl)-Detektor kann die charakteristische Röntgenstrahlung von Iod aus dem Detektor entweichen. Das führt zum Iod Escape Peak ( $E_{IE} = E_\gamma - 28 \text{ keV}$ ). Analog kann mit Ge-Halbleiterdetektoren der Germanium Escape Peak ( $E_{GE} = E_\gamma - 10 \text{ keV}$ ) beobachtet werden.

### **Vernichtungspeak:**

Paarerzeugung und Paarvernichtung kann auch außerhalb des Detektors stattfinden und die bei der Annihilation entstandene Strahlung kann im Detektor detektiert werden. Deshalb beobachtet man bei der Messung hochenergetischer  $\gamma$ -Strahlung immer eine  $\gamma$ -Linie bei 511 keV. Auch die Emission von  $\beta^+$ -Strahlung ist immer von 511 keV  $\gamma$ -Strahlung begleitet.

In den Detektor eindringende  $\beta$ -Strahlung kann ebenfalls registriert werden. Deshalb empfiehlt sich für Messungen die Benutzung eines Absorbers aus Materialien niedriger Ordnungszahl (z.B. Plexiglas, Beryllium, Aluminium).

Die Zählrate  $I_\gamma$  eines Photopeaks („Peakfläche“) ist proportional zur Emissionsrate  $R_\gamma$  der  $\gamma$ -Linie.  $R_\gamma$  ist die Gesamtzahl der von einer Probe emittierten  $\gamma$ -Quanten der Energie  $E_\gamma$ . Vernachlässigt man Absorption und Selbstabsorption von  $\gamma$ -Strahlung, so gilt Formel (42).

$$I_{\gamma} = R_{\gamma} \cdot T(E_{\gamma}) \cdot P(E_{\gamma}). \quad (42)$$

Der Wirkungsgrad  $T(E_{\gamma})$  gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein  $\gamma$ -Quant mit dem NaI(Tl)-Detektor in Wechselwirkung tritt. Bei sehr niedrigen  $\gamma$ -Energien findet praktisch vollständige Absorption der  $\gamma$ -Quanten statt und  $T(E_{\gamma})$  ist allein durch den Geometriefaktor gegeben. Das so genannte Peak-to-Total-Verhältnis  $P(E_{\gamma})$  gibt an, welcher Anteil der im Detektor insgesamt registrierten  $\gamma$ -Quanten eines bestimmten Übergangs im Photopeak enthalten ist, es trägt nämlich nur der Bruchteil  $P(E_{\gamma})$  der im Detektor absorbierten  $\gamma$ -Quanten zum Photopeak bei.  $P(E_{\gamma})$  geht bei niedrigen  $\gamma$ -Energien gegen 1 und fällt mit steigender Energie steil ab. Sowohl  $T(E_{\gamma})$  als auch  $P(E_{\gamma})$  findet man tabelliert und als Diagramme in der Literatur (z.B.: R. L. Heath, Scintillation Spectrometry Gamma-Ray Spectrum Catalogue, 2nd Edition, Vol. 1, 1964). Für zylindrische NaI(Tl)-Detektoren mit drei Zoll Durchmesser und 3 Zoll Länge (3x3-Detektoren) sind  $T(E_{\gamma})$  und  $P(E_{\gamma})$  in Abbildung 13 und Abbildung 14 dargestellt.

Bei der Messung von  $\gamma$ -Strahlung sind Absorption und Selbstabsorption meist vernachlässigbar. Deshalb zieht man in allen Fällen, in denen ein Nuklid  $\gamma$ -Strahlung emittiert, die Messung der  $\gamma$ -Strahlung der Messung von  $\beta$ -Strahlung vor. Durch Ausblenden einer  $\gamma$ -Linie hat man zudem die Möglichkeit, ein Nuklid selektiv neben anderen Aktivitäten zu messen.

Die Totzeit von NaI(Tl)-Detektoren ist gering und liegt bei 1  $\mu$ s. Ein Nachteil ist der sehr hohe Nulleffekt, der um etwa eine Größenordnung höher ist als bei gasgefüllten Detektoren. Bei Auswahl eines schmalen Impulshöhenintervalls kann jedoch sehr untergrundarm gemessen werden.

Mit zylindrischen NaI(Tl)-Detektoren kann nahezu in  $2\pi$ -Geometrie gemessen werden, mit Bohrlochdetektoren in  $4\pi$ -Geometrie.

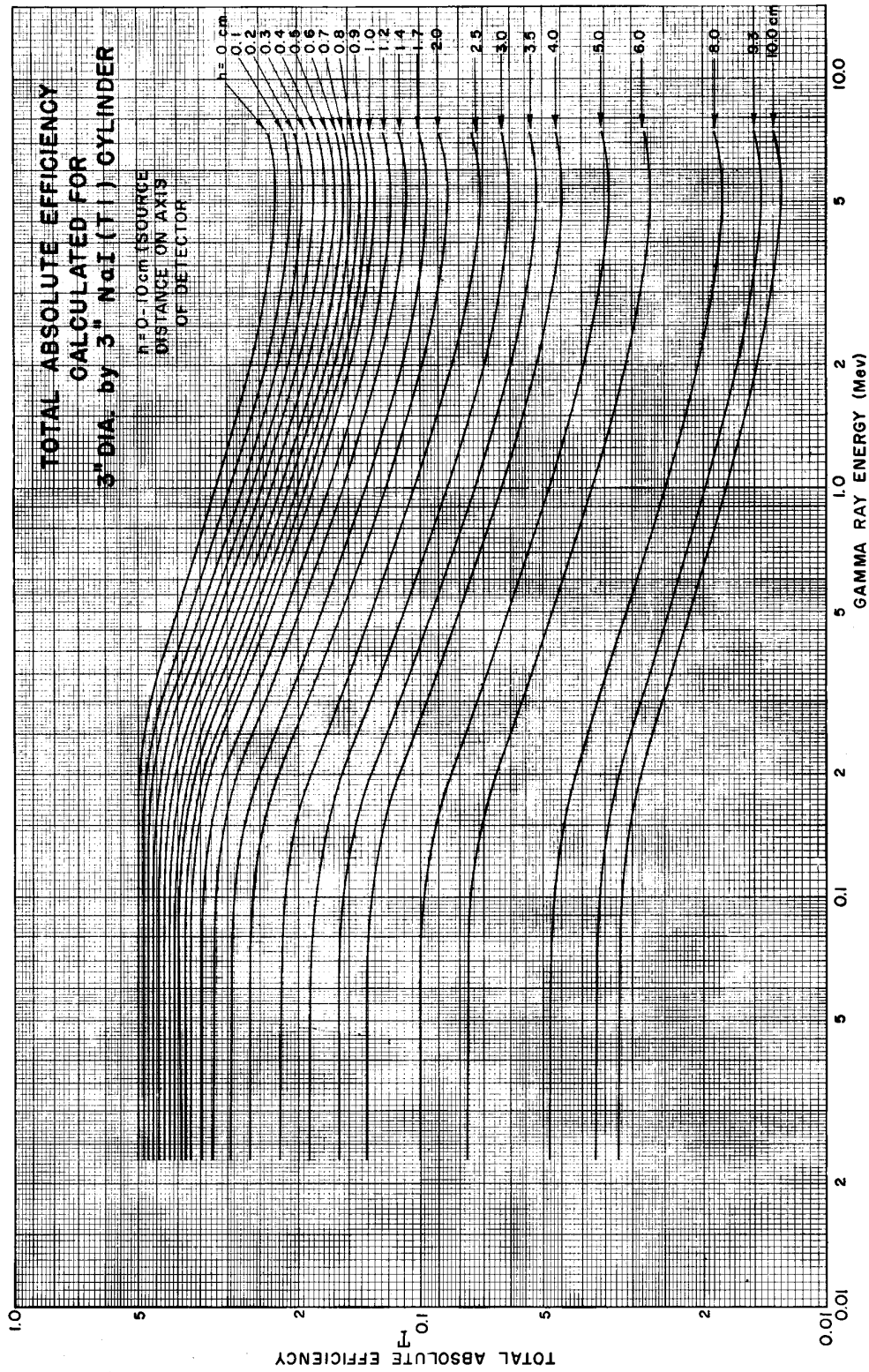


Abbildung 13: Der Wirkungsgrad  $T(E_\gamma)$  eines 3x3-NaI(Tl)-Detektors.

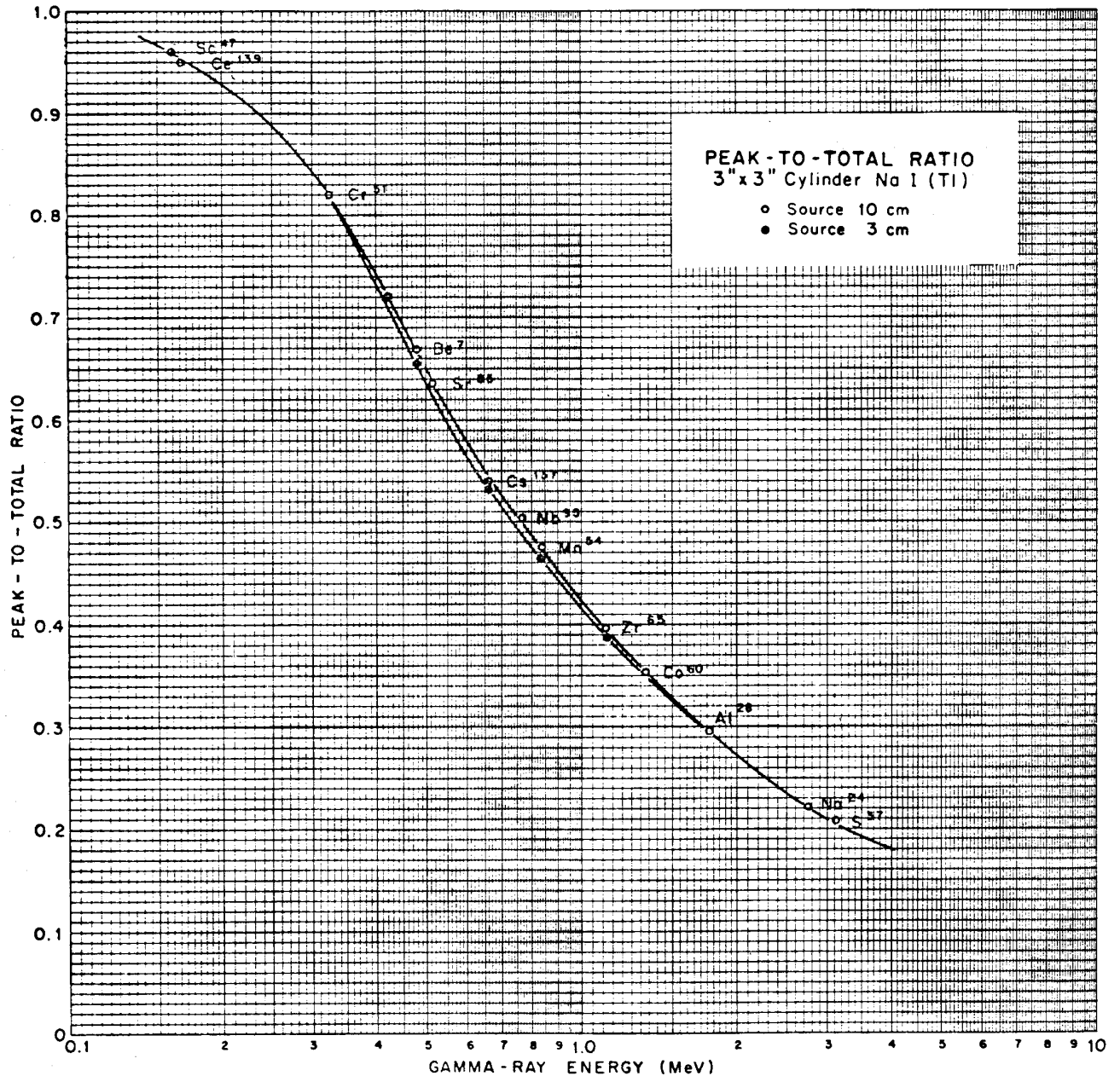


Abbildung 14: Peak-to-Total-Verhältnis  $P(E\gamma)$  für einen 3x3-NaI(Tl)-Detektor.

#### 2.4.1 Durchführung: Kanal-Energiekalibrierung des NaI(Tl)-Detektors mit <sup>137</sup>Cs und <sup>60</sup>Co

Die  $\gamma$ -Spektren der <sup>137</sup>Cs- und der <sup>60</sup>Co-Proben werden im NaI(Tl)-Detektor mit einem Vielkanalanalysator ( $\mu$ -MCA) aufgenommen. Die Messzeit soll jeweils 5 min betragen. Die Lage sämtlicher Peakmaxima und ihre entsprechenden Energien werden bestimmt, um eine Energiekalibrierung durchzuführen. Die  $\gamma$ -Energien werden dazu gegen die Kanäle der Peakmaxima aufgetragen und mit einer Geraden angefitet, die hierzu benötigten Literaturwerte finden sich in Tabelle 3.

**Tabelle 3:** Literaturwerte für die Peakmaxima der  $\gamma$ -Spektren von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ .

Nuklid	Lage des Peakmaximums/keV
$^{137}\text{Cs}$	661
$^{60}\text{Co}$	1173
	1333
	2506 (Summenpeak)

Eventuell kann auch noch der 551 keV-Peak verwendet werden.

#### 2.4.2 Durchführung: Das $\gamma$ -Spektrum von $^{24}\text{Na}$

Mit dem NaI(Tl)-Detektor wird ein  $^{24}\text{Na}$ -Spektrum aufgenommen. Die Messzeit beträgt 5 min. Den im  $^{24}\text{Na}$ -Spektrum beobachteten Peaks werden mittels der Kanal-Energiekalibrierung aus Abschnitt 2.4.1 Energien zugeordnet. Anhand dieser Zuordnung sollen alle Peaks identifiziert werden (s. hierzu Erläuterungen in Abschnitt 2.4). Zusätzlich soll noch die Halbwertsbreite (FWHM: full width at half maximum) der Photopeaks bestimmt werden, um darüber eine Aussage über die Auflösung des Detektors machen zu können.

#### 2.4.3 Durchführung: Der Einfluss der Messgeometrie auf die Form der $\gamma$ -Spektren

Der Versuch wird mit dem  $^{60}\text{Co}$ -Präparat aus Abschnitt 2.4.1 im NaI(Tl)-Detektor durchgeführt. Das  $\gamma$ -Spektrum des  $^{60}\text{Co}$  wird in fünf unterschiedlichen Einschüben des Detektors für jeweils 5 min gemessen.

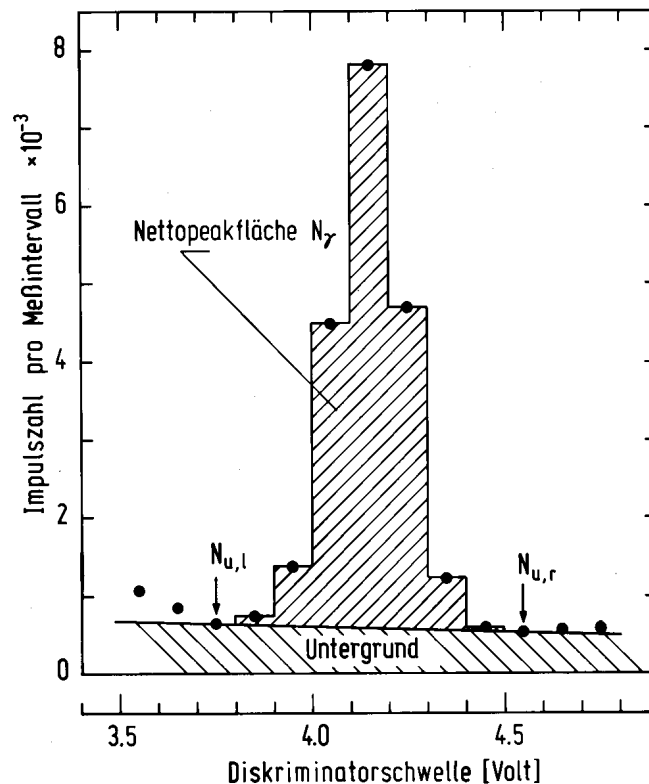
Die  $\gamma$ -Intensitäten  $I_\gamma$  der einzelnen Peaks (entspricht den Peakflächen) werden durch Summation aller Messwerte  $\Delta I/\Delta E$  über den Bereich des jeweiligen Peaks ermittelt. Dabei muss im Normalfall eine Untergrundzählrate abgezogen werden, die im Wesentlichen durch die Comptonverteilung von Peaks höherer Energien hervorgerufen wird. Im Allgemeinen nimmt man an, dass der Untergrund im Bereich des Peaks linear verläuft. Zur Bestimmung der Zählrate dieses Untergrunds benötigt man zumindest je einen Messpunkt links und rechts des Peaks (Impulszahlen  $N_{\text{Ul}}$  und  $N_{\text{Ur}}$ ), wie es in Abbildung 15 dargestellt ist. Die Netto-Peakfläche  $N_\gamma$  wird durch Summation über  $n$  Kanäle und anschließender Subtraktion des als linear angenommenen Untergrundes bestimmt. Die entsprechende Gleichung ist in Formel (43) gezeigt.

$$N_\gamma = \sum_{i=1}^n N_i - \frac{n}{2} \cdot (N_{\text{Ul}} + N_{\text{Ur}}). \quad (43)$$

Hierbei ist  $i$  die Nummer des jeweiligen Kanals. Aus diesem Wert für die Netto-Peakfläche  $N_\gamma$  erhält man durch Dividieren durch die Messzeit  $t$  schließlich die Netto-Zählrate  $I_\gamma$ . Der verwendete Vielkanalanalysator erlaubt es, für jeden einzelnen Peak Integrationsgrenzen zu definieren und vom resultierenden Integral direkt den Untergrund separat zu bestimmen. Man muss dann die Lage des Untergrunds in einem größeren



Energiebereich ermitteln. Das ist wegen der Annahme der Linearität des Untergrunds mit größeren Fehlern verbunden, besonders, wenn in diesem Bereich Comptonkanten vorkommen.



**Abbildung 15:** Graphische Veranschaulichung zur Bestimmung der Netto-Peakfläche in einem  $\gamma$ -Spektrum.

Für die Auswertung wird jeweils der Logarithmus der so bestimmten Peakflächen  $I_\gamma$  der jeweiligen Linien als Funktion des Logarithmus des Abstands von der Detektormitte aufgetragen. Der erste Einschub befindet sich in etwa 4 cm Entfernung von der Detektormitte. Die Steigungen für die drei  $\gamma$ -Linien werden bestimmt und miteinander verglichen.

#### 2.4.4 Durchführung: Absorptionsgesetz für $\gamma$ -Strahlung

Ein  $^{60}\text{Co}$ -Präparat wird in einen Einschub gebracht, der 4 cm von der Detektoroberfläche entfernt ist. Die Zählrate der 1333 keV-Linie wird ohne Absorber und mit zunehmender Schichtdicke von Blei zwischen Präparat und Detektor für jeweils 5 min gemessen. Es werden fünf unterschiedliche Schichtdicken an Blei so gewählt, dass der Bereich bis  $30 \text{ g/cm}^2$  gleichmäßig abgedeckt ist. Daraus wird die Halbwertsdicke  $D_{1/2}$  und Absorptionskoeffizient  $\mu$  von Blei für die 1333 keV  $\gamma$ -Strahlung bestimmt mit Hilfe der Formeln (36) und (37) bestimmt.



### 1. Nachbildung von $^{137m}\text{Ba}$ ( $t_{1/2} = 2.55 \text{ min}$ )

10 Tr.  $\text{Ba}^{2+}$ -Träger + 20 Tr.  $\text{Cs}^+$ -Träger im BG auf 10 ml verdünnen. 1 ml aktive Cs-Lsg. zugeben. Erwärmen, abkühlen, mit wenigen ml 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$   $\text{BaSO}_4$  fällen, jedoch zuvor RG in die Saugflasche stellen, um das Filtrat aufzufangen (vorher testen ob RG in Probenhalter passt). Volumina klein halten, nicht waschen. RG mit Stopfen verschließen und im Handschuh (Schutz vor Kontamination) im NaI-Detektor messen (Messequenz: 50x30 s, dann 2 x 300 s Gleichgewichtszählrate mit Präparat), ZÜGIG ARBEITEN! (Zeitverlust schlimmer als Ausbeuteverlust!).

Auswertung: Peakgrenzen der 662 keV Linie festlegen und Kanäle aufsummieren. Linearen Untergrund annehmen und korrigieren.

### 2. Zerfall des $^{137m}\text{Ba}$

Fällung wie oben durchführen (allerdings ohne RG in der Saugflasche), Niederschlag waschen und trockensaugen. Filter aufkleben, abkleben und am NaI-Detektor (vorbereiten! Messequenz wie oben) messen. Dazu das Präparat mit Al-Träger zum Detektor hin einsetzen, um  $\beta$ -Strahlung des  $^{137}\text{Cs}$  abzuschirmen. ZÜGIG ARBEITEN!.

Auswertung:  $t_{1/2}$  des  $^{137m}\text{Ba}$  aus beiden Versuchen bestimmen. Untergrund abziehen. Peakflächen gegen  $t$  (Mitte des Zeitintervalls) auftragen.

ENTSORGUNG: Niederschlag in  $\beta$ -kurz, Filtrate in die Abfallkanister.

### 3.1. Kanal-Energiekalibrierung mit $^{137}\text{Cs}$ und $^{60}\text{Co}$

Präparat mit der Al-Seite zum Detektor einsetzen, um  $\beta$ -Strahlung zu absorbieren. Jeweils 5 min messen. Kanäle der Peakmaxima bestimmen. Kanal-Energiekalibrierung mit PP von  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und evtl. 511 keV-Linie durchführen.

### 3.2. Das $\gamma$ -Spektrum von $^{24}\text{Na}$

Die Linien im Spektrum des  $^{24}\text{Na}$  identifizieren (5 min messen). FWHM der PP und damit die Auflösung des NaI-Detektors angeben.

### 4. Einfluss der Messgeometrie

Das  $\gamma$ -Spektrum des  $^{60}\text{Co}$  in 5 weiteren Einschüben messen (jeweils 5 min).  $\log I$ , der drei Linien gegen den  $\log$  des Abstands von der Detektormitte (Distanz zum Detektorfester + 4 cm) auftragen. Die sich ergebenden Steigungen vergleichen. Falls  $f(x) \sim x^n$  gegeben, liefert  $\log(f(x)) \sim n \cdot \log(x)$  eine Gerade mit der Steigung  $n$ .

### 5. Das Absorptionsgesetz für $\gamma$ -Strahlung

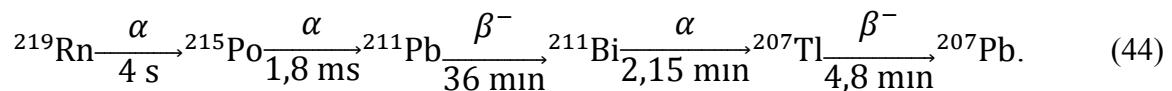
Ein  $^{60}\text{Co}$ -Präparat im Einschub 4 cm von der Detektoroberfläche entfernt messen. Die Zählrate der Linie bei 1333 keV ohne Absorber und mit zunehmender Schichtdicke Pb zwischen Präparat und Detektor messen. Den Bereich bis 30  $\text{g}/\text{cm}^2$  mit 5 Messpunkten gleichmäßig belegen. Messzeit an die Zählrate anpassen (5 min).

Auswertung: Halbwertsdicke von Blei für die 1333 keV-Linie und Absorptionskoeffizient bestimmen.

### 3. Untersuchung von Zerfall und Nachbildung der Folgeprodukte von $^{219}\text{Rn}$

Literatur: Keller, S. 7-23, 47-49, 70-72, 90-93, 134-135  
Lieser, S. 107-111  
Friedlander, S. 8-10

$^{219}\text{Rn}$  (historischer Name: Actinon) tritt in der Zerfallsreihe mit  $A = 4n + 3$  (Actinium-Zerfallsreihe) auf, deren schwerstes und langlebigstes Nuklid das  $^{235}\text{U}$  ist (siehe Abbildung 16).  $^{219}\text{Rn}$  kann leicht aus einem  $^{231}\text{Pa}$ -Präparat gewonnen werden, das an  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  mitgefällt wurde. Bei Aufbewahrung in feuchter Atmosphäre besitzt dieses Präparat ein gutes Emaniervermögen, d. h. es setzt einen großen Teil des radioaktiven Edelgases frei, obwohl dieses eine kurze Halbwertszeit besitzt. Das  $^{219}\text{Rn}$  zerfällt wie in Formel (44) gezeigt über mehrere radioaktive Zwischenprodukte in das stabile  $^{207}\text{Pb}$ .



Das bei dem  $\alpha$ -Zerfall von  $^{219}\text{Rn}$  entstehende  $^{215}\text{Po}$  hat eine Rückstoßenergie von etwa 100 keV. Auf diese Weise können in einer Radon-Atmosphäre Atome des  $^{215}\text{Po}$  in ein Nickelblech implantiert werden. Die Polonium-Atome zerfallen wegen ihrer kurzen Halbwertszeit praktisch sofort in  $^{211}\text{Pb}$ . Nach 36 min Expositionszeit ( $t_{1/2}$  von  $^{211}\text{Pb}$ ) erreicht die Aktivität des  $^{211}\text{Pb}$  und seiner kurzlebigeren Folgeprodukte auf dem Ni-Blech 50 % der Sättigungsaktivität.

#### 3.1 Nachweis von $\alpha$ -Strahlung

##### 3.1.1 Proportionalzähler

Zum Nachweis von  $\alpha$ -Strahlung werden oft Proportionalzählrohre verwendet, die ähnlich wie Geiger-Müller-Zählrohre aufgebaut sind. Die Spannung zwischen den Elektroden eines Proportionalzählrohres ist so gewählt, dass die Zahl der durch primäre und sekundäre Ionisation gebildeten Elektronen eindeutig von der Energie und der Ordnungszahl des einfallenden Teilchens abhängen; die Zähler arbeiten im Proportionalbereich. Beim Geiger-Müller-Zählrohr hingegen ist die elektrische Feldstärke im Elektrodenbereich so groß, dass unabhängig von der Energie und der Ordnungszahl des einfallenden Teilchens und damit auch unabhängig von der Zahl der primär erzeugten Elektronen eine Lawine von etwa  $10^8$  Sekundärelektronen entsteht. Wegen der großen Ionisierungsdichte der  $\alpha$ -Teilchen genügt zu deren Nachweis eine Spannung, die niedriger ist als die Einsatzspannung zum Nachweis von  $\beta$ -Strahlung. Weiterhin muss das Eintrittsfenster des Zählers möglichst dünn sein, um Absorption oder Energieverluste der  $\alpha$ -Teilchen gering zu halten.

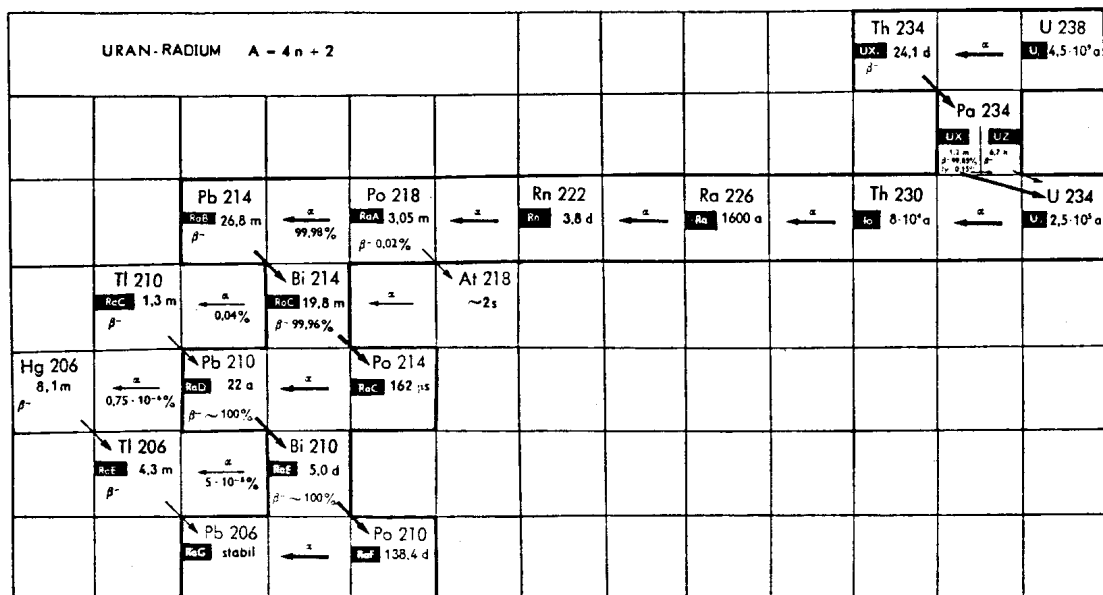
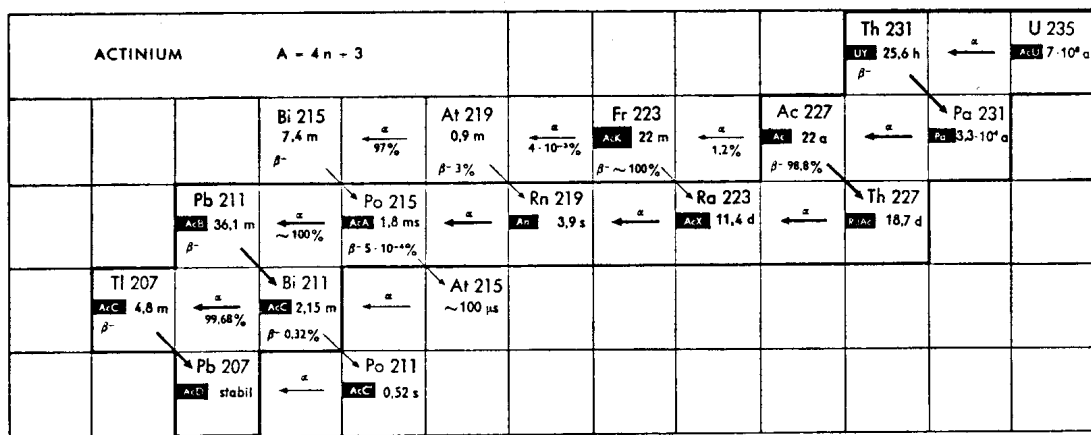
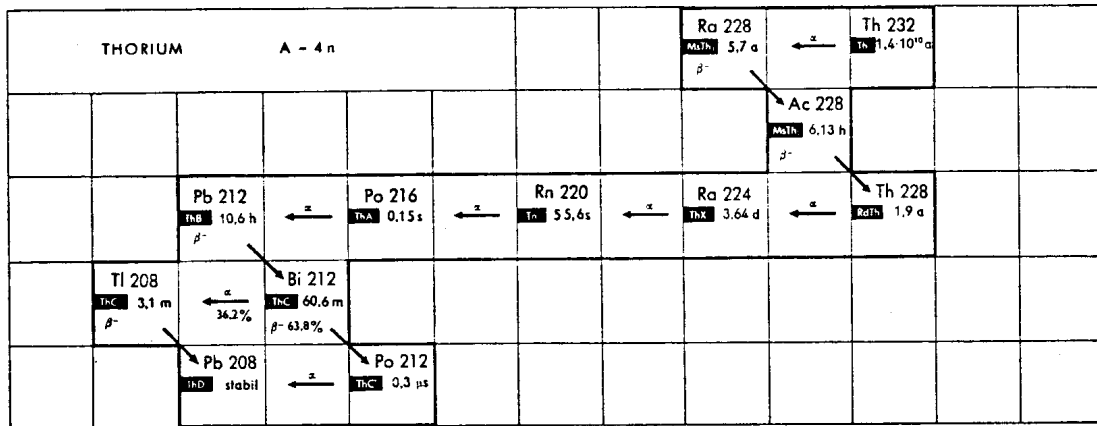


Abbildung 16: Die natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen.

### 3.1.2 Oberflächensperrschicht-Zähler

Oberflächensperrschichtzähler (OSZ) werden häufig als  $\alpha$ -Detektoren eingesetzt. Sie gehören zur Klasse der Halbleiterdetektoren. Auf ein  $n$ -leitendes (Elektronen-Leitung) Material (meist  $n$ -Silizium) wird auf einer Seite eine sehr dünne Metallschicht (Gold) aufgedampft. Auf dieser Seite wird zuvor durch Anätzen und anschließende Oxidation eine dünne  $p$ -leitende (Löcher-Leitung) Oxidschicht erzeugt. In dem Gebiet, wo sich  $p$ - und  $n$ -Schicht berühren, entsteht durch Kompensation eine ladungsträgerfreie Zone, die Sperrschicht, deren Ausdehnung durch Anlegen einer Spannung beeinflusst werden kann. Beim Eintritt ionisierender Strahlung werden in der Sperrschicht Ladungsträger freigesetzt; die Sperrschicht wirkt daher wie eine Ionisierungskammer oder ein Proportionalzähler.

Ein Vorteil dieser Detektoren ist ihr extrem dünnes Eintrittsfenster (ca.  $3 \cdot 10^{-2} \mu\text{m Au}$ ), in dem einfallende Teilchen nur wenig Energie verlieren. Ein Nachteil ist die Empfindlichkeit dieser Detektoren gegen Lichteinfall. Die Energie des Tageslichts von ca. 2-4 eV genügt, um die Energielücke im Halbleiter, die nur 1,1 eV beträgt, zu überwinden und ein Rauschen hervorzurufen.

Um die Energieauflösung des Detektors möglichst gut auszunutzen, sind folgende Punkte zu beachten:

1. Bei der  $\alpha$ -Spektroskopie werden wegen der großen Wechselwirkung der  $\alpha$ -Teilchen mit Materie hohe Anforderungen an die Präparate gestellt. Dicke Präparate, z.B. Niederschläge, haben eine hohe Selbstabsorption, die zu einer starken Energieverschmutzung führt. Ideal sind elektrochemisch hergestellte Proben, die eine dünne Oberfläche haben.
2. Da Stöße der  $\alpha$ -Teilchen mit Luftmolekülen zu Energieverlusten und damit zu einer Verschlechterung der Auflösung führen, werden die Messungen im Vakuum durchgeführt.

## 3.2 Versuche

Für die Versuche aus Abschnitten 3.2.1, 3.2.2 und ??? wird die Aktivität von den Praktikums-Assistenten hergestellt. Hierfür wird ein Nickelblech ca. 30 min auf eine  $^{231}\text{Pa}$ -Quelle gelegt. Es wird dabei wie in der Einleitung zu Abschnitt 3 beschrieben  $^{215}\text{Po}$  in das Ni-Blech implementiert. Nach dem Ende der Bestrahlung wird das Blech zweimal für wenige Minuten in je ca. 15 mL 0,1 N HCl zum Sieden erhitzt. Hierbei gehen  $^{211}\text{Pb}$  und  $^{207}\text{Tl}$  in Lösung, das  $^{211}\text{Bi}$  bleibt am Blech haften. Die so erzeugte Aktivität wird dann in Reagenzgläsern ausgegeben. Für die in Abschnitt 3.2.2 und 3.2.4 beschriebenen Versuche muss die Lösung 10-15 min altern gelassen werden, um die Nachbildung des  $^{211}\text{Bi}$  abzuwarten, für Versuch 3.2.1 muss die Lösung möglichst zeitnah verwendet werden.

### 3.2.1 Durchführung: Nachbildung von $^{211}\text{Bi}$ aus $^{211}\text{Pb}$ ( $\alpha$ -Zählung)

#### Herstellung des Präparats

$^{211}\text{Pb}$  wird als  $\text{PbSO}_4$  aus der Lösung abgetrennt. Da  $\text{PbSO}_4$  nur schlecht ausfällt, andererseits aber schnell gearbeitet werden muss, ist es notwendig, inaktive  $\text{PbSO}_4$ -Kristallkeime vorzugeben. Die Fällung muss bei Raumtemperatur erfolgen.

Die aktive Blei-Lösung wird in einem Becherglas mit 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$ -Träger versetzt. In ein zweites Becherglas werden ebenfalls 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$ -Träger gegeben, mit 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  und 1 ml 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  versetzt. Sobald deutlich sichtbar  $\text{PbSO}_4$  ausgefallen ist, wird die inaktive Lösung mitsamt dem Niederschlag zur aktiven Lösung gegeben.

Durch kräftiges Umschwenken werden die Lösungen gemischt. Nach etwa 10 s wird die Lösung über einen Membranfilter gesaugt. Der noch feuchte Filter wird mit einer Klebeschleife auf einem Präparateträger fixiert und gemessen.

#### Messung und Auswertung

Die Messung erfolgt im Proportionalzähler mit Messintervallen von 30 s. Über einen Zeitraum von 50 min wird die Nachbildung von  $^{211}\text{Bi}$  verfolgt. Daraus werden die Halbwertszeiten von  $^{211}\text{Pb}$  und  $^{211}\text{Bi}$  bestimmt.

### 3.2.2 Durchführung: Nachbildung von $^{207}\text{Tl}$ aus $^{211}\text{Bi}$ ( $\beta$ -Zählung)

#### Herstellung des Präparats

Nach etwa 10 min Wartezeit, wenn genügend  $^{211}\text{Bi}$  nachgebildet wurde, wird die erhaltene radioaktive Lösung mit 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$  als Rückhalteträger und 10 mL Wasser versetzt und nahezu bis zum Sieden erhitzt (in einem 100 mL Becherglas). Ein rundes Ni-Blech wird in die Lösung gegeben und die Lösung zwei Minuten lang zum Sieden erhitzt (dabei sollte das Blech in der Lösung bewegt werden). Während dieser Zeit wird ein Teil des  $^{211}\text{Bi}$  elektrochemisch auf dem Blech abgeschieden. Um die Abscheidung des  $^{211}\text{Bi}$  zu ermöglichen, muss eine eventuell an dem Blech haftende Oxidationsschicht vorher mit konz.  $\text{HCl}$  abgeätzt werden. Der  $\text{Pb}^{2+}$ -Rückhalteträger soll verhindern, dass ein großer Teil des trägerfreien  $^{211}\text{Pb}$  am Nickelblech anhaftet. Um anhaftende Lösung zu beseitigen, wird das Ni-Blech kurz in 0,1 N  $\text{HCl}$  geschwenkt und anschließend mit viel  $\text{H}_2\text{O}$  abgespült. Das Blech wird auf einen mit Tesa umwickelten Präparateträger gelegt, mit einer weiteren Schicht Tesa fixiert und mit dem Geiger-Müller-Zählrohr gemessen.

#### Messung und Auswertung

Es werden 30 x 30 s, 20 x 60 s und 3 x 5 min gemessen. Die letzten beiden Messungen dienen der Bestimmung des Untergrunds. Da die  $\alpha$ -Strahlung des  $^{211}\text{Bi}$  von der Klebefolie (Massenbelegung ca. 7,5 mg/cm<sup>2</sup>) absorbiert wird, sollte die reine Nachbildungskurve des  $^{207}\text{Tl}$  von Null ansteigen

Aus der Nachbildungskurve werden die Halbwertszeiten von  $^{211}\text{Bi}$  und  $^{207}\text{Tl}$  bestimmt. Eine Verunreinigung des Ni-Blechs durch  $^{211}\text{Pb}$  macht sich nach etwa 25 min durch ein allmähliches Einschwenken der Zählrate in einen langlebigen Untergrund bemerkbar, der mit 36 min Halbwertszeit abfällt. Die Höhe dieses Untergrunds wird durch die 5 min Messungen bestimmt.

Nach Abzug des Nulleffekts wird der Untergrund mit  $t_{1/2} = 36$  min auf  $t = 0$  zurück extrapoliert. Der jeweilige Beitrag durch das  $^{211}\text{Pb}$  wird von allen Messpunkten subtrahiert, bevor mit der Analyse der Nachbildungskurve des  $^{207}\text{Tl}$  begonnen wird.

### 3.2.3 Durchführung: Kalibrationsmessung am OSZ

Um das im folgenden Versuchsteil 3.2.4 erhaltene  $\alpha$ -Spektrum von  $^{211}\text{Bi}$  auswerten zu können, muss zunächst eine Kanal-Energiekalibrierung des Oberflächensperrschichtzählers durchgeführt werden. Hierzu werden  $\alpha$ -Spektren von  $^{148}\text{Gd}$  ( $E_\alpha = 3,183$  MeV) und  $^{241}\text{Am}$  ( $E_\alpha = 5,486$  MeV) aufgenommen (Messzeit jeweils 5 min). Die Maxima der Peaks werden bestimmt und diese gegen die Energie aufgetragen. Eine Fit-Gerade durch die beiden Punkte liefert die benötigte Kanal-Energiekalibrierung.

### 3.2.4 Durchführung: Zerfall von $^{211}\text{Bi}$ ( $\alpha$ -Messung am OSZ)

#### Herstellung des Präparats

Es wird analog zu Versuch 3.2.2  $^{211}\text{Bi}$  auf einem runden Ni-Blech abgeschieden.

#### Messung und Auswertung

Das Präparat wird ohne Abdeckung auf einem speziellen Präparteträger mit dem Oberflächensperrschichtzähler 40 x 30 s und 2 x 300 s gemessen. Aus der Zerfallskurve wird die Halbwertszeit von  $^{211}\text{Bi}$  bestimmt. Für eine eventuell auftretende Verunreinigung durch  $^{211}\text{Pb}$  muss wie in Abschnitt 3.2.2 korrigiert werden.

#### $\alpha$ -Spektrum von $^{211}\text{Bi}$

Parallel zur Bestimmung der Halbwertszeit von  $^{211}\text{Bi}$  wird dessen  $\alpha$ -Spektrum ( $E_{\alpha,1} = 6,279$  und  $E_{\alpha,2} = 6,623$  MeV) mit dem Oberflächensperrschichtzähler und einem Vielkanalanalysator (vgl. Abschnitt 2.4) aufgenommen. Zur besseren Auswertbarkeit werden die ersten 10 erhaltenen Spektren aufsummiert. Die Lage der Peakmaxima, die zugehörigen  $\alpha$ -Energien und die Peakflächen werden bestimmt. Daraus erhält man das Verzweungsverhältnis der beiden  $\alpha$ -Übergänge, die in den Grundzustand und in einen angeregten Zustand des Tochterkerns  $^{207}\text{Tl}$  führen.

Neben den bereits bestimmten  $\alpha$ -Linien von  $^{211}\text{Bi}$  taucht eine weitere Linie bei höherer Energie auf. Von welchem Nuklid wird das entsprechende  $\alpha$ -Teilchen emittiert? Es soll die Intensität dieser Linie relativ zu der Summe der Intensitäten der beiden  $^{211}\text{Bi}$ -Linien bestimmt werden.

### 3.2.5 Durchführung: Zerfall von $^{207}\text{Tl}$ -Rückstoß-Atomen ( $\beta$ -Zählung)

Über Nacht wurde eine Glasplatte auf der  $^{219}\text{Rn}$ -Quelle exponiert. Dabei wird  $^{215}\text{Po}$  implementiert und er enthält auf seiner Oberfläche nach etwa 22 min Wartezeit  $^{211}\text{Pb}$  im laufenden Gleichgewicht mit dessen Folgeprodukt  $^{211}\text{Bi}$ . Entfernt man den Objektträger morgens von der  $^{219}\text{Rn}$ -Quelle, so fällt die Gleichgewichtsaktivität wegen  $t_{1/2,1} > t_{1/2,2}$  mit der Halbwertszeit des  $^{211}\text{Pb}$  ab. Für den Versuch wird nacheinander von jeder Gruppe eine weitere

Glasplatte auf die erste, bestrahlte Glasplatte gelegt. Die beim  $\alpha$ -Zerfall des  $^{211}\text{Bi}$  entstehenden  $^{207}\text{Tl}$ -Atome gelangen durch Rückstoß in diese zweite Glasplatte. Die Rückstoßenergie  $E_R$  des  $^{207}\text{Tl}$  berechnet sich mit Hilfe der Massen eines  $\alpha$ -Teilchen  $m_\alpha$  und eines Tl-Atoms  $m_{\text{Tl}}$  nach Formel (45).

$$E_R = E_\alpha \cdot \frac{m_\alpha}{m_{\text{Tl}}} = 6,62 \text{ MeV} \cdot \frac{4 \text{ u}}{207 \text{ u}} = 0,128 \text{ MeV}. \quad (45)$$

### Messung und Auswertung

Die Glasplatte wird nach genau 5 min Expositionszeit unter das Geiger-Müller-Zählrohr gebracht. Die Messung soll in einem Einschub erfolgen, in dem das Uran-Standardpräparat (s. Versuch 3.2.6) gemessen werden kann. Aus der Zerfallskurve werden Halbwertszeit und Anfangszählrate  $I_0$  des  $^{207}\text{Tl}$  ( $t=0$  ist Ende der Expositionszeit) bestimmt. Bei geringen Zählraten muss der Nulleffekt abgezogen werden.

### 3.2.6 Durchführung: Indirekte Bestimmung der Halbwertszeit von $^{211}\text{Pb}$ durch Abmelken von $^{207}\text{Tl}$

#### Gemeinsame Auswertung von Versuch 3.2.5

Versuch 3.2.5 wird nacheinander in Abständen von etwa 30 min jeweils von einer anderen Gruppe ausgeführt, wobei als Quelle der  $^{207}\text{Tl}$ -Rückstoßatome stets dieselbe erste Glasplatte benutzt wird („Abmelken“ von  $^{207}\text{Tl}$ ). Es wird jeweils die Uhrzeit zu Beginn der Exposition notiert. Hierbei muss darauf geachtet werden, dass alle Gruppen dieselbe Uhr verwenden. Da das Ergebnis jeder Gruppe für die jeweilige Anfangszählrate  $I_0$  von  $^{207}\text{Tl}$  benutzt werden soll, die Messbedingungen und Detektoren aber unterschiedlich sind, muss eine Normierung durchgeführt werden. Dazu wird der Uran-Standard von Tag 1 der Gruppe 1 im gleichen Einschub wie die Glasplatte gemessen. Die korrigierte Anfangszählrate  $I_{0,\text{korr}}$  wird dann von jeder Gruppe nach Formel ??? berechnet.

$$I_{0,\text{korr}} = I_0 \cdot \frac{I(\text{Std.Gr.1 in GMZ 1})}{I(\text{Std.Gr.1 in GMZ } x)}. \quad (46)$$

Die normierten Anfangszählraten  $I_{0,\text{korr}}$  des  $^{207}\text{Tl}$  werden halblogarithmisch gegen den mittleren Zeitpunkt der Exposition aufgetragen. Diese Zählraten fallen, da  $^{207}\text{Tl}$  aus dem laufenden Gleichgewicht  $^{211}\text{Pb} \rightarrow ^{211}\text{Bi} \rightarrow ^{207}\text{Tl}$  abgemolken wurde, mit der Halbwertszeit des  $^{211}\text{Pb}$  ab.





### 1. Nachbildung von $^{211}\text{Bi}$ aus $^{211}\text{Pb}$ ( $\alpha$ -Messung)

In zwei BG ansetzen:

- 1.) 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$ -Träger und aktive Lösung (steht im RG aus)
- 2.) 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$ -Träger + 10 ml Wasser + 1 ml 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

Bei RT Bleisulfat fällen. Sobald der Niederschlag deutlich sichtbar ist, Inhalte der beiden BG vereinigen. **Ab jetzt zügig arbeiten.** Nach ca. 10 s Mischen, über MF absaugen, feucht auf einen abgeklebten Präparateträger kleben (Klebeschleufe; Präparat **nicht** abkleben) und am Proportionalzähler 100 x 30 s messen. Auswertung: Die HWZen beider Komponenten bestimmen.

### 2. Nachbildung von $^{207}\text{Tl}$ aus $^{211}\text{Bi}$

Aktivität (wie in Versuch 1) + 2 mg  $\text{Pb}^{2+}$ -Träger + 5 ml Wasser im 100 ml BG (wegen Siedeverzug!) erhitzen. In der Siedehitze **rundes** Ni-Blech (vorher kurz mit konz. HCl waschen) **höchstens** 2 min lang in der Lösung bewegen.  $^{211}\text{Bi}$  scheidet sich durch Redoxreaktion auf dem Ni ab. Blech mit wenig 0,1 N HCl und Wasser spülen, auf abgeklebtem Präparateträger mit Tesa fixieren und im GMZ messen: 30x30 s, 20x60 s, 3x300 s (Untergrund). Auswertung: Sinnvolle UG-Korrektur ( $I(t)$  des langlebigen Pb rekonstruieren); HWZen beider Komponenten bestimmen.

### 3. Kalibrationsmessung am OSZ

Standards,  $^{148}\text{Gd}$  ( $E_\alpha = 3,183 \text{ MeV}$ ) und  $^{241}\text{Am}$  ( $E_\alpha = 5,486 \text{ MeV}$ ) unter den Detektor bringen und 5 min messen. **Auswertung:** Peakmaxima bestimmen und gegen die Energie auftragen → Kanal-Energiekalibrierung.

### 4. Zerfall von $^{211}\text{Bi}$ : $\alpha$ -Messung am OSZ

$^{211}\text{Bi}$  wie in Versuch 2 auf Ni-Blech abscheiden. Blech **unbedeckt** auf einem abgeklebten Präparateträger möglichst dicht vor den OSZ legen. Messung: 40x30 s, 2x5 min (Untergrund). Zugleich  $\alpha$ -Spektrum von  $^{211}\text{Bi}$  aufnehmen. Auswertung:  $\alpha$ -Energien, FWHM, die relativen Intensitäten, und HWZ der Gesamtaktivität bestimmen. Zur besseren Auswertung 10 Spektren aufsummieren. Woher stammt der Peak bei der höchsten  $\alpha$ -Energie? Bestimme das Verzweigungsverhältnis.

### 5. Zerfall von $^{207}\text{Tl}$

In einen Objektträger wurde über Nacht  $^{215}\text{Po}$  implantiert. Eine saubere Glasplatte exakt 5 min auf diesen OT legen. Beim Herunternehmen Stoppuhr starten ( $t = 0$ ), **Uhrzeit notieren** (Telefon). Im GMZ messen: 54x30 s im 2. Einschub (Std. muss reinpassen). Auswertung: Nach dem Abziehen des Nulleffekts HWZ bestimmen. Auf Zählrate  $I_0$  bei Bestrahlungsende zurückextrapolieren.

### 6. Indirekte HWZ-Bestimmung von $^{211}\text{Pb}$ durch Abmelken von $^{207}\text{Tl}$

Normierung der extrapolierten Anfangszählraten  $I_0$  aus V5 auf Detektor der Gruppe 1:

$$I_{0,\text{kor}} = I_0 \cdot \frac{I(\text{Std. Gr. 1 in GMZ 1})}{I(\text{Std. Gr. 1 in GMZ } x)}$$

Halblogarithmische Auftragung der normierten Anfangszählraten des  $^{207}\text{Tl}$  gegen mittleren Zeitpunkt der Exposition. Zählraten fallen mit der HWZ des  $^{211}\text{Pb}$  ab.

## 4. Biologische Strahlenwirkung und Strahlenschutz

Dieser Tag wird von der Strahlenschutzgruppe des Instituts für Kernchemie organisiert. Ein Skript zu diesem Versuchstag wird am entsprechenden Praktikumstag von den verantwortlichen Betreuern ausgegeben.

## 5. Positronen-Emissions-Tomographie (PET)

### 5.1 Grundlagen

#### 5.1.1 Nuklearmedizinisch relevante Radionuklide

Die Anwendung von Radionukliden in der Medizin umfasst weitestgehend zwei große Teilgebiete. Zum einen wird durch die Nutzung der Zerfallsparameter bestimmter Nuklide die Diagnose verschiedener Erkrankungen ermöglicht. Hier haben sich bis heute vor allem die Single-Photon-Emissions-Tomographie (SPET) und die Positronen-Emissions-Tomographie (PET) in der nuklearmedizinischen Routine etabliert. Zum anderen kann die hohe Energie von Kernumwandlungen, die mit Teilchenemissionen verknüpft sind, therapeutisch genutzt werden. Gerade im Bereich der kurativen als auch der palliativen Behandlungen unterschiedlichster Tumor-Arten ist die Entwicklung neuer, therapiefähiger Radiopharmaka zentraler Bestandteil chemischer, pharmazeutischer und medizinischer Forschung.

Am Anfang all dieser Entwicklungen steht die Auswahl des geeigneten Radionuklids. Sowohl für diagnostische als auch therapeutische Anwendungen kann für eine spezielle Anwendung das „maßgeschneiderte“ Radionuklid gefunden werden. In Tabelle 4 sind verschiedene nuklearmedizinisch relevante Radionuklide zusammengefasst. Aus dieser Tabelle sind die Anforderungen an die Zerfallsparameter direkt ablesbar.

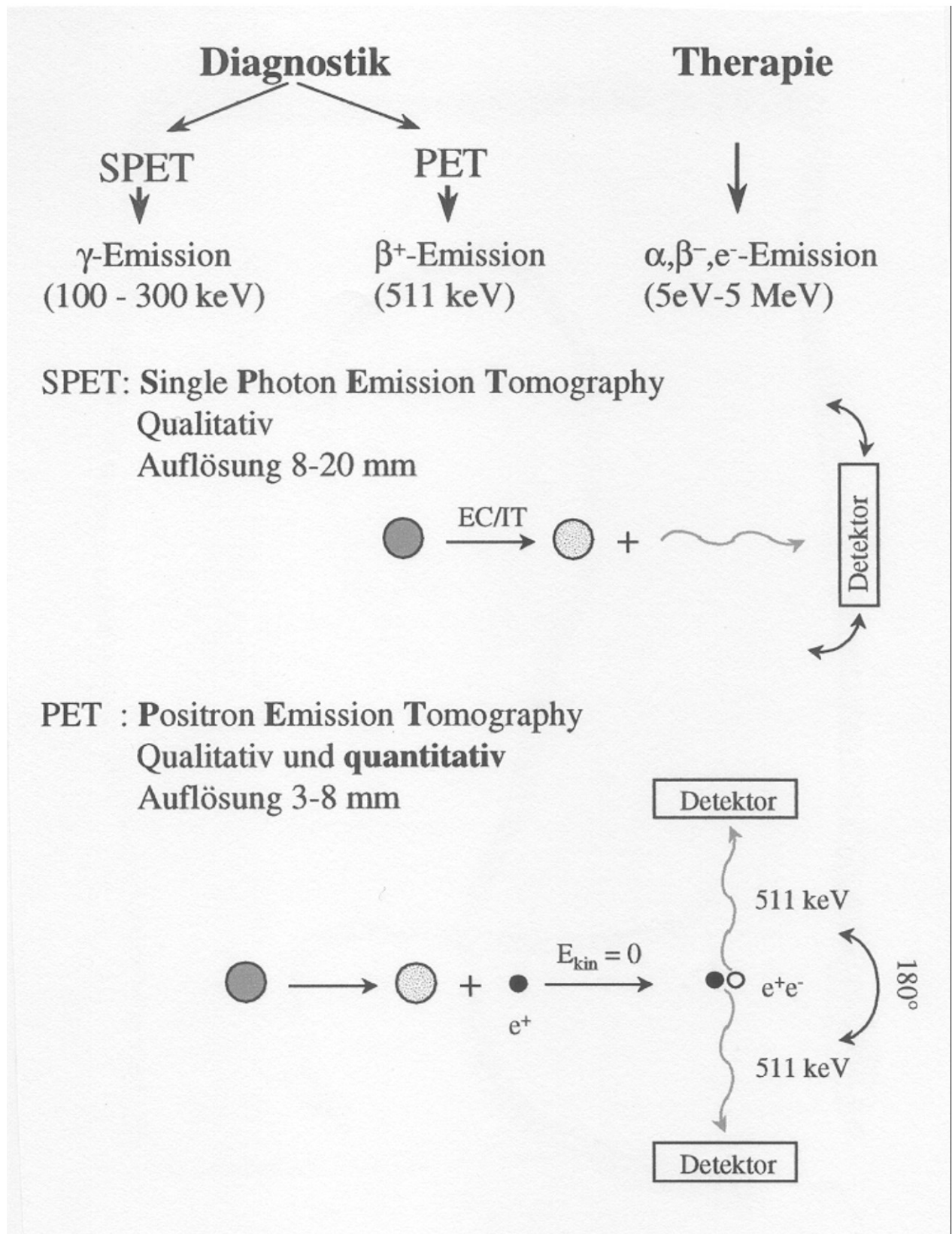
**Tabelle 4:** Radionuklide für die Diagnostik und Therapie.

Nuklid	Halbwertszeit $t_{1/2}$	Zerfallsart (Häufigkeit/%)	$E_{\beta, \max}/\text{keV}$	Hauptlinie/keV (%)
$^{11}\text{C}$	20,4 min	$\beta^+$ (99,8)	960	511 (199,6)
$^{13}\text{N}$	9,96 min	$\beta^+$ (100)	1190	511 (200)
$^{15}\text{O}$	2,03 min	$\beta^+$ (99,9)	1723	511 (199,8)
$^{18}\text{F}$	109,7 min	$\beta^+$ (96,9)	635	511 (193,8)
$^{52}\text{Cu}$	9,7 min	$\beta^+$ (98)	2930	511 (196)
$^{58}\text{Ga}$	68,3 min	$\beta^+$ (90)	1900	511 (176); 1077 (3)
$^{86}\text{Y}$	14,7 h	$\beta^+$ (34)	1200	511 (68); 1077; 628
$^{94}\text{Tc}$	4,88 h	$\beta^+$ (11)	820	511 (22); 871; 702
$^{124}\text{I}$	4,2 d	$\beta^+$ (25)	2140	511 (50); 603

Die Prinzipien der nuklearmedizinischen Diagnostik sind in Abbildung 17 dargestellt. Die wichtigsten Punkte hierbei sind:

1. Die Positronen-Emissions-Tomographie nutzt die Annihilationsstrahlung eines Positrons ( $\beta^+$ ). Diese Strahlung resultiert aus der Vernichtung eines Positrons mit dem komplementären Elektron durch Aussendung zweier  $\gamma$ -Strahlen unter einem Winkel von  $180^\circ$ . Durch  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenz kann die winkelabhängige Emission zur Bestimmung ortsabhängiger Aktivitätsverteilungen genutzt werden. Die Aktivitätsverteilung mit Ortsauflösungen von 3-8 mm kann anschließend rechnerisch zur Bildgebung als auch zur Quantifizierung von Aktivitätsakkumulation genutzt werden.

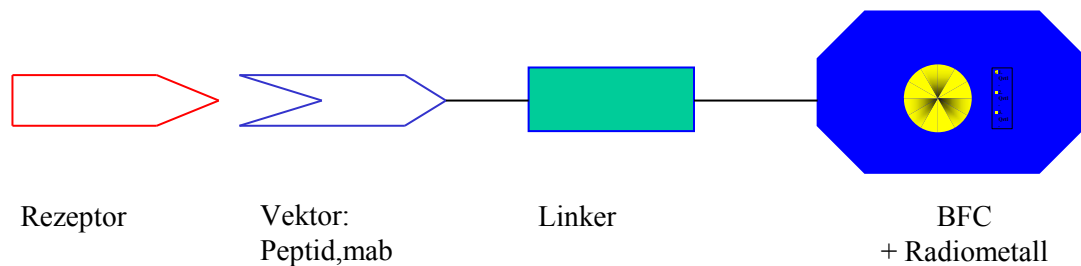
2. Die Single-Photon-Emissions-Tomographie nutzt die  $\gamma$ -Emission bei Elektroneneinfang-Kernumwandlungen (EC) bzw. isomeren Umwandlungen (I.T.). Die daraus resultierenden  $\gamma$ -Strahlen sollten eine Energie von 100-300 keV besitzen, da in diesem Bereich die größte Ansprechwahrscheinlichkeit der verwendeten Detektor-Systeme liegt. Die  $\gamma$ -Emission ist jedoch bei den SPET-Nukliden nicht winkelabhängig. Quantifizierung als auch Ortsauflösung sind entsprechend schlechter rechnerisch anzupassen. SPET-Tomographen neuerer Bauart sind mit rotierenden Detektoren ausgestattet, die eine semi-quantitative Berechnung der Aktivitätsanreicherung erlauben.
3. Der therapeutische Nutzen eines Radionuklids wird in erster Linie durch die Energie der emittierten Teilchen, die Halbwertszeit und die begleitende  $\gamma$ -Strahlung bestimmt. Die Auswahl des Radionuklids erfolgt durch Kombination der biologischen Halbwertszeit eines Radiopharmakons mit der physikalischen Halbwertszeit des Radionuklids, die Größe des Zielgewebes und den daraus resultierenden dosimetrischen Berechnungen.



**Abbildung 17:** Prinzipielle Verfahren in der nuklearmedizinischen Diagnostik.

## Tumortargeting - Somatostatinanaloga in der molekularen Bildgebung und Endoradiotherapie

Es existieren viele interessante biologische „Targets“ für Radiopharmaka. Rezeptoren auf den Oberflächen von Tumorzellen erlauben es, selektiv die Zellen zu identifizieren, die spezifische Transmembranrezeptoren überexprimieren. Die Biomoleküle, die an diesen Strukturen spezifisch binden, können sowohl Antikörper, Antikörperfragmente oder auch Peptide sein. Peptide mit 3-50 Aminosäuren werden immer häufiger als Vektoren in der Endoradiotherapie (ERT) eingesetzt, da viele Tumore Peptidrezeptoren überexprimieren.

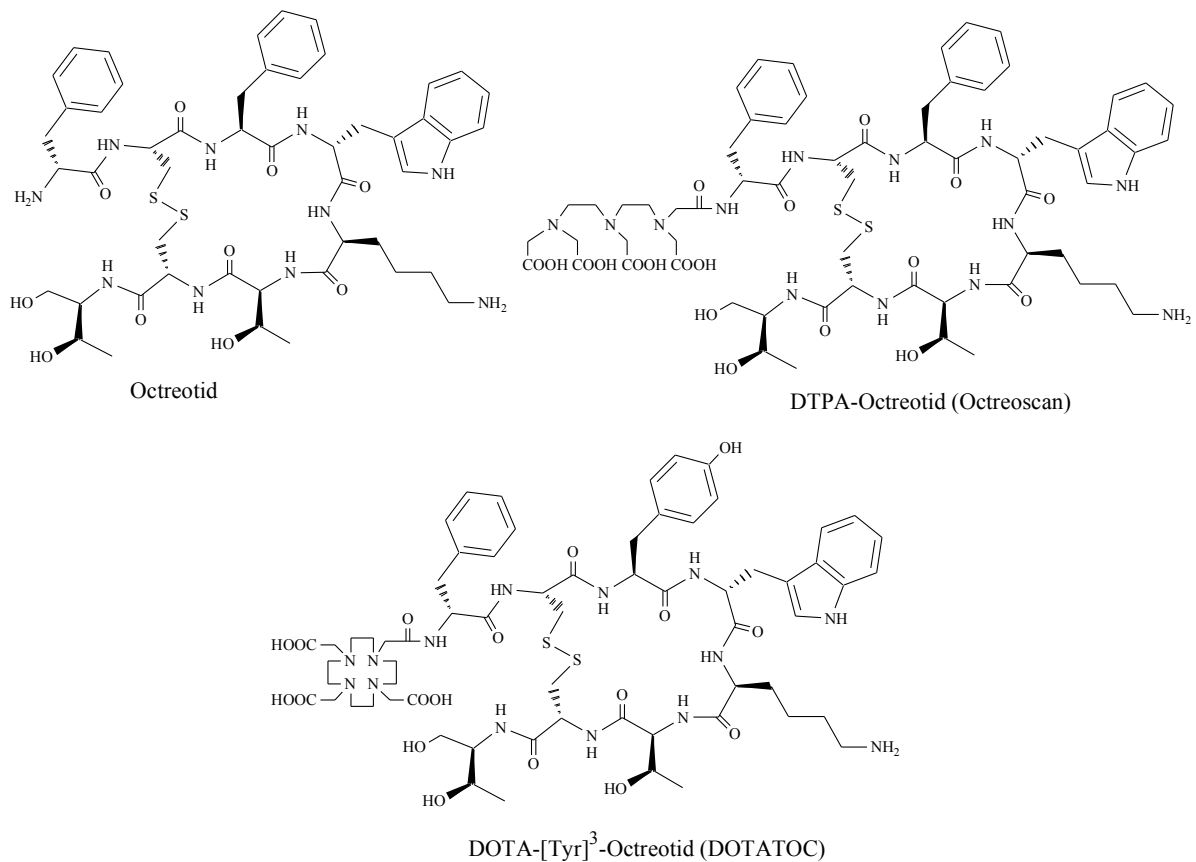


**Abbildung 18:** Allgemeines Design eines peptidischen Targetingvektors.

Der überwiegende Anteil der in der Radiopharmazie eingesetzten Nuklide sind Metalle. Diese können im Gegensatz zu den Halogenen oder Kohlenstoff nicht kovalent an Biomoleküle gebunden werden. Deshalb benutzt man für die Markierung von Biomolekülen mit Metallen bifunktionale Chelatliganden (BFC). Diese sind bereits an das Targetmolekül kovalent gebunden und komplexieren das zur Markierung eingesetzte metallische Radionuklid (Abbildung 18). Die kovalente Bindung des Chelatliganden an das Peptid wird oft am N-Terminus vorgenommen, wenn dieser nicht zur pharmakophoren Gruppe des Peptids gehört. Das geringe Gewicht kleiner Peptide bedingt eine schnelle Diffusionsrate, was für ein markiertes Peptid im Gegensatz zu markierten Proteinen eine schnellere Aufnahme in große Tumore bedeutet, was wiederum zur Deponierung höherer Strahlendosen im Zentrum des Tumors führt. Proteine können bei der Markierung härtere Synthesebedingungen als Antikörper aushalten (z.B. Temperatur). Da ihre Pharmakokinetik bedeutend schneller ist, ist das Tumor- zu Untergrund-Verhältnis besser. Die schnelle Anreicherung führt zu einer geringeren Dosis in nicht betroffenen Organen. Die Probleme bei der Entwicklung dieser Art von Targetmolekülen sind zum einen der schnelle Abbau von Peptiden durch endogene Peptidasen und Proteasen und auf der anderen Seite die eventuell negative Beeinflussung der Bindungsaffinitäten durch die an die kleinen Moleküle gebundenen bifunktionalen Chelatoren.

Die auf diesem Gebiet am weitesten entwickelten Peptide sind die Somatostatinanaloga. Endogenes Somatostatin kommt in zwei Formen vor: es besteht entweder aus 14 (SS-14) oder 28 (SS-28) Aminosäuren. Beide Formen besitzen eine geringe biologische Stabilität von 2-3 Minuten. Durch Modifikationen des Peptids zum Octreotid gelang es nicht nur die *in vivo*-Stabilität deutlich zu erhöhen, sondern auch die Bindungsaffinität zu steigern. Somatostatinrezeptoren werden hauptsächlich von neuroendokrinen Tumoren exprimiert, zu deren Diagnose und Therapie die Somatostatinanaloga eingesetzt werden. Das Octreotid ist kommerziell als Medikament unter dem Namen Sandostatin bekannt. Das erste mit einem

bifunktionalen Chelatliganden konjugierte Octreotid war das DTPA (Diethylenetriaminpentaessigsäure)-Octreotid. Es wird mit  $^{111}\text{In}^{3+}$  markiert und als SPECT-Diagnostikum in Kit-Form weltweit unter dem Namen Octreoscan vertrieben.



**Abbildung 19:** Octreotid und seine Derivate.

Ein neueres Octreotidkonjugat ist das DOTATOC (DOTA = 1,4,7,10-tetraazacyclododecan-1,4,7,10-tetraessigsäure). Es kann mit einer ganzen Reihe von dreiwertigen radioaktiven Kationen markiert werden, z.B.  $^{111}\text{In}$ ,  $^{67/68}\text{Ga}$  oder  $^{90}\text{Y}$  (vgl. Abbildung 19).

**Tabelle 5:** Bindungsaffinitäten ( $\text{IC}_{50}$ ) von mit Metallen markiertem DOTA-konjugiertem Octreotid.

Ligand	$\text{IC}_{50}$ fürsstr2/nM
SS28 (natürliches Somatostatin)	$2,7 \pm 0,3$
Octreotid	$2,0 \pm 0,7$
In-DTPA-Octreotid	$22 \pm 3,6$
$\text{Co}^{\text{II}}$ -DOTA-[Tyr] <sup>3</sup> -Octreotid	$0,14 \pm 0,1$
$\text{Ga}^{\text{III}}$ -DOTA-[Tyr] <sup>3</sup> -Octreotid	$2,5 \pm 0,5$
$\text{Y}^{\text{III}}$ -DOTA-[Tyr] <sup>3</sup> -Octreotid	$11 \pm 1,7$
$\text{Bi}^{\text{III}}$ -DOTA-[Tyr] <sup>3</sup> -Octreotid	$30 \pm 3$

In Tabelle 5 sind einige Bindungsaffinitäten von mit Metallen markiertem DOTA-konjugiertem Octreotid angegeben.  $\text{Co}^{\text{II}}$ -DOTA-D-Phe<sup>1</sup>-Tyr<sup>3</sup>-Octreotid besitzt in dieser Reihe eine Bindungsaffinität, die noch über der des natürlichen Somatostatins angesiedelt ist. Bei



vergleichenden Studien der Markierung von DOTATOC mit  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{67}\text{Ga}$  und  $^{111}\text{In}$  konnte gezeigt werden, dass die Affinität des  $^{67}\text{Ga}$ -DOTATOC um einen Faktor 4-5 größer war als bei den beiden anderen Metallen. Im Vergleich mit dem  $^{111}\text{In}$ -DTPA-D-Phe<sup>1</sup>-Octreotid ergab sich für das  $^{67}\text{Ga}$ -DOTATOC eine ausgezeichnete Darstellung von SRIF-Rezeptor positiven Tumoren und eine geringere Aufnahme der Verbindung in die Niere. Die Unterschiede in der Bindungsaffinität rühren von der räumlichen Struktur der DOTA-Metallkomplexe her. So ist der Ga-Komplex 6-fach koordiniert mit einer cis-pseudooktaedrischen Geometrie, während das Y achtfach koordiniert und eine leicht verzerrte quadratisch antiprismatische Geometrie aufweist. Mit  $^{68}\text{Ga}$  markiertes DOTATOC hat dieselben hohen spezifischen Bindungsaffinitäten wie das mit  $^{67}\text{Ga}$  markierte, liefert jedoch als PET-Nuklid eine bessere Diagnose.

### 5.1.2 Radionuklidgeneratoren am Beispiel des $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ -Generators

Das Prinzip des Radionuklidgenerators basiert darauf, dass sich zwischen Mutter und Tochternuklid ein radiochemisches Gleichgewicht einstellt. So unterscheidet man drei Fälle (vgl. hierzu auch Abschnitt 2.1.2):

1. Säkulares Gleichgewicht: Die Halbwertszeit der Mutter ist sehr viel länger als die Halbwertszeit der Tochter ( $t_{1/2,1} \gg t_{1/2,2}$  und  $\lambda_1 \ll \lambda_2$ ), im Gleichgewicht gilt  $A_1 = A_2$
2. Transientes Gleichgewicht: Die HWZ der Mutter ist länger als die HWZ der Tochter ( $t_{1/2,1} > t_{1/2,2}$  und  $\lambda_1 < \lambda_2$ ). In diesem Fall erreicht die Aktivität der Tochter einen höheren Wert als die Aktivität der Mutter, zerfällt aber im Gleichgewicht mit der Halbwertszeit der Mutter.
3. Kein Gleichgewicht: Die Halbwertszeit der Mutter ist kleiner als die der Tochter ( $t_{1/2,1} < t_{1/2,2}$  und  $\lambda_1 > \lambda_2$ ). Folglich kann sich kein Gleichgewicht einstellen. In diesem Fall ist ein Generatorsystem nicht möglich.

Als Radionuklidgenerator bezeichnet man ein System, bei dem man von einem in der Regel meist langlebigen Mutternuklid das generierte Tochternuklid durch einen radiochemischen Separationsprozess in hoher radiochemischer Reinheit erhalten kann. Im Allgemeinen wird beim radioaktiven Zerfall immer ein Tochternuklid längerer Halbwertszeit gebildet (bzw. stabile Nuklide). Die Generatorsysteme stellen also eine besondere Ausnahme von der Regel dar, da hier immer eine Tochter mit kürzerer Halbwertszeit gebildet wird. Diese Tochternuklide können dann je nach Halbwertszeit für radioaktive Markierungen von Targetingvektoren oder Perfusionsmessungen eingesetzt werden. Die Herstellung der Mutternuklide kann auf verschiedenen Wegen erfolgen. Alle  $\beta^-$ -emittierenden Mutternuklide werden entweder aus Spaltprodukten (z.B.  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ) oder durch Bestrahlungen an Kernreaktoren erhalten (z.B.  $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ ). Alle  $\beta^+$ -emittierenden Mutternuklide können nur durch Bestrahlungen mit geladenen Projektilen am Zyklotron hergestellt werden (z.B.  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ ).

Generatorsysteme bieten mehrere Vorteile. So kann das Tochternuklid prinzipiell trägerfrei erhalten werden. Der wichtigste Vorteil ist die permanente Verfügbarkeit des Tochternuklids. So ist man auch bei Nukliden mit kurzen Halbwertszeiten nicht auf das Vorhandensein eines in-house Zyklotrons angewiesen (wie beispielsweise bei  $^{11}\text{C}$  oder  $^{18}\text{F}$ ). Auch sind viele



etablierte Generatorsysteme mit metallischen Tochternukliden so weit entwickelt, dass die Synthese der Radiopharmaka „kit“-artig funktioniert und auch von nicht radiochemisch ausgebildetem Personal durchgeführt werden kann.

Nicht zuletzt kann die Verwendung eines Radionuklidgenerators auch kommerzielle Vorteile mit sich bringen. Wird der Generator effizient eingesetzt, können mit einem Generator sehr viele Patienten behandelt werden. Auch in der radiopharmazeutischen Forschung sind Radionuklidgeneratoren logistisch vorteilhaft, da man Versuche, die fehlgeschlagen sind, zeitnah wiederholen kann und nicht auf eine externe Aktivitätslieferung angewiesen ist.

Nach ihrem chemischen Einsatz teilt man die Radionuklidgeneratoren in drei Gruppen ein (vgl. auch Tabelle 6):

1. Generatoren für Perfusionsmessungen: Hier ist die Halbwertszeit der Tochter so kurz (bis einige Minuten), dass eine chemische Nachbehandlung des Eluats nicht mehr möglich ist. Deshalb muss die chemische Separationsstrategie so konzipiert sein, dass die Elutionslösung direkt injizierbar ist.
2. Generatoren für Radiopharmaka-Synthesen: Hier ist die Halbwertszeit der Generatortochter lang genug, um mit dem Eluat Markierungssynthesen durchführen zu können.
3. *In vivo*-Generatorsysteme: Hier ist die Halbwertszeit der Tochter wie bei den Perfusionsstracern relativ kurz. Es besteht jedoch die Möglichkeit, mit der Generatormutter bereits das Targetingmolekül zu markieren, woraus sich dann *in vivo* „vor Ort“ das eigentlich relevante (PET- oder ERT-) Nuklid bildet.

**Tabelle 6:** Auswahl einiger Radionuklidgeneratorsysteme.

Generator-system	Mutternuklid			Tochternuklid		
	$t_{1/2}$	Produktion	Zerfalls-art	$t_{1/2}$	Haupt-emission	Anwen-dung
<b>PET-Generatoren</b>						
$^{82}\text{Sr} / ^{82}\text{Rb}$	25,6 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	1,27 min	$\beta^+$ (95 %, 1,41 MeV)	Perfusion
$^{118}\text{Te} / ^{118}\text{Sb}$	6,00 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	3,6 min	$\beta^+$ (74 %, 0,882 MeV)	Perfusion
$^{122}\text{Xe} / ^{122}\text{I}$	20,1 h	Beschleuniger	$\varepsilon$	3,6 min	$\beta^+$ (77 %, 1,09 MeV)	(Markierung)
$^{128}\text{Ba} / ^{128}\text{Cs}$	2,43 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	3,62 min	$\beta^+$ (69 %, 0,869 MeV)	Perfusion
$^{134}\text{Ce} / ^{134}\text{La}$	3,16 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	6,4 min	$\beta^+$ (63 %, 0,756 MeV)	Perfusion
$^{62}\text{Zn} / ^{62}\text{Cu}$	9,26	Beschleuniger	$\varepsilon$	9,74 min	$\beta^+$ (97 %, 1,28 MeV)	Markierung
$^{68}\text{Ge} / ^{68}\text{Ga}$	270,8 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	68 min	$\beta^+$ (89 %, 0,74 MeV)	Markierung

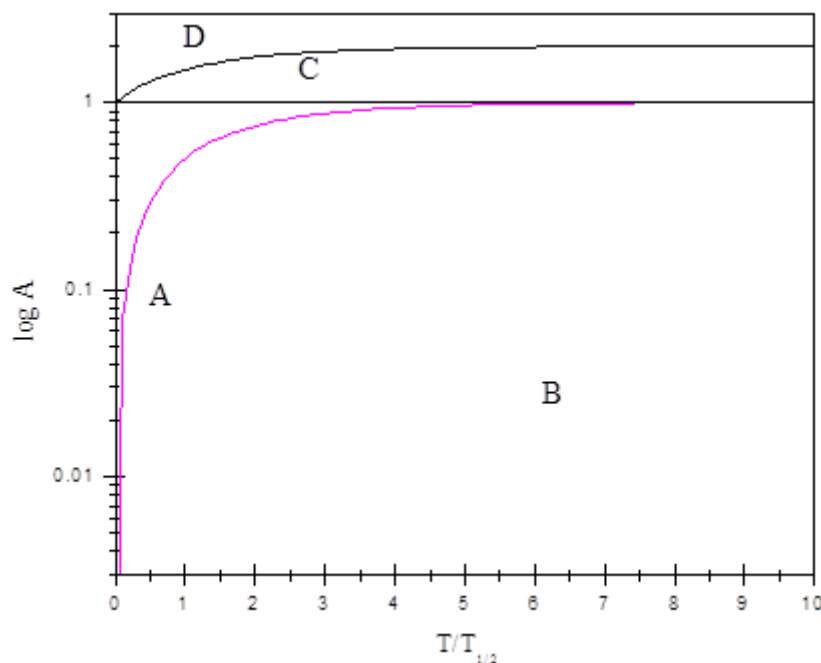
$^{110}\text{Sn} / ^{110\text{m}}\text{In}$	4,1 h	Beschleuniger	$\varepsilon$	1,15 h	$\beta^+$ (62 %, 0,623 MeV)	Markierung
$^{44}\text{Ti} / ^{44}\text{Sc}$	47,3 a	Beschleuniger	$\varepsilon$	3,927 h	$\beta^+$ (94 %, 0,597 MeV)	Markierung
$^{72}\text{Se} / ^{72}\text{As}$	8,4 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	1,083 d	$\beta^+$ (88 %, 1,02 MeV)	Markierung
<b>ERT-Generatoren</b>						
$^{90}\text{Sr} / ^{90}\text{Y}$	28,5 a	Reaktor, f	$\beta$	2,671 d	$\beta$	ERT
$^{188}\text{W} / ^{188}\text{Re}$	69,4 d	Reaktor	$\beta$	16,98 h	$\beta$	ERT
<b>In vivo-Generatoren</b>						
$^{66}\text{Ni} / ^{66}\text{Cu}$	2,275 d	Reaktor	$\beta$	5,10 min	$\gamma, \beta$	ERT
$^{112}\text{Pd} / ^{112}\text{Ag}$	21,04 h	Reaktor, f	$\beta$	3,14 h	$\gamma, \beta, \text{Auger-e}^-$	ERT
$^{134}\text{Ce} / ^{134}\text{La}$	3,16 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	6,4 min	$\beta^+$ (63 %, 0,756 MeV)	PET
$^{140}\text{Nd} / ^{140}\text{Pr}$	3,37 d	Beschleuniger	$\varepsilon$	3,39 min	$\beta^+$ (51 %, 0,544 MeV)	Perfusion
$^{166}\text{Dy} / ^{166}\text{Ho}$	3,4 d	Reaktor	$\beta$	1,117 d	$\gamma, \beta, \text{Auger-e}^-$	ERT
$^{212}\text{Pb} / ^{212}\text{Bi}$	10,64 h	Zerfallskette	$\beta$	1,01 h	$\alpha$ (64 %), $\beta$ (36 %)	ERT
$^{213}\text{Bi} / ^{209}\text{Pb}$	45,6 min	Zerfallskette	$\beta, \alpha$	3,253 h	$\beta$	ERT

Beim  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ -Generator beträgt die Halbwertszeit der Mutter 270 d und die Halbwertszeit der Tochter 68 min. Die Zerfallskette ist in Formel (47) gezeigt.



Die Halbwertszeiten beider Nuklide unterscheiden sich um einen Faktor von ca. 5700. Man kann deshalb bezogen auf einen Elutionsvorgang die Aktivität der Mutter als konstant betrachten und somit ein säkulares Gleichgewicht annehmen (vgl. Abbildung 20).

Das  $^{68}\text{Ge}$  wird über eine  $^{69}\text{Ga}(p,2n)$  Reaktion am Zyklotron hergestellt. Wegen der langen Halbwertszeit des  $^{68}\text{Ge}$  sind hohe Protonenflüsse erforderlich. Für die Fixierung des Germaniums sind mehrere organische und anorganische Matrices verwendet worden. Gebräuchlich sind heute unter anderem Generatoren mit  $\text{TiO}_2$ -Matrix, die mit 0,1 N HCl eluiert werden können und freies  $^{68}\text{Ga}^{3+}$  liefern, welches nach Aufreinigung zur Radiomarkierung eingesetzt wird.



**Abbildung 20:** Säkulars Gleichgewicht des  $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ -Generators bezogen auf einen Trennvorgang (A: Anstieg der Tochteraktivität in einer reinen Mutterfraktion, B: unabhängiger Zerfall der abgetrennten reinen Tochterfraktion, C: unabhängige Aktivität der reinen Mutterfraktion).

## 5.2 Durchführung: Experimente mit einem $^{68}\text{Ga}$ -Generator

### Synthese von $^{68}\text{Ga}$ -DOTA mittels eines $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ Generators

#### Elution des Generators

Das anfängliche Eluat (ca. 5 bis 10 ml der 0,1 M HCl) wird über einen Kationenaustauscher gegeben, wodurch das  $^{68}\text{Ga}$  quantitativ fixiert wird. Hierbei werden bereits > 97 % des Germaniums abgetrennt. Mögliche chemische Verunreinigungen des  $^{68}\text{Ga}$  von Zn(II) und Fe(III) werden unter Verwendung von 5 ml einer 0,15 M HCl Lösung in 80 %igem Aceton von der Säule gespült. Das  $^{68}\text{Ga}$  wird mittels 0,4 ml einer 0,05 M HCl Mischung in 98 %igem Aceton in ein Eppendorfgefäß eluiert. Die  $^{68}\text{Ga}$  Aktivität wird in ein Glasgefäß überführt, welches eine temperierte Lösung aus 5 ml Wasser und 10  $\mu\text{g}$  DOTA (10  $\mu\text{l}$  einer Stammlösung mit einem 1 mg DOTA/ml) enthält.

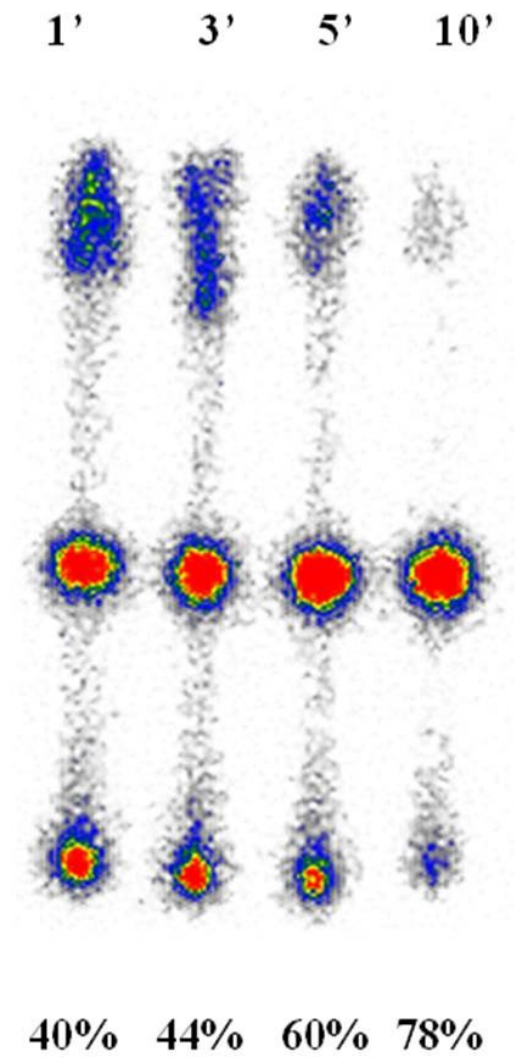
Die Reaktionskinetik wird bei Raumtemperatur, 40 °C and 50 °C (jede Gruppe untersucht eine Reaktionstemperatur) untersucht. Nach 1, 3, 5 und 10 Minuten nach Reaktionsbeginn werden 3  $\mu\text{l}$  Aliquote entnommen und mittels Radio-DC analysiert (siehe unten).

#### Qualitätskontrolle

Die Analyse des  $^{68}\text{Ga}$ -DOTA und des freien  $^{68}\text{Ga}$  wird mittels DC-Alufolien Si 60 der Firma MERCK durchgeführt.

Das Aliquot (ca. 3  $\mu\text{l}$ ) wird auf die DC-Platte aufgegeben. Entwicklung erfolgt mittels 0,1 M Natriumcitratlösung. Nach 7-10 min hat die Lauffront die benötigten 6 cm zurückgelegt. Die DC-Platte wird getrocknet und mittels des Instant IMAGER ausgewertet (vgl. Abbildung 21)

## Markierungskinetik für $T = 40^{\circ}\text{C}$



**Abbildung 21:** Analyse der Markierungskinetiken und Produktqualität durch Radio-Dünnschichtchromatographie.

## 6. Kernreaktionen mit Neutronen

Literatur: Keller, S. 100-102, 106-113, 257-263  
Lieser, S. 239-279  
Friedlander, S. 110-158

Künstliche Kernumwandlungen können durch Beschuss eines Nuklids (Target) mit einem geeigneten Projektil ausgelöst werden. Als Projektil kommen geladene Teilchen (Protonen,  $\alpha$ -Teilchen, schwere Ionen),  $\gamma$ -Quanten und Neutronen in Frage.

Ist der Produktkern instabil, so ergibt sich dessen Zerfallsrate  $A$  nach Formel (48).

$$A = N \cdot \sigma \cdot \Phi \cdot (1 - e^{-\lambda t}). \quad (48)$$

Hierbei ist  $N$  die Zahl der Targetatome,  $\sigma$  der Wirkungsquerschnitt für die Kernreaktion,  $\Phi$  der Teilchenfluss,  $\lambda$  die Zerfallskonstante des Produktkerns und  $t$  die Bestrahlungsdauer. Formel (48) gilt nur unter der Voraussetzung, dass die Zahl der Targetatome während der Bestrahlung konstant bleibt. In den meisten Fällen sind die Umwandlungsraten so gering, dass die Bedingung erfüllt ist.

Die Zerfallsrate eines Produktkerns wächst analog zur Zerfallsrate eines Tochternuklids im säkularen Gleichgewicht (siehe Formel (28)). Nach langer Bestrahlungsdauer  $t$  wird die Sättigungsaktivität  $A_\infty$  erreicht (Formel (49)).

$$A_\infty = N \cdot \sigma \cdot \Phi. \quad (49)$$

Nach einer Halbwertszeit werden 50 %, nach zwei Halbwertszeiten 75 % und nach zehn Halbwertszeiten 99,9 % der Sättigung erreicht. Wird ein Element natürlicher Isotopenzusammensetzung bestrahlt, so ist die Zahl der Targetatome  $N$  gegeben durch Formel (50).

$$N = \frac{m \cdot \alpha \cdot N_A}{M}. \quad (50)$$

Hierbei ist  $m$  die Masse des Targets,  $\alpha$  dessen Isotopenhäufigkeit,  $N_A$  die Avogadro Zahl und  $M$  die Molmasse des Targetelements.

Der Fluss  $\Phi$  wird im Allgemeinen in  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  angegeben, der Wirkungsquerschnitt in barn, wobei gilt, dass  $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ .

Während geladene Projektile und  $\gamma$ -Quanten Energien von zumeist mehreren MeV besitzen müssen, um Kernreaktionen auszulösen, gelingt dies für Neutronen schon bei thermischen Energien ( $E_n \approx 0,025 \text{ eV}$ , Geschwindigkeit  $v_n \approx 2200 \text{ m/s}$ ). Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  der Atomkerne ist bei niedrigen Energien umgekehrt proportional zur Neutronengeschwindigkeit  $v_N$  (Formel (51)).

$$\sigma \sim \frac{1}{v_N}. \quad (51)$$

Dieses Verhalten ist meistens von scharfen Einfangresonanzen überlagert (siehe Abbildung 22).

Bei Einfang eines thermischen Neutrons durch einen Targetkern wird die Bindungsenergie des Neutrons ( $\approx 7$  bis  $9$  MeV) meist als  $\gamma$ -Strahlung frei; man spricht von einer  $(n, \gamma)$ -Reaktion. Bei leichteren Targetkernen können Neutronen auch  $(n, p)$ - und  $(n, \alpha)$ -Reaktionen auslösen, Beispiele hierfür sind in Formel (52) und (53) gezeigt.



Der Wirkungsquerschnitt für thermische Neutronen ist bei vielen Nukliden erheblich größer als der geometrische Querschnitt des Atomkerns. Der geometrische Querschnitt  $q$  eines Atomkerns mit der Nukleonenzahl  $A$  berechnet sich nach Formel (54).

$$q = \pi r_0^2 A^{2/3} \approx 6,6 \cdot 10^{-26} A^{2/3} \text{ cm}^2. \quad (54)$$

Für  ${}^{135}\text{Xe}$  ist  $q \approx 1,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$  (1,7 barn), während der Wirkungsquerschnitt der Reaktion  ${}^{135}\text{Xe}(n, \gamma){}^{136}\text{Xe}$  zu  $\sigma = 2,65 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$  ( $2,65 \cdot 10^6$  barn) gemessen wurde. Elemente mit großem Einfangquerschnitt für thermische Neutronen, z.B. Cd mit  $\sigma = 2450$  barn und B mit  $\sigma = 759$  barn, werden zur Steuerung von Kernreaktoren verwendet.

Neutronen lassen sich durch verschiedene Kernreaktionen erzeugen:

1. Kernspaltung:  ${}^{235}\text{U} + n \rightarrow 2$  Spaltfragmente + 2-3 Neutronen. In Kernreaktoren können Neutronenflüsse bis  $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  erreicht werden.
2. Die Reaktion  ${}^3\text{H}(d, n){}^4\text{He}$  liefert Neutronen mit  $E_n = 14$  MeV. Deuterium-Ionen werden hierbei beschleunigt und auf ein Tritium-haltiges Target geschossen.
3. Bei Nukliden mit geringer Neutronenbindungsenergie  $B_n$  lassen sich  $(\gamma, n)$ -Reaktionen durchführen, z. B.  ${}^2\text{H}(\gamma, n){}^1\text{H}$ ;  $B_n = 2,22$  MeV. Für diese Reaktion kann die  $\gamma$ -Strahlung von  ${}^{24}\text{Na}$  ( $E_\gamma = 2,754$  MeV) benutzt werden.
4. Mit der  $\alpha$ -Strahlung schwerer Kerne können bei leichten Kernen  $(\alpha, n)$ -Reaktionen ausgelöst werden, z.B.  ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$  oder  ${}^7\text{Li}(\alpha, n){}^{10}\text{B}$ .

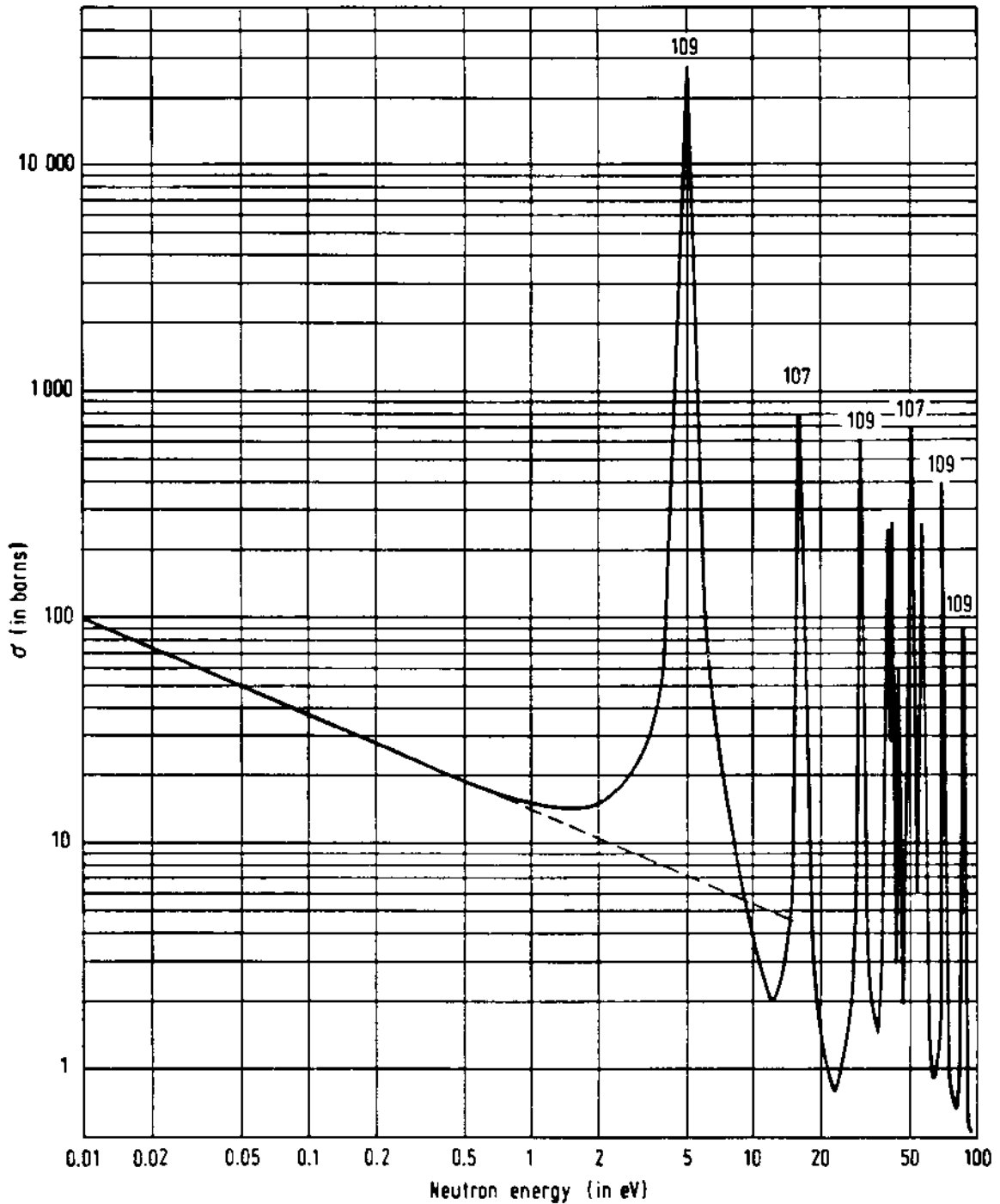
Als  $\alpha$ -Strahler finden meistens  ${}^{226}\text{Ra}$  oder  ${}^{241}\text{Am}$  Verwendung. Mischt man den  $\alpha$ -Strahler mit dem Targetmaterial, so erhält man handliche Neutronenquellen. Gebräuchlich sind Ra/Be- und Am/Li-Quellen.

Alle obigen Kernreaktionen liefern schnelle Neutronen. Da die Einfangquerschnitte für thermische Neutronen höher sind (siehe Abbildung 22), müssen sie abgebremst werden. Als Moderator zur Abbremsung der Neutronen eignen sich am besten Materialien mit kleinem Einfangquerschnitt und geringer Kernmasse. Im Labor werden Wasser oder Paraffin verwendet, im Kernreaktor Wasser, schweres Wasser oder Graphit.

Der relative Energieverlust  $\Delta E/E$  eines Neutrons beim elastischen Stoß mit einem Atomkern der Nukleonenzahl  $A$  ist im Mittel gegeben durch Formel (55).

$$\Delta E/E = 2 \cdot \frac{A}{(1+A)^2} \quad (55)$$

Der Energieverlust wird maximal für  $A = 1$ .

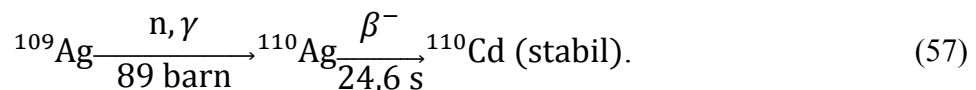
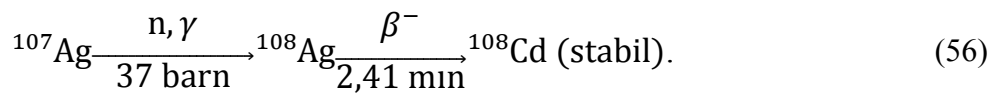


**Abbildung 22:** Neutroneneinfangquerschnitt von Silber in Abhängigkeit von der Neutronenenergie. Die Resonanzen lassen sich jeweils einem der beiden natürlichen Isotope  $^{107}\text{Ag}$  und  $^{109}\text{Ag}$  zuordnen.

## 6.1 Erzeugung von radioaktiven Ag-Isotopen

**Versuchsziel: Bestimmung der Halbwertszeit von  $^{108}\text{Ag}$  und  $^{110}\text{Ag}$  und Bestimmung des Verhältnisses der Wirkungsquerschnitte  $\sigma(^{107}\text{Ag})/\sigma(^{109}\text{Ag})$ .**

Das natürliche Silber besteht zu ungefähr gleichen Teilen aus den Isotopen  $^{107}\text{Ag}$  und  $^{109}\text{Ag}$ . Beim Neutronenbeschuss finden die in den Formeln (56) und (57) gezeigten Reaktionen statt.



### 6.1.1 Durchführung: Aktivierung von Ag

Ein ca. 0,5 mm dickes Ag-Blech von der Größe eines Präparateträgers wird unter die in Abbildung 23 schematisch gezeigte Neutronenquelle gebracht. Gleichzeitig wird eine Stoppuhr zur Messung der Bestrahlungsdauer gestartet. Nach Bestrahlungsende wird das Ag-Blech so schnell wie möglich zum GMZ gebracht und die Uhr bei Messbeginn gestoppt. Messdauer ist  $20 \cdot 15 \text{ s}$  und  $20 \cdot 60 \text{ s}$ .

Wenn die Zählrate auf den Nulleffekt abgefallen ist (nach 15-20 min), kann dasselbe Blech erneut bestrahlt werden. Damit die Ergebnisse verschiedener Bestrahlungen vergleichbar sind, muss das Ag-Blech markiert sein, sodass immer dieselbe Seite zur Neutronenquelle und zum Zählrohr liegt.

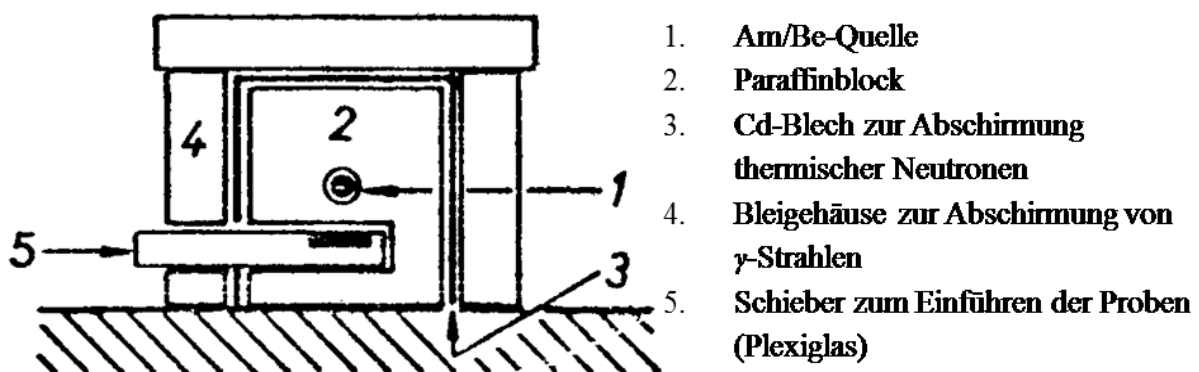


Abbildung 23: Bestrahlungsanordnung für eine Am/Be-Quelle.

Das Ag-Blech wird 24, 48, 144 und 288 s lang bestrahlt und mit dem GMZ gemessen. Die Zählraten werden nach Abzug des Nulleffekts halblogarithmisch gegen die Zerfallszeit (Mitte des Messintervalls wählen) aufgetragen, wie es in Abbildung 24 a gezeigt ist.

Das kurzlebige  $^{110}\text{Ag}$  ( $t_{1/2} = 24,6 \text{ s}$ ) ist nach 3 min praktisch vollständig zerfallen. Der geradlinige Verlauf der Zerfallskurve nach 3 Minuten repräsentiert deshalb den Zerfall des  $^{108}\text{Ag}$  ( $t_{1/2} = 2,41 \text{ min}$ ). Diese Gerade wird auf  $t = 0$  zurück extrapoliert (Ende der Bestrahlung), die Zählrate dieses Ag-Isotops bei Bestrahlungsende  $A_0$  und die Halbwertszeit werden



bestimmt. Auf der extrapolierten Geraden kann die Zählrate des  $^{108}\text{Ag}$  zu jeder beliebigen Zeit abgelesen werden. Trägt man nun die Differenz zwischen gemessener Zählrate und entsprechender Zählrate des  $^{108}\text{Ag}$  gegen  $t$  auf, so muss sich die Zerfallsgerade des kurzlebigen Ag-Isotops ergeben. Auch hier wird durch Extrapolation auf  $t=0$  die Zählrate bei Bestrahlungsende bestimmt.

Die Zerlegung der Zerfallskurven wird mit der Kurve der längsten Bestrahlung begonnen, da hier die langlebige Komponente am genauesten gemessen werden kann. Bei kurzer Bestrahlungsdauer ist der Anteil der langlebigeren Komponente so klein, dass ihre Zerfallsgerade nur konstruiert werden kann. Dazu kann die von der Langzeitbestrahlung ermittelte Steigung übernommen werden. Die Lage der konstruierten Geraden ist richtig, wenn die Differenz zur gemessenen Kurve wieder eine Gerade ergibt. Biegt die resultierende Zerfallsgerade der kurzlebigen Komponente nach unten um, so ist die Zerfallsgerade der langlebigen Komponente parallel nach unten zu verschieben (und umgekehrt).

Die ermittelten  $A_0$ -Werte der beiden Ag-Isotope werden halblogarithmisch gegen die Bestrahlungsdauer aufgetragen (zu sehen in Abbildung 24 b). Für  $^{110}\text{Ag}$  kann die Sättigungsaktivität  $A_\infty$  abgelesen werden, für  $^{108}\text{Ag}$  ist  $A_\infty$  noch nicht erreicht und muss mit Formel (48) per Hand angefüttet werden.

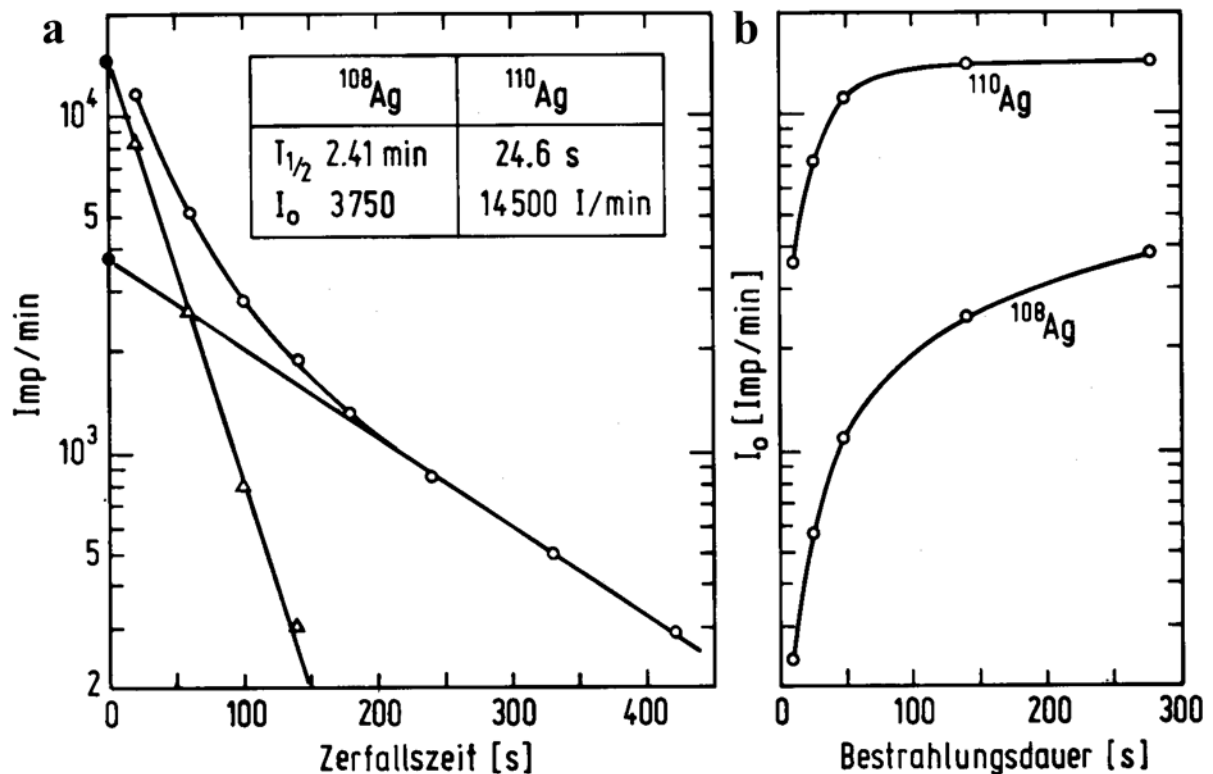


Abbildung 24: a Zerlegung der komplexen Zerfallskurve von  $^{108}\text{Ag}$  und  $^{110}\text{Ag}$ ; b Bildungskurven von  $^{108}\text{Ag}$  und  $^{110}\text{Ag}$ .

Da  $\Phi$  für beide Kernreaktionen gleich und  $N$  nahezu identisch ist, muss nach Formel (49) das Verhältnis der Sättigungsaktivitäten dem der Wirkungsquerschnitte entsprechen. Voraussetzung ist dabei gleiche Nachweiswahrscheinlichkeit des GMZ für die  $\beta$ -Strahlung der beiden Ag-Nuklide.

## 6.1.2 Durchführung: Absorption von Neutronen

### Versuchsziel: Vergleich der Transmission $T$ thermischer Neutronen durch Pb und Cd und Messung des Neutronen-Einfangquerschnitts $\sigma$ von Cd.

Ein Ag-Blech wird je 1 min lang in einer Cd- und in einer Pb-Hülle, bzw. ohne Abschirmung bestrahlt. Jeweils 30 s nach Bestrahlungsende wird das Blech 1 min lang mit dem GMZ gemessen. Vor jeder Bestrahlung muss mit dem GMZ geprüft werden, ob die Aktivität von der vorhergegangenen Bestrahlung wieder abgeklungen ist. Die Transmission  $T$  der Abschirmungen ergibt sich aus dem Verhältnis der gemessenen Zählraten  $I$  nach Formel (58).

$$T = \frac{I(\text{mit Abschirmung})}{I(\text{ohne Abschirmung})} = \frac{\Phi(x)}{\Phi(0)}. \quad (58)$$

Der Neutronen-Einfangquerschnitt  $\sigma$  wird nach Formel (59) berechnet.

$$\Phi(x) = \Phi(0) \cdot e^{-n_T \cdot \sigma \cdot x}. \quad (59)$$

Die relativen Abschwächungen des Flusses  $\phi(x)$  und  $\phi(0)$  werden wie in Formel (58) gezeigt bestimmt. Für Cd ist die Atomdichte  $n_T$  gegeben als  $n_T = 4,62 \cdot 10^{22}$  Atome/cm<sup>3</sup> (kann einfach aus der Dicht von Cd von  $\rho = 8,65$  g/cm<sup>3</sup> berechnet werden). Als Absorberdicke  $x$  kann 1 mm verwendet werden.

## 6.2 Neutronenaktivierungsanalyse zum Nachweis von Spurenelementen

### Versuchsziel: Bestimmung des Gehalts an Cu in einer handelsüblichen Al-Folie.

Die Methode der Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) wird am Beispiel einer Aluminium-Haushaltsfolie dargestellt, in der Kupfer nachgewiesen werden soll. Die Aluminiumprobe wird etwa eine Stunde lang im Reaktor mit thermischen Neutronen bei einem Fluss von  $\sim 10^{12}$  cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> bestrahlt. Dabei geht das <sup>63</sup>Cu durch Neutroneneinfang (Einfangquerschnitt  $\sigma = 4,5$  barn) in <sup>64</sup>Cu über, das mit einer Halbwertszeit von 12,7 h durch Elektroneneinfang (EC) und  $\beta^+$ -Zerfall in <sup>64</sup>Ni und durch  $\beta$ -Zerfall in <sup>64</sup>Zn übergeht. Unter den gleichen Bedingungen werden 0,5 mg Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> · 3 H<sub>2</sub>O als Standard bestrahlt.

Nach dem Ende der Bestrahlung besteht die Aktivität der Al-Probe zum größten Teil aus <sup>28</sup>Al, das aus dem inaktiven <sup>27</sup>Al durch (n,  $\gamma$ )-Reaktion entstanden ist. Die Aktivität ist trotz des relativ geringen Querschnitts von 0,23 barn infolge der großen Menge Aluminium sehr hoch. Sie fällt mit der Halbwertszeit des <sup>28</sup>Al ( $t_{1/2} = 2,25$  min) ab. Auch die Aktivität des <sup>27</sup>Mg, das mit schnellen Neutronen über (n, p) aus Al und mit thermischen Neutronen aus Mg-Verunreinigungen entsteht, ist anfangs sehr stark. Sie fällt mit 9,5 min Halbwertszeit ab.

Der Nachweis von Spurenelementen bei der Aktivierungsanalyse erfolgt zumeist durch Messung der  $\gamma$ -Quanten, die beim Zerfall des durch Neutroneneinfang gebildeten Isotops emittiert werden. Im Fall des <sup>64</sup>Cu ist dies nur über einen Umweg möglich: Beim  $\beta$ -Zerfall von <sup>64</sup>Cu wird kein  $\gamma$ -Quant emittiert, da der Zerfall direkt in den Grundzustand von <sup>64</sup>Zn führt. Bei

EC-Zerfall von  $^{64}\text{Cu}$  wird mit einer Wahrscheinlichkeit von 0,6 % ein angeregter Zustand von  $^{64}\text{Ni}$  bevölkert, der durch Emission eines 1346 keV Quants zerfällt. Die Intensität dieser  $\gamma$ -Linie ist für einen quantitativen Kupfernachweis zu gering. Als einzige Möglichkeit bleibt der Nachweis des mit einer Häufigkeit von 19 % erfolgenden  $\beta^+$ -Zerfalls. Durch Annihilation des gebildeten Positrons werden zwei 511 keV Quanten emittiert, die mit einem NaI-Detektor nachgewiesen werden können. Diese  $\gamma$ -Quanten sind allerdings nicht elementspezifisch. Daher muss Kupfer vor der  $\gamma$ -Messung chemisch von anderen Nukliden getrennt werden, bei deren Zerfall ebenfalls 511 keV Quanten emittiert werden (siehe hierzu auch Abschnitt 2.4).

### 6.3.1 Durchführung: Bestimmung des Cu-Gehalts in Al-Folie mittels NAA

#### Chemische Abtrennung

Der aktive Cu-Standard (enthält 0,5 mg  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$  (= 13,2  $\mu\text{g}$  Cu)) wird mit 3 ml 5 n HCl, 5 ml Cu-Trägerlösung (enthält 20 mg  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}/\text{ml}$ ) und einigen Spatelspitze  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  versetzt, auf 50 ml verdünnt und im Eis gekühlt. Es wird 1 ml 10 %-ige  $\text{NH}_4\text{SCN}$  Lösung zugegeben und zum Sieden erhitzt. Beim erneuten Abkühlen auf Eis fällt das  $\text{CuSCN}$  aus, das durch einen Membranfilter abgesaugt und mit  $\text{NH}_4\text{SCN}$ - und  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ -haltigem Wasser gewaschen wird. Der Filter wird aufgeklebt, abgeklebt und am NaI-Detektor gemessen.

Die bestrahlte Aluminiumfolie wird in 3 ml 5 n HCl gelöst, dann wird ebenfalls 5 ml Cu-Trägerlösung (20 mg  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}/\text{ml}$ ) und einige Spatelspitzen  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  zugegeben und die chemische Trennung exakt wie für den Standard wiederholt.

Wichtig: Vor der chemischen Aufarbeitung der Aluminiumprobe gut spülen oder neue Bechergläser verwenden, sonst wird der Cu-Gehalt zu groß bestimmt!

#### $\gamma$ -Messung

Die Messung des  $^{64}\text{Cu}$  in der Al-Probe erfolgt mit einem NaI-Detektor. Zunächst wird der Cu-Standard 5 min lang gemessen. Anschließend wird die aufgearbeitete Aluminiumprobe 5 min lang gemessen. Zur Auswertung muss die Peakfläche der 511 keV Linie in beiden Spektren bestimmt werden. Dies geschieht durch Integration der Peakflächen und anschließendem Abzug des Untergrunds (vgl. Formel (43)). Der Kupfergehalt der untersuchten Al-Probe ergibt sich dann nach Formel (60). Die Einheit ist in diesem Fall direkt ppm.

$$\frac{m_{\text{Cu}}}{m_{\text{Al}}} = \frac{N_{\text{Al}} \cdot t_{\text{Std}} \cdot m_{\text{Std}}}{N_{\text{Std}} \cdot t_{\text{Al}} \cdot m_{\text{Al}}} \cdot 10^6 \quad (60)$$

$N_{\text{Al}}$  und  $N_{\text{Std}}$  sind die jeweiligen Peakfläche der 511 keV Linie in der Al-Probe bzw. im Standard,  $t_{\text{Al}}$  und  $t_{\text{Std}}$  sind die jeweiligen Messzeit der Al-Probe bzw. des Standards (in diesem Versuch identisch) und  $m_{\text{Al}}$ ,  $m_{\text{Std}}$  und  $m_{\text{Cu}}$  sind die Massen der Al-Probe, des Kupfers im Standard bzw. des Kupfers in der Al-Folie.



### 1. Aktivierung von Ag

Die ausliegenden quadratischen Ag-Bleche werden jeweils **genau** 24, 48, 144, 288 s in der Neutronenquelle bestrahlt (Stoppuhr!). Nächste Messung erst, wenn die Aktivität der vorherigen Messung abgeklungen ist (nach ca. 15 min). Es ist wichtig, dass die experimentellen Bedingungen genau eingehalten werden: die Ag-Bleche immer in gleicher Orientierung bestrahlen und messen.  $t = 0$  ist Bestrahlungsende. Transportzeit zum Detektor konstant halten. Die Messung erfolgt im GMZ: 20x15 s, 20x60 s. Auswertung: Die HWZ der langlebigen Komponente wird aus der längsten Bestrahlung, die der kurzlebigen Komponente aus einer beliebigen Bestrahlung ermittelt. Startaktivitäten beider Komponenten durch Extrapolation ermitteln und gegen Bestrahlungsdauer auftragen. Sättigungsaktivitäten für beide Komponenten ermitteln (für die langlebige Komponente rechnerisch mit den experimentellen Daten aus der Aktivierungsgleichung). Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte bestimmen.

### 2. Abschirmungsmessung

Die dünnen, runden Ag-Bleche werden ohne Hülle und mit Pb- und Cd-Hülle je 1 min lang bestrahlt und 1 min gemessen. Die Pause zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn **konstant** halten. Das Blech muss immer in gleicher Orientierung bestrahlt und gemessen werden. Zur Messung wird das Blech aus der Abschirmung herausgenommen(!) und auf einem Präparateträger gelegt. Auswertung: Transmissionskoeffizienten ( $T_{Pb}$ ,  $T_{Cd}$ ) und den Wirkungsquerschnitt für Cadmium  $\sigma_{Cd}$  bestimmen.

Anmerkung: Der Wirkungsquerschnitt wird berechnet aus:

$$\Phi(x) = \Phi(0) \cdot e^{-n_T \cdot \sigma \cdot x}$$

Für die relative Abschwächung des Flusses  $\phi(x)$  und  $\phi(0)$  werden die Silberaktivitäten eingesetzt:

$$T = \frac{I(\text{mit Abschirmung})}{I(\text{ohne Abschirmung})} = \frac{\Phi(x)}{\Phi(0)}$$

Mit  $\rho_{Cd} = 8,65 \text{ g/cm}^3 = 4,62 \cdot 10^{22} \text{ Atome/cm}^3 = n_T$ ;  $x = 1 \text{ mm}$ .

### 3. Aktivierungsanalyse von Cu in Aluminiumfolie

Eine Al-Folie ( $\sim 10 \text{ mg}$ ) wurde für 1 h im Reaktor bei einem Neutronenfluss von  $7 \cdot 10^{11} \text{ s}^{-1}$  bestrahlt. Die Folie wird in 3 ml halbkonz. HCl **vollständig gelöst** (eventuell erwärmen), mit 5 ml Cu-Trägerlösung (20 mg  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3 \text{ H}_2\text{O}/\text{ml}$ ) und einigen Spatelspitzen  $\text{Na}_2\text{SO}_3$  versetzt (Gelbfärbung), auf 50 ml verdünnt und im Eis gekühlt. Es wird 1 ml 10 %ige  $\text{NH}_4\text{SCN}$ -Lösung zugegeben und zum Sieden erhitzt. Beim erneuten Abkühlen im Eis fällt das  $\text{CuSCN}$  aus, wird durch einen MF abgesaugt und mit  $\text{NH}_4\text{SCN}$ - und  $\text{Na}_2\text{SO}_3$ -haltigem Wasser gewaschen. Der Filter wird aufgeklebt, abgeklebt und 5 min im NaI-Detektor gemessen (Al-Seite zum Detektor). Dieselbe chemische Trennung wird mit einer Probe aktiven Cu-Standards wiederholt, die pro Gruppe 0,05 mg  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3 \text{ H}_2\text{O}$  (= 13,2  $\mu\text{g}$  Cu) enthält. Bestimme den Cu-Gehalt der Al-Folie (Gewichts-ppm) aus dem Vergleich der Zählraten.

ENTSORGUNG: Niederschlag in  $\beta$ -kurz, Filtrate in Abfallkanister

## 7. Angeregte Kernzustände, $\beta$ -Endpunktsenergie und $\beta$ -verzögerte Neutronen

### 7.1 Gammaskopie mit Halbleiterdetektoren

Literatur: Keller, S. 90-93  
Lieser, S. 173-183  
Friedlander, S. 252-261, 272-273

NaI(Tl)-Szintillationszähler sind wegen ihrer nur mäßigen Energieauflösung bei der Messung von  $\gamma$ -Strahlung auf vielen Gebieten von Halbleiterdetektoren verdrängt worden. Die Wirkungsweise eines Halbleiterdetektors ist vergleichbar mit der einer Ionisationskammer. Ionisierende Strahlung erzeugt Paare von Ladungsträgern, die hier aus einem Elektron und einem Defektelektron (Loch) bestehen. Im Bild des Bändermodells werden Elektronen aus dem besetzten Valenzband in das leere Leitungsband gehoben und tragen vorübergehend zur elektrischen Leitfähigkeit bei. Die Ladungsträger werden durch ein anliegendes elektrisches Feld getrennt und abgesaugt. Dieser Strom wird einem Verstärker zugeführt, dessen Ausgangsimpulse dann einer Impulshöhenanalyse unterworfen werden.

Als Halbleitermaterial für  $\gamma$ -Detektoren wird Germanium wegen der höheren Ordnungszahl gegenüber Silizium bevorzugt. Das Material muss als Einkristall vorliegen. Bereits thermische Energien reichen aus, um in Germanium Elektron-Loch-Paare zu erzeugen und einen starken Ruhestrom hervorzurufen. Deshalb müssen diese Detektoren mit flüssigem Stickstoff gekühlt werden.

Selbst hochreines Germanium enthält noch so viele Fremdatome, dass auch bei der Temperatur des flüssigen  $N_2$  eine starke Leitfähigkeit auftritt. Diese lässt sich durch das Lithium-Kompensationsverfahren fast völlig ausschalten. In einem Einkristall aus p-Ge (dotiert z.B. mit Bor) wird von einer Seite Lithium implantiert, zuerst durch Diffusion bei etwa 400 °C und anschließend durch Drift unter Einfluss eines elektrischen Feldes bei etwa 20 bis 50 °C.

Dadurch entsteht eine nahezu ladungsträgerfreie Zone. Diese so genannten Ge(Li)-Detektoren müssen ständig gekühlt werden, da bei Raumtemperatur die Lithiumatome durch Diffusion wandern würden. Als Alternative zu den Ge(Li)-Detektoren gibt es inzwischen  $\gamma$ -Detektoren aus Reinstgermanium (HPGe, high-purity-Ge-Detektoren), die so wenige Fremdatome enthalten ( $< 1$  ppm), dass keine Kompensation durch Driften nötig ist.

Ge(Li)- und HPGe-Detektoren besitzen gegenüber NaI(Tl)-Detektoren eine wesentlich bessere Energieauflösung, sodass auch sehr komplizierte  $\gamma$ -Spektren untersucht werden können. Die Energieauflösung  $\Delta E$  wird in der Praxis meistens als Halbwertsbreite einer Linie (FWHM: full width at half maximum) in keV angegeben.

Die endliche Breite eines Peaks lässt sich auf der Basis der Statistik erklären. Bei vollständiger Absorption eines  $\gamma$ -Quants der Energie  $E$  entstehen im Detektor  $N$  Ladungsträgerpaare. Für jedes Paar muss im Mittel die Energie  $\epsilon$  (etwa 3 eV in einem Ge(Li)-Detektor) aufgebracht werden. Die Zahl der entstehenden Ladungsträgerpaare ist also  $N = E/\epsilon$ . Nimmt man an, dass die einzelnen Ladungsträgerpaare unabhängig voneinander entstehen, so schwankt  $N$  statistisch nach Formel (61).

$$\sigma_N = \sqrt{N}. \quad (61)$$

Aus Formel (61) folgt Formel (62).

$$\frac{\sigma_N}{N} = \frac{\sigma_E}{E}. \quad (62)$$

Hierbei sind  $\sigma_N$  und  $\sigma_E$  Standardabweichungen von Poissonverteilungen. Bei großen  $N$  entsprechen Poissonverteilungen in guter Näherung Gaußverteilungen. Für die Energieauflösung ergibt sich demnach Formel (63).

$$\sigma_E = \sqrt{E \cdot \epsilon}. \quad (63)$$

Da die Ladungsträgerpaare nicht völlig unabhängig voneinander entstehen, ist der statistische Beitrag zur Breite eines Peaks im Allgemeinen geringer, als Formel (63) erwarten lässt. Zusätzlich zu den statistischen Schwankungen gibt es noch einen energieunabhängigen Beitrag zur Peakbreite, der im Wesentlichen auf das Rauschen von Detektor und Verstärker zurückzuführen ist.

Analog zum Halbleiterdetektor lässt sich die endliche Energieauflösung eines NaI(Tl)-Detektors auf die statistischen Schwankungen der Zahl der Photoelektronen zurückführen, die an der Photokatode des Photomultipliers entstehen.

Pro Photoelektron muss dort im Mittel eine Energie von  $\epsilon \approx 300$  eV aufgebracht werden. Das erklärt über Formel (63) die wesentlich schlechtere Energieauflösung von NaI(Tl)-Detektoren gegenüber Ge(Li)-Detektoren ( $\epsilon \approx 3$  eV). Bei 1,3 MeV  $\gamma$ -Energie zeigen NaI(Tl)-Detektoren eine Halbwertsbreite von etwa 70 keV, Ge(Li)-Detektoren eine von ungefähr 2 keV.

Ein Nachteil der Ge(Li)-Detektoren gegenüber den NaI(Tl)-Detektoren ist ihre geringe Nachweiswahrscheinlichkeit für  $\gamma$ -Strahlung, die um etwa eine Größenordnung unterhalb der von NaI(Tl)-Detektoren liegt. Das liegt daran, dass es zum einen schwierig ist, genügend große Ge(Li)-Detektoren herzustellen, zum anderen besitzt Germanium gegenüber Iod wegen der niedrigen Ordnungszahl einen geringeren Absorptionskoeffizienten für den Photoeffekt (vgl. Abbildung 9).

Die Nachweiswahrscheinlichkeit eines Ge(Li)-Detektors für  $\gamma$ -Strahlung lässt sich im Gegensatz zum NaI(Tl)-Detektor nicht berechnen, da die Dimensionen des aktiven Volumens (ladungsträgerfreie Zone) nicht hinreichend genau bekannt sind. Deshalb ist eine Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit notwendig.

Ge(Li)-Detektoren stellen sehr viel höhere Anforderungen an die Nachweiselektronik als Szintillationsdetektoren. Erstens muss die Verstärkung um einen Faktor  $10^6$  größer sein, zweitens sind sehr rauscharme Verstärker nötig, damit die gute Energieauflösung des Detektors optimal genutzt wird.

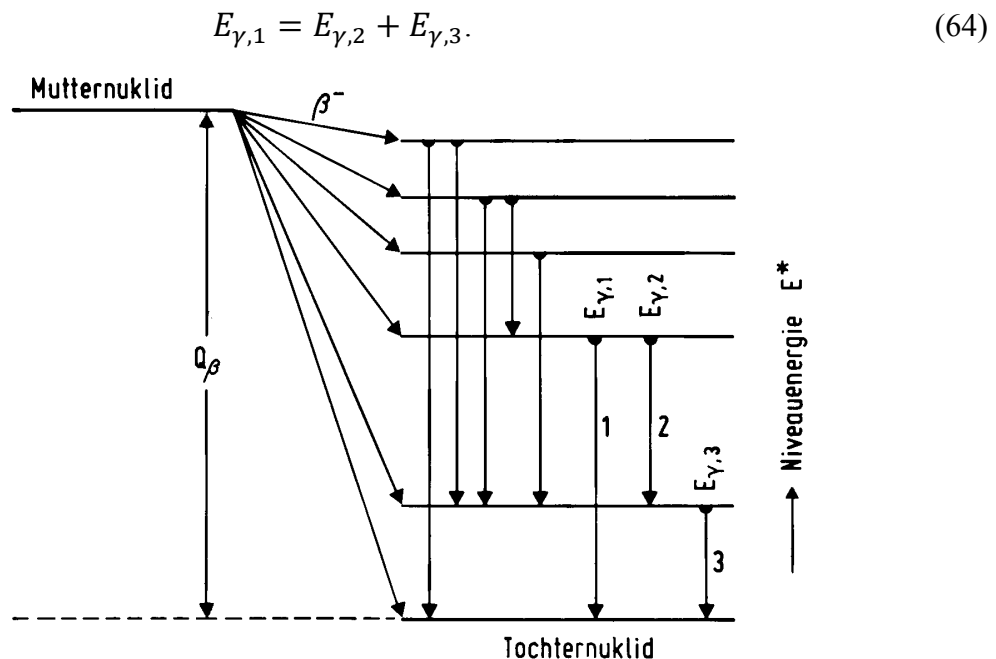
## 7.2 Aufstellung eines Zerfallsschemas eines $\beta$ -Strahlers mit Hilfe gammaspektroskopischer Untersuchungen

Literatur: Keller, S. 55-60  
 Lieser, S. 222-231  
 Friedlander, S. 311-318, 366-409

Die  $\gamma$ -Spektroskopie mit Ge(Li)-Detektoren ist ein wichtiges Mittel zur Aufstellung von Zerfallsschemata. Ein Zerfallsschema stellt die Energiezustände eines Kerns dar und enthält Informationen über Zerfallsart, Lebensdauer, Spin und Parität der Niveaus. Solche Zerfallsschemata ermöglichen darüber hinaus den Test von Kernmodellen.

Viele Informationen über Zerfallsschemata liefert die  $\gamma$ -Spektroskopie an  $\beta$ -Strahlern, bei denen der  $\beta$ -Zerfall angeregte Zustände im Tochterkern bevölkert, die sich ihrerseits durch  $\gamma$ -Emission abregen.

Zur Einordnung von  $\gamma$ -Linien in ein Zerfallsschema benutzt man das Ritz'sche Kombinationsprinzip (vgl. Abbildung 25). Regt sich ein Kernniveau sowohl direkt über die Linie  $\gamma_1$  in ein tiefliegendes Niveau ab, als auch über ein Zwischenniveau mit der Kaskade  $\gamma_2$  und  $\gamma_3$ , so gilt für die Energien  $E_\gamma$  Formel (64).



**Abbildung 25:** Speisung von Anregungszuständen durch  $\beta$ -Zerfall und Abregung durch Emission von  $\gamma$ -Strahlung.

Nachdem man die  $\gamma$ -Energien eines Nuklids bestimmt hat, sucht man nach Korrelationen gemäß Formel (64). Dazu bildet man die Differenzen sämtlicher Energien  $E_\gamma$  untereinander und vergleicht, ob die Differenzen vorhandenen  $\gamma$ -Energien entsprechen.

Auch bei einer relativ kleinen Zahl von  $\gamma$ -Linien kann das Ritz'sche Kombinationsprinzip zu einer unübersichtlichen Zahl von Energiekorrelationen führen. Deshalb müssen zusätzlich die folgenden Gesetzmäßigkeiten berücksichtigt werden.

1. Im  $\beta$ -Zerfall wird die Energie  $Q_\beta$  frei, die der Differenz der atomaren Massen von Mutter- und Tochternuklid entspricht. Ein solcher Zerfall kann keine Kernniveaus speisen, deren Energie größer als  $Q_\beta$  ist. Führt der  $\beta$ -Zerfall nicht nur zu angeregten Kernzuständen, sondern auch zum Grundzustand des Tochterkerns, so ist die maximale  $\beta$ -Energie  $E_{\beta,\max}$  gleich  $Q_\beta$  (siehe Abbildung 25).
2. Die Intensität  $I_\beta$ , mit der der  $\beta$ -Zerfall ein Niveau der Energie  $E^*$  speist, hängt stark von der kinetischen Energie des Elektrons ( $Q_\beta - E^*$ ) ab; mit zunehmender kinetischer Energie wächst die Zustandsdichte des Elektrons im Phasenraum. Betrachtet man Niveaus mit gleichem Spin und gleicher Parität, so gilt näherungsweise  $I_\beta \sim (Q_\beta - E^*)^5$ . Demnach werden hochenergetische Niveaus im Allgemeinen nur schwach gespeist und die von ihnen ausgehenden  $\gamma$ -Übergänge sind dann ebenfalls relativ schwach und können oft experimentell nicht mehr nachgewiesen werden. Sehr starke  $\gamma$ -Linien gehen meistens von Niveaus niedriger Energie aus. Die  $\gamma$ -Übergänge mit den höchsten beobachtbaren Energien sind oft Grundzustandsübergänge. Damit ist ihre Energie gleich der Energie des Niveaus, von dem sie ausgehen.
3. Bei Tochterkernen mit gerader Protonen- und Neutronenzahl (gg-Kern) entsprechen die niedrigsten Energiezustände kollektiven Anregungen wie Rotationen und Vibrationen. Die Energie dieser Zustände ändert sich nur langsam, wenn man in einem begrenzten Massenbereich eine Reihe von gg-Kernen untersucht. Befinden sich diese Kerne weit entfernt von Protonen- und Neutronen-Schalenabschlüssen, wird man Rotationsanregungen finden. Diese Anregungsenergien  $E_{\text{rot}}$  lassen sich dann als Funktion des Kernspins  $I$  wie in Formel (65) angegeben beschreiben.

$$E_{\text{rot}}(I) = \frac{\hbar^2}{2\Theta} \cdot (I \cdot (I + 1)) \quad \text{mit } I = 0, 2, 4. \quad (65)$$

$\Theta$  ist hierbei das Trägheitsmoment,  $\hbar = 1,055 \cdot 10^{-34}$  Js ist das reduzierte Plank'sche Wirkungsquantum. Die  $\gamma$ -Übergänge innerhalb der Rotationsbande sind im Wesentlichen E2-Übergänge (Quadrupolübergänge) mit  $\Delta I = 2$ . Der Anteil der Übergänge höherer Ordnung, die mit einer Änderung des Kernspins um  $\Delta I = 4$  verbunden sind, ist vernachlässigbar. Es sollten also, falls die unteren Niveaus einer Rotationsbande nicht direkt durch den  $\beta$ -Zerfall gespeist werden, alle E2-Übergänge einer Kaskade etwa die gleiche Intensität haben.

Allgemein kann man bei der Aufstellung des Niveauschemas eines gg-Kerns anhand der  $\gamma$ -Energien und  $\gamma$ -Intensitäten oft unmittelbar die Lage des ersten angeregten Zustandes festlegen. Im zweiten Schritt wird dann versucht, hochenergetische  $\gamma$ -Energien als Übergänge in den Grundzustand zuzuordnen. Die verbleibenden  $\gamma$ -Linien ordnet man mithilfe des Ritz'schen Kombinationsprinzips ein, wobei sich Energien weiterer Niveaus ergeben.

Allerdings liefert das Ritz'sche Kombinationsprinzip häufig keine eindeutigen Ergebnisse. Zusätzliche Informationen durch Messung von  $\gamma\gamma(t)$ -Koinzidenzen mit zwei Ge-Detektoren können eindeutig darüber Auskunft geben, ob zwei  $\gamma$ -Übergänge zu einer Kaskade gehören.

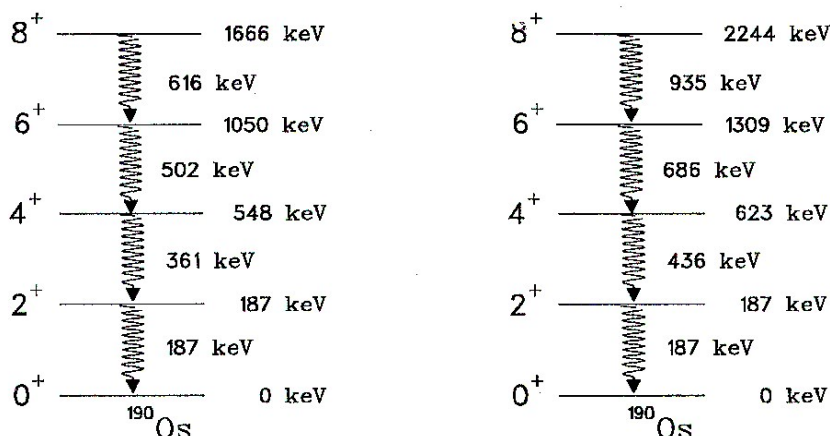


## 7.2.1 Durchführung: $\gamma$ -spektroskopische Untersuchung des $^{190\text{m}}\text{Os}$ -Zerfalls

$^{190\text{m}}\text{Os}$  wird durch Neutronenaktivierung erzeugt. Diese Methode wird in Abschnitt 6 ausführlich dargestellt, daher werden hier nur einige Grundlagen angesprochen. Eine Probe metallischen Osmiums enthält etwa 16 % stabiles  $^{189}\text{Os}$ . Durch Neutronenaktivierung entsteht  $^{190\text{m}}\text{Os}$  mit  $t_{1/2} = 9,9$  min, einem Kernspin  $I > 10$  und einigen MeV Anregungsenergie. Bei der Abregung sendet der Kern innerhalb weniger ps einige  $\gamma$ -Quanten aus und endet im Grundzustand  $^{190\text{g}}\text{Os}$ .

Der Versuch wird an einer Rohrpostanlage im Reaktorgebäude durchgeführt. Eine Probe von 1,2 mg Os wird mittels Druckluft in den Reaktorkern geschossen und 3 min bei einem Neutronenfluss von etwa  $10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  bestrahlt. 1 min nach der Bestrahlung wird das  $\gamma$ -Spektrum der Probe mit einem Ge(Li)-Detektor aufgenommen. Die Messung wird durch das Programm *Genie2000* von einem PC aus gesteuert. Das Programm übernimmt auch die Auswertung der Peakflächen. Nach der ersten Messung wird erneut eine Minute abklingen gelassen. Anschließend wird immer im Wechsel eine Minute gemessen und eine Minute abklingen gelassen, bis insgesamt 10 Messungen erreicht sind.

Die intensivsten Linien über 80 keV werden mit Hilfe einer Nuklidkarte und Tabellenwerken den verschiedenen Nukliden in der Probe zugeordnet.



**Abbildung 26:** Energieniveau-Schema für  $^{190\text{m}}\text{Os}$ . Links sind die realen Zustände, rechts die eines starren Rotators angegeben.

Für  $^{190\text{m}}\text{Os}$  wird die Halbwertszeit mit Hilfe von allen identifizierten Linien bestimmt (Mittelwert) und aus den gefundenen  $\gamma$ -Linien ein Niveauschema erstellt (siehe Abbildung 26). In erster Näherung lassen sich die angeregten Zustände als Rotationsbanden beschreiben (vgl. Formel (65)). Die Trägheitsmomente  $\Theta$ , die sich aus den ermittelten Energien der Niveaus  $E_{\text{rot}}$  gemäß Formel (65) ergeben, werden berechnet und mit dem Trägheitsmoment einer starren Kugel (gegeben in Formel (66)) verglichen.

$$\Theta = \int r^2 dm = \frac{2}{5} MR^2 \quad \text{mit } R = r_0 \cdot A^{\frac{1}{3}}. \quad (66)$$

Die molare Masse  $M$  muss hierbei in atomaren Masseneinheiten eingesetzt werden, dabei gilt  $1 \text{ amu} = 1,6606 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$ . Als Radius  $r_0$  wird  $1,2 \text{ fm}$  angenommen. Weiterhin muss die Umrechnung von Joule in Elektronenvolt beachtet werden, es gilt  $1 \text{ eV} = 1,602 \cdot 10^{-19} \text{ J}$ .

Welche Schlussfolgerung über die Kernstruktur kann man aus dem Vergleich der experimentell und theoretisch ermittelten Trägheitsmomente ziehen?

### 7.3 $\beta$ -Spektroskopie

Literatur: Keller, S. 49-59, 72-75  
 Lieser, S. 12-22, 211-222, 150-157, 171-183  
 Friedlander, S. 41-48, 74-93, 221-224, 252-262

Energiespektren von Elektronen aus dem  $\beta$ -Zerfall besitzen im Gegensatz zu den Spektren der  $\alpha$ - und  $\gamma$ -Strahlung keine diskreten Linien. Die Messung von  $\beta$ -Spektren dient vor allem der Gewinnung von Informationen über die Bindungsenergie von Atomkernen. Weiterhin kann man aus dem Verlauf des  $\beta$ -Spektrums nahe der maximalen Elektronenenergie auf eine mögliche Ruhemasse des Neutrinos schließen (Abbildung 27). Im Hinblick auf diese Frage wird insbesondere die in Formel (67) gezeigte Reaktion untersucht.



Für  $m_\nu = 0$  beträgt die maximale Elektronenenergie  $E_0$ , für  $m_\nu \neq 0$  liegt sie um den Wert  $m_\nu c^2$  niedriger.  $E_0/c^2$  entspricht hierbei der Massendifferenz zwischen Anfangs- und Endzustand. Der mit dem  ${}^3\text{H}$ -Zerfall gemessene obere Grenzwert für die Masse des Elektron-Neutrinos beträgt zurzeit etwa  $m_\nu \leq 7 \text{ eV}$ .

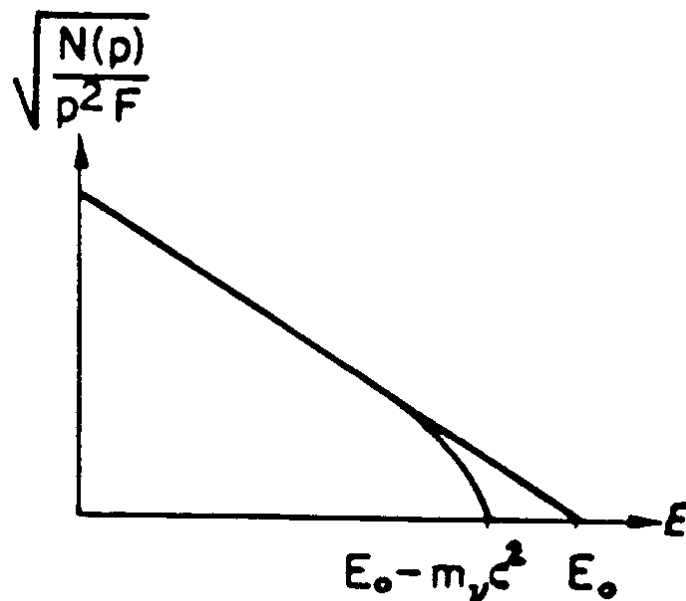


Abbildung 27:  $\beta$ -Spektrum in der Fermi-Curie Darstellung.

Für die Messung von  $\beta$ -Spektren kommen, wie bei der Gammaskopie, Szintillationsdetektoren oder Halbleiterdetektoren in Frage. Bei der Auswahl des Detektormaterials ist auf eine möglichst niedrige Ordnungszahl zu achten, damit die Empfindlichkeit für  $\gamma$ -Strahlung gering ist. Materialien mit hohen Ordnungszahlen haben zudem den Nachteil, dass sie  $\beta$ -Teilchen in erheblichem Maße wieder aus dem Detektor herausstreuen. Außerdem führen sie zur Erzeugung von Bremsstrahlung (siehe Formel (13)). Beide Effekte bewirken eine Intensitätszunahme der Impulshöhenspektren bei niedrigen Energien.

Als Szintillationsdetektoren für die  $\beta$ -Spektroskopie eignen sich Anthracen oder Plastik-Szintillatoren. Der Nachteil dieser Detektoren ist ihre verhältnismäßig schlechte Energieauflösung. Eine wesentlich bessere Energieauflösung erreicht man mit Halbleiterdetektoren, wobei wegen der niedrigen Ordnungszahl Si(Li)-Detektoren meist gegenüber Ge(Li)-Detektoren bevorzugt werden.

Selbst Plastik-Szintillatoren sprechen auf  $\gamma$ -Strahlung an (fast ausschließlich durch Comptonstreuung). Man kann trotzdem reine  $\beta$ -Spektren messen, indem man das Spektrum zusätzlich unter Verwendung eines Absorbers aufnimmt, der  $\beta$ -Strahlung völlig absorbiert, die  $\gamma$ -Strahlung aber kaum schwächt. Die Differenz der Spektren ergibt die Energieverteilung der  $\beta$ -Strahlung. Eine elegante Methode ist die Verwendung eines  $\beta$ -Teleskops: vor den Detektor, der die Energie der Strahlung misst ( $E$ -Detektor), wird ein sehr dünner ( $\Delta E$ )-Detektor gesetzt. Im  $\Delta E$ -Detektor geben die  $\beta$ -Teilchen einen geringen Anteil ihrer Energie ab und erzeugen so ein Signal, während die Gammastrahlung fast ungehindert hindurchgeht. Eine Koinzidenzschaltung zwischen beiden Detektoren sorgt dafür, dass nur  $\beta$ -Teilchen registriert werden.

Die Form eines  $\beta$ -Spektrums wird durch die Theorie von Fermi beschrieben, die entsprechend in Formel (68) wiedergegeben ist.

$$N(p)dp = \frac{g^2}{2\pi \cdot \pi^3 \cdot h^7 \cdot c^3} \cdot |M_{if}|^2 \cdot F(Z, p) \cdot p^2 \cdot (E_{\beta, \max} - E)^2 dp. \quad (68)$$

Dabei ist  $N(p)dp$  die Wahrscheinlichkeit, dass ein  $\beta$ -Teilchen im Impulsintervall zwischen  $p$  und  $(p + dp)$  emittiert wird,  $g$  ist die Kopplungskonstante der schwachen Wechselwirkung,  $M_{if}$  das Matrixelement des  $\beta$ -Zerfalls und  $F(Z, p)$  die Fermi-Funktion, die den Einfluss des elektrischen Feldes des Tochterkerns auf das emittierte Elektron beschreibt.

Zur Bestimmung der Endpunktsenergie  $E_{\beta, \max}$  eines  $\beta$ -Spektrums führt man einen Fermi-Curie-Plot durch. Das Matrixelement  $M_{if}$  wird hierbei als unabhängig von der  $\beta$ -Energie angenommen, was für einen erlaubten  $\beta$ -Zerfall gültig ist. Fasst man dann die in Formel (68) auftretenden Konstanten zusammen, erhält man durch Umformung Formel (69).

$$\sqrt{\frac{N(p)}{p^2 \cdot F(Z, p)}} = C \cdot (E - E_{\beta, \max}). \quad (69)$$

Die Auftragung des Wurzelausdrucks gegen die  $\beta$ -Energie sollte eine Gerade liefern (zumindest für den höherenergetischen Bereich), die die Abszisse bei  $E_{\beta, \max}$  schneidet. Durch diese Linearisierung des Spektrums ist eine genaue Bestimmung der Endpunktsenergie durch

Extrapolation möglich. Hierzu muss aus dem gemessenen Spektrum der kinetischen Elektronenenergie  $N(E)$  das Impulsspektrum  $N(p)$  nach Formel (70) berechnet werden.

$$N(p) = N(E) \cdot \frac{dE}{dp}. \quad (70)$$

Die Gesamtenergie  $E_t$  eines Elektrons setzt sich zusammen aus seiner kinetischen Energie  $E_{\text{kin}}$  und seiner Ruhemasse  $m_0$  (Formel (71)).

$$E_t = E_{\text{kin}} + m_0 c^2. \quad (71)$$

Weiterhin ist die Gesamtenergie gegeben durch Formel (72).

$$E_t = \sqrt{(pc)^2 + (m_0 c^2)^2}. \quad (72)$$

Aus Kombination der Formeln (71) und (72) ergibt sich Formel (73).

$$\frac{dE_{\text{kin}}}{dp} = \frac{dE_t}{dp} = \frac{pc^2}{E_t} = c \cdot \sqrt{1 - \frac{(m_0 c^2)^2}{E_t^2}} = c \cdot \sqrt{1 - \frac{(m_0 c^2)^2}{(E_{\text{kin}} + m_0 c^2)^2}}. \quad (73)$$

Mit  $m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$  und Einsetzen von Formel (73) in Formel (70) folgt das gesuchte Impulsspektrum in Formel (74).

$$N(p) = N(E) \cdot c \cdot \sqrt{1 - \frac{(511 \text{ keV})^2}{(E_{\text{kin}} + 511 \text{ keV})^2}}. \quad (74)$$

Die Fermi-Funktion findet man in Tabellenwerken (z.B.: H. Behrens und J. Jänecke, Landholt Börstein I/4 (1969)). In Abbildung 28 ist sie für den  $\beta$ -Zerfall für verschiedene Ordnungszahlen  $Z$  des Tochterkerns in Abhängigkeit vom Elektronenimpuls  $p$  aufgetragen. Der Elektronenimpuls  $p$  wird in Einheiten von  $m_0 c$  angegeben. In Abbildung 29 ist der Zusammenhang zwischen dem Impuls und der kinetischen Energie der Elektronen dargestellt.

Im Folgenden wird für die Messung von  $\beta$ -Spektren ein Ge(Li)-Detektor mit einem dünnen Berylliumfenster (0,25 mm) verwendet, damit die Elektronen beim Durchtritt nur wenig Energie verlieren. Weiterhin hat der Detektor ein besonders geringes aktives Volumen von  $0,5 \text{ cm}^3$ , um die Ansprechwahrscheinlichkeit gegenüber  $\gamma$ -Quanten klein zu halten.

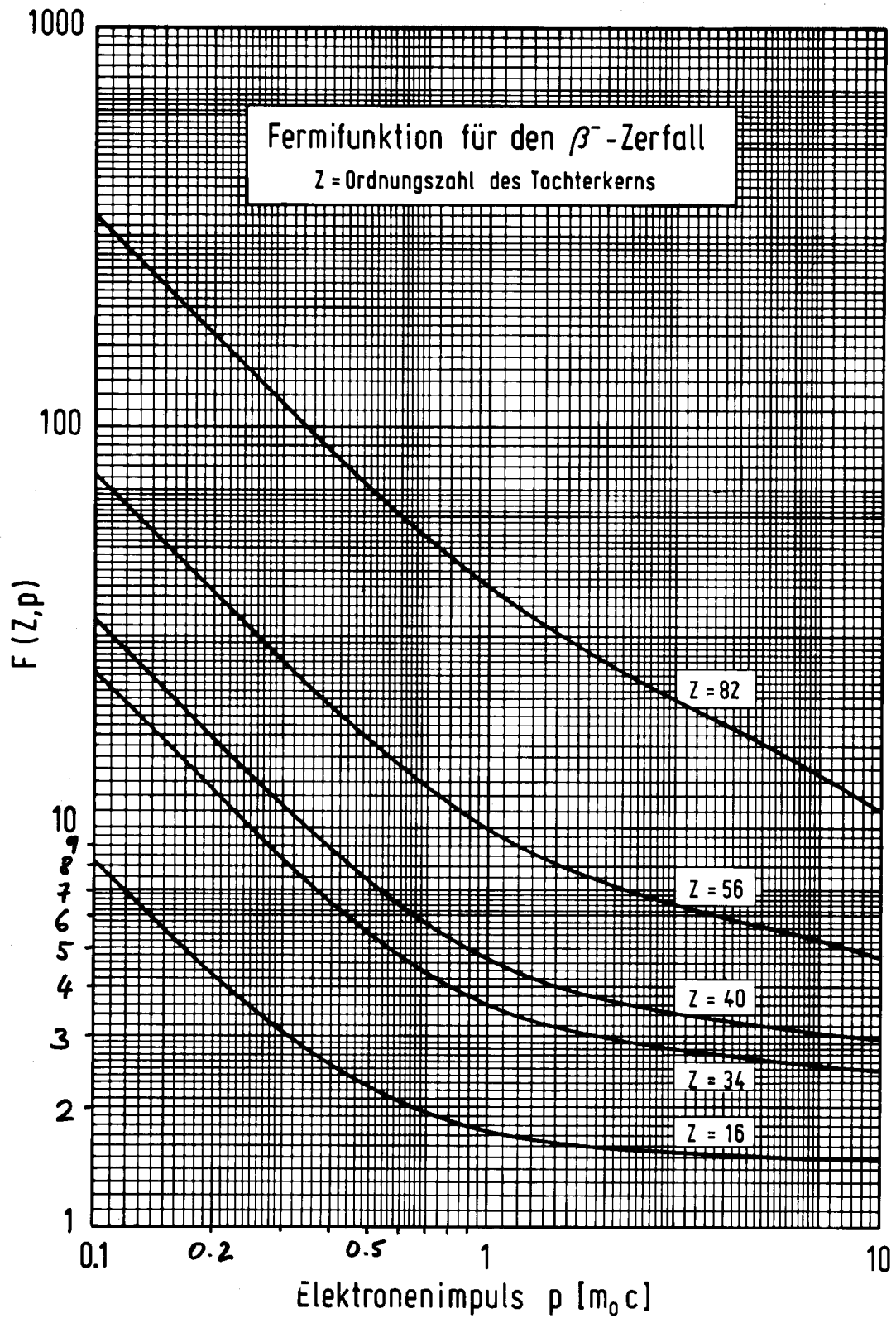


Abbildung 28: Die Fermi-Funktion für den  $\beta^-$ -Zerfall in Abhängigkeit vom Impuls  $p$  der Elektronen.

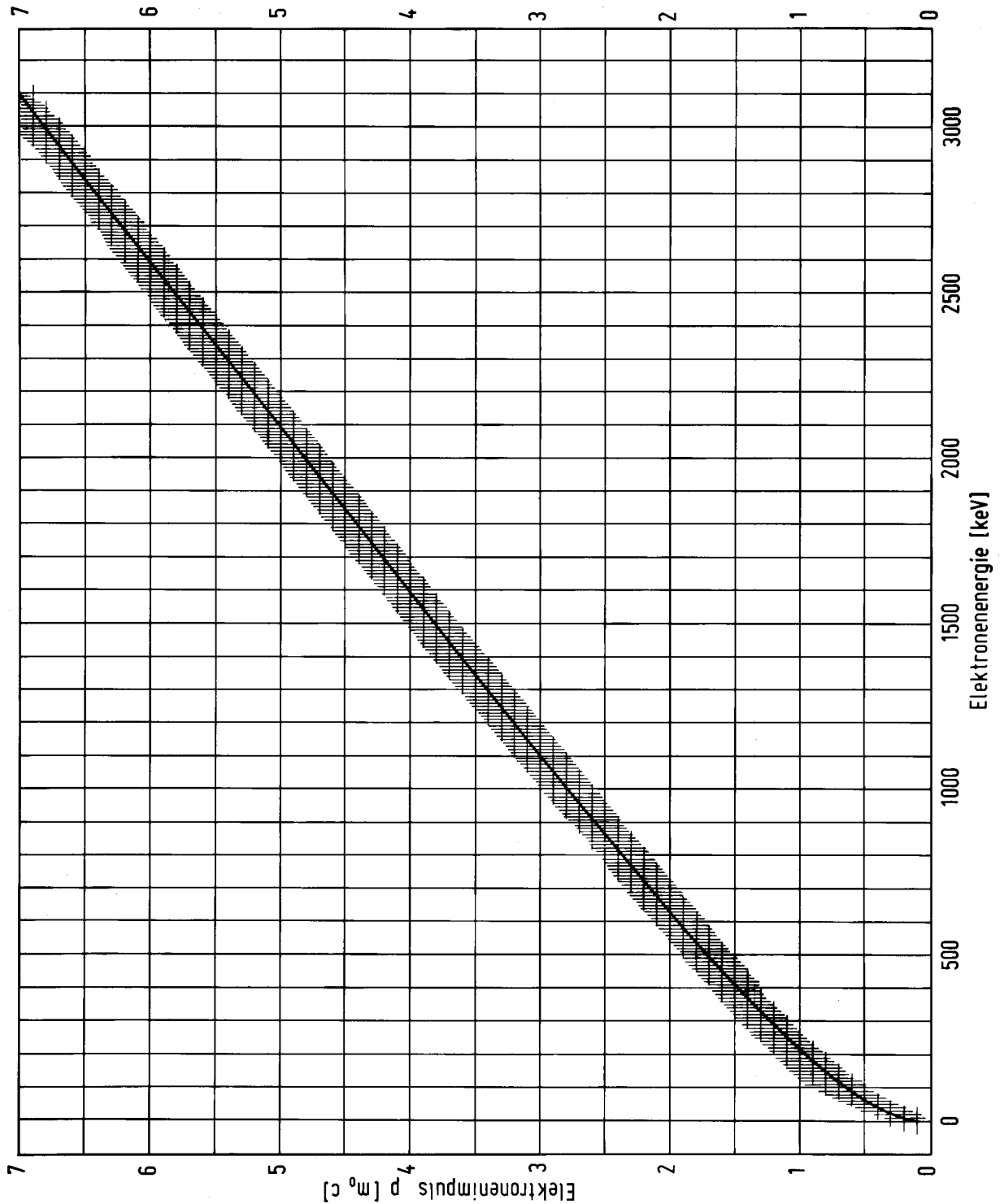


Abbildung 29: Der Zusammenhang zwischen Elektronenimpuls und kinetischer Energie der Elektronen.

### 7.3.1 Durchführung: Energiekalibrierung des $\beta$ -Spektrometers

Die Kalibrierung von  $\beta$ -Spektrometern erfolgt meist durch die Messung von Konversionselektronen. Häufig verwendete Standards sind  $^{207}\text{Bi}$  und  $^{137}\text{Cs}$ . Bei höheren Energien werden zur Kalibrierung oft bekannte Endpunktsenergien kontinuierlicher  $\beta$ -Spektrn herangezogen.

Im vorliegenden Fall werden zur Energiekalibrierung des als  $\beta$ -Spektrometer verwendeten Ge(Li)-Detektors die Konversionselektronen von  $^{137}\text{Cs}$  (624,2 keV) und von  $^{207}\text{Bi}$  (975,6 keV und 1051 keV) gemessen. Um Energieverluste der Elektronen in der Probe zu vermeiden, müssen sehr dünne Präparate verwendet werden, die mit 0,8 mg/cm<sup>2</sup> Mylar-Folie abgedeckt sind.

Die Spektren werden mit dem Vielkanalanalysator aufgenommen, die Messzeit beträgt jeweils 5 min. Am hochenergetischen Ende der Spektren findet man die oben angegebenen Konversionslinien. Oberhalb der Konversionslinien deuten sich schwach die Photopeaks der zugehörigen  $\gamma$ -Linien an (siehe Abbildung 30). Die Energien der Konversionslinien werden gegen die experimentell bestimmte Lage der Peaks aufgetragen. Die Messpunkte werden durch eine Gerade gefittet, die als Kalibrationskurve für die Bestimmung von  $\beta$ -Endpunktenergien verwendet werden kann.

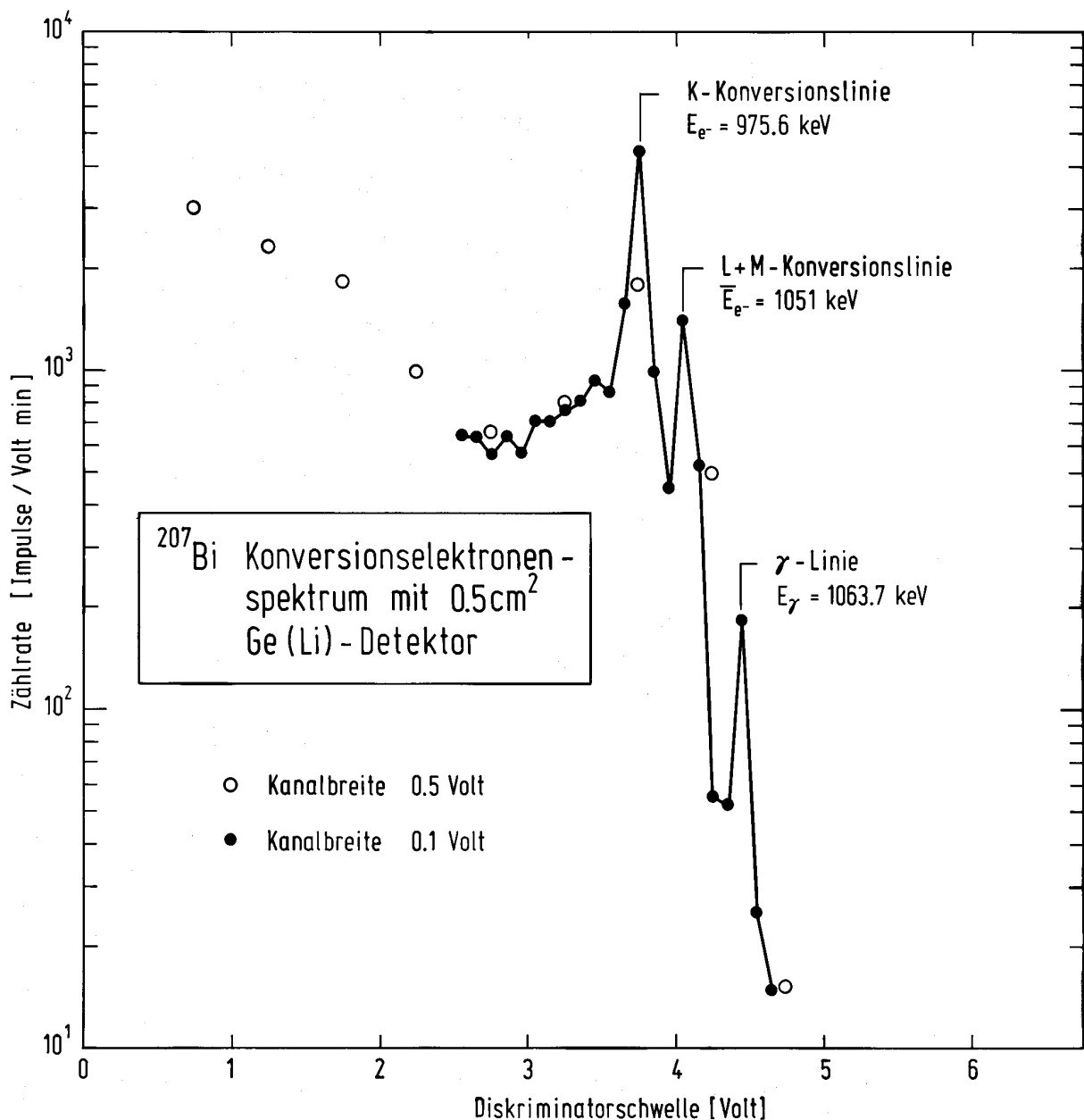


Abbildung 30: Konversionselektronenspektrum von  $^{207}\text{Bi}$ .

### 7.3.2 Durchführung: Bestimmung der Endpunktenergien von $\beta$ -Spektren

Mit der in Abschnitt 7.3.1 kalibrierten Detektoranordnung wird das  $\beta$ -Spektrum von  $^{32}\text{P}$  aufgenommen. Mit Hilfe von Abbildung 29 erhält man den Elektronenimpuls  $p$  in Einheiten von  $m_0c$  und mit diesem aus Abbildung 28 die Fermifunktion  $F(Z,p)$ .

Den Elektronenimpuls  $p$  kann man auch aus der gemessenen kinetischen Energie berechnen. Aus den Betrachtungen in den Formeln (71) bis (74) erhält man hierzu Formel (75).

$$\frac{p}{m_0c} = \sqrt{\left(\frac{E_{\text{kin}} + 511 \text{ keV}}{511 \text{ keV}}\right)^2 - 1}. \quad (75)$$

Mit Formel (74) wird das Energiespektrum der Elektronen in das Impulsspektrum umgerechnet. Für jeden Datenpunkt bildet man den Wurzelausdruck im letzten Ausdruck von Formel (73) und trägt ihn linear gegen die Energie auf.

Bei hohen Energien ist dieser Fermi-Curie-Plot im Allgemeinen linear. Bei niedrigen Energien sind jedoch durch Rückstreuungseffekte und Emission von Bremsstrahlung Abweichungen von der Linearität zu erwarten. Zur Bestimmung der Endpunktenergie darf daher nur der lineare, hochenergetische Bereich des Fermi-Curie-Plots verwendet werden.

## 7.4 Delayed Neutron Activation Analysis (DNAA)

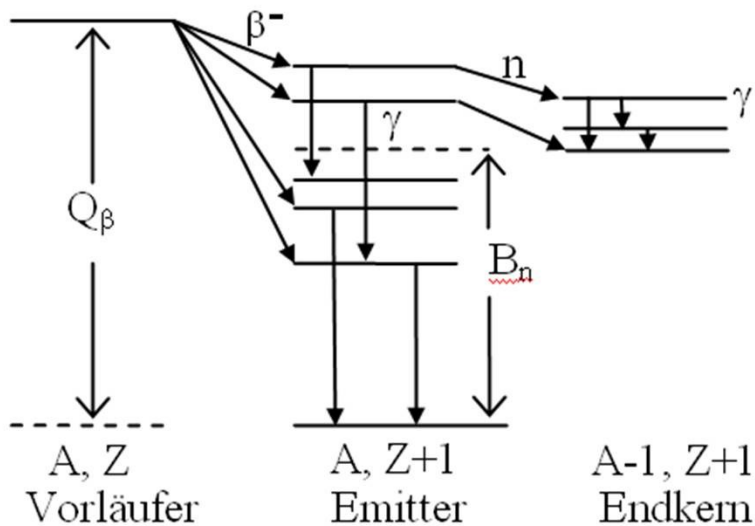
### 7.4.1 Theoretische Grundlagen

#### a) Prompte und verzögerte Neutronen

Einige Nuklide ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{233}\text{U}$ ) können durch thermische Neutronen ( $E = 0,025 \text{ eV}$ ) gespalten werden. Die beiden stark angeregten Spaltfragmente gehen durch sofortige Emission von prompten Neutronen (auf einer Zeitskala von  $10^{-14} - 10^{-15} \text{ s}$ ) und  $\gamma$ -Strahlung in die primären Spaltprodukte über. Wegen des Neutronenüberschusses im Kern wandeln sich diese durch  $\beta$ -Zerfall und Emission von  $\gamma$ -Strahlung in sekundäre Spaltprodukte um. Die  $\beta$ -Zerfälle setzen sich fort, bis schließlich stabile Kerne gebildet werden.

Ist nun die Gesamtenergie  $Q_\beta$ , die bei einem  $\beta$ -Zerfall eines Spaltproduktes frei wird, größer als die Bindungsenergie  $B_n$  des letzten Neutrons im Tochterkern, kann es vorkommen, dass der Tochterkern Neutronen emittiert. Diese Neutronenabgabe erfolgt sofort nach dem vorhergehenden  $\beta$ -Zerfall. Die entstehenden Neutronen treten also mit der Halbwertszeit des  $\beta$ -Strahlers verzögert nach der Kernspaltung auf. Zur Unterscheidung von den prompten Neutronen werden sie als  $\beta$ -verzögerte Neutronen bezeichnet. Der  $\beta$ -Strahler, dessen Tochterkern die verzögerten Neutronen emittiert, heißt Neutronenvorläufer. Abbildung 31 zeigt ein exemplarisches Zerfallsschema zur Emission  $\beta$ -verzögerter Neutronen.





**Abbildung 31:** Zerfallsschema zur Emission  $\beta$ -verzögerter Neutronen.

Die Emission  $\beta$ -verzögerter Neutronen ist bevorzugt, wenn die Bindungsenergie des emittierten Neutrons klein ist. Dies ist der Fall, wenn der Neutronenemitter eine Neutronenzahl besitzt, die gerade um eins größer als eine magische Neutronenzahl ist. Wichtige Neutronenvorläufer sind mit  $N = 52$  (magische Neutronen-Zahl 50) und  $N = 84$  (magische  $N$ -Zahl 82)  $^{87}\text{Br}$  bzw.  $^{137}\text{I}$ . Bis heute sind ca. 90 Neutronenvorläufer bekannt.

Es ist üblich, Neutronenvorläufer mit ähnlichen Halbwertszeiten in Gruppen zusammenzufassen. Tabelle 7 zeigt am Beispiel der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  die durchschnittlichen Halbwertszeiten der Neutronenvorläufergruppen, den Anteil  $\beta_i$  der  $\beta$ -verzögerten Neutronen an der Gesamtzahl der gespaltenen Kerne, sowie die wichtigsten Neutronenvorläufer in der Gruppe.

**Tabelle 7:** Eigenschaften verzögerter Neutronen (Reactor Physics Constants, ANL-5800).

Gruppe	$t_{1/2}/s$	$\beta_i/\%$	Vorläufer
1	55,72	0,021	$^{87}\text{Br}$
2	22,72	0,140	$^{88}\text{Br}, ^{137}\text{I}$
3	6,22	0,126	$^{89}\text{Br}, ^{138}\text{I}$
4	2,30	0,253	$^{90}\text{Br}, ^{139}\text{I}$
5	0,61	0,074	$^{140}\text{I}$
6	0,23	0,027	$^{93}\text{Br}$
Summe		0,641	

Der Gesamtanteil an verzögerten Neutronen bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  beträgt 0,641 %, das weitaus größte Anteil mit 99,359 % sind demnach prompte Neutronen.

### b) Bedeutung der verzögerten Neutronen für die Steuerung von Kernreaktoren

Die mittlere Zeit zwischen dem Entstehen der Neutronen bei der Kernspaltung und der von dieser verursachten erneuten Kernspaltung wird als Lebensdauer  $l$  der Neutronen bezeichnet.

$N(t)$  bezeichnet die Anzahl der Neutronen im Reaktor zum Zeitpunkt  $t$ . Zum Zeitpunkt  $t + l$  ist eine neue Neutronengeneration erzeugt worden mit der Anzahl  $N(t + l)$ . Der Multiplikationsfaktor  $k$  ergibt sich nach Formel (76).

$$k = \frac{N(t+l)}{N(t)}. \quad (76)$$

Für  $N(t + l) = N(t)$  ist  $k = 1$ , der Reaktor ist kritisch. Die zeitliche Änderung der Neutronenzahl  $N(t)$  wird beschrieben durch Formel (77).

$$N(t) = N_0 e^{\frac{k-1}{l}t} = N_0 e^{\frac{t}{T}}. \quad (77)$$

Die Reaktorperiode  $T = l/(k - 1)$  gibt die Zeit an, in der sich die Neutronenzahl um den Faktor  $e$  erhöht. Würden in einem Kernreaktor allein prompte Neutronen mit  $l = 10^{-4}$  s existieren, ergäbe eine Änderung des Multiplikationsfaktors von 1 auf 1,001 in einer Sekunde einen Leistungszuwachs um 22000 (s. Formel (78)).

$$\frac{N(1 \text{ s})}{N_0} = e^{\frac{1,001-1 \text{ s}}{0,0001 \text{ s}} \cdot 1 \text{ s}} = 22000. \quad (78)$$

Diese Dynamik wäre durch technische Maßnahmen nicht beherrschbar. Die Steuerung der Kettenreaktion wird erst dank der Existenz der verzögerten Neutronen möglich. Wenn man die verzögerten Neutronen zu einer einzigen Gruppe mit gemittelten Parametern zusammenfasst, erhält man eine mittlere Lebensdauer  $l_{\text{verz}}$  der verzögerten Neutronen von 13 s. Die effektive Lebensdauer  $l_{\text{eff}}$  für prompte und verzögerte Neutronen ergibt sich dann nach Formel (79).

$$l_{\text{eff}} = l_{\text{verz}} \cdot 0,00641 + l_{\text{prompt}} \cdot 0,99359 = 0,083 \text{ s} \quad (79)$$

Berechnet man nun mit diesem Wert den Leistungszuwachs eines Reaktors innerhalb 1 s bei einer Erhöhung des Multiplikationsfaktors von 1 auf 1,001 erneut, ergibt sich also, wie in Formel (80) zu sehen, eine Erhöhung um lediglich 1 %. Diese ist technisch ohne Schwierigkeiten beherrschbar.

$$\frac{N(1 \text{ s})}{N_0} = e^{\frac{1,001-1 \text{ s}}{0,083 \text{ s}} \cdot 1 \text{ s}} \approx 1,01. \quad (80)$$

### c) Aktivierungsanalyse mit verzögerten Neutronen (DNNA)

Da die Anzahl der emittierten verzögerten Neutronen proportional zur Anzahl der Kernspaltungen ist und die Anzahl der Spaltungen wiederum proportional zur Menge des spaltbaren Nuklids, kann die Messung der Emission  $\beta$ -verzögerter Neutronen zur analytischen Bestimmung herangezogen werden.

Die experimentellen Parameter wie Neutronenfluss und Detektornachweiswahrscheinlichkeit sind für eine gegebene Messanordnung konstant. Bestrahlungs-, Verzögerungs- und Messzeit können ebenfalls konstant gehalten werden. Die in

einem geeigneten Zähler ermittelte Zählrate  $C$  an verzögerten Neutronen ist dann direkt der Masse  $m$  des spaltbaren Nuklids proportional, wobei noch die Untergrundzählrate  $B$  zu berücksichtigen ist (zusammengefasst in Formel (81)).

$$C = K \cdot m + B. \quad (81)$$

Eine Kalibrierung des Messplatzes erfolgt durch Bestrahlung unterschiedlicher Massen des spaltbaren Nuklids.

Der Messplatz besteht im Wesentlichen aus der Neutronenquelle für die Spaltung, einem Transportsystem für die Probe und dem Neutronenzähler mit entsprechender Elektronik. Als Neutronenquelle dient in der Regel ein Reaktor. Zum Transport der Probe in die Bestrahlungsposition wird eine Rohrpostanlage verwendet. Die Bestrahlungszeit beträgt ein bis zwei Minuten. Die Verzögerungszeit von 15-30 s setzt sich aus der Transportzeit der Rohrpost und einer absichtlichen Wartezeit, in der Störaktivitäten abklingen, zusammen. Die Messzeit beträgt eine oder zwei Minuten.

Zur Detektion müssen die hochenergetischen  $\beta$ -verzögerten Neutronen zunächst auf thermische Energie (z.B. mit Paraffin) gebracht werden. Nun können sie in Zählrohren, die mit  $^3\text{He}$  gefüllt sind, die in Formel (82) gezeigte Kernreaktion auslösen.



Das hierbei entstehende  $\gamma$ -Quant hat eine Energie von  $E_\gamma = 770$  keV. Das Proton und der Tritium-Kern führen Sekundärionisationen im Zählgas aus. Durch die an den Zählrohren anliegende Hochspannung fließt kurzzeitig ein Strom. Dieser Impuls wird verstärkt und zu einem Zähler weitergeleitet.  $\gamma$ -Strahlen ionisieren das Zählgas ebenfalls, allerdings sind ihre Energien geringer als die des Protons und des Tritium-Kerns, sodass man die entsprechenden Impulse mittels eines Diskriminators unterdrücken kann.

Die Neutronenzählrohre sind nach außen gegen Neutronenstrahlung aus der Umgebung (z. B. durch den Kernreaktor) mit Borparaffin abgeschirmt. Die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$  ist der Quotient aus der Zahl der registrierten Neutronen und der Zahl der von der Probe emittierten Neutronen. Sie wird – sofern erforderlich – durch Messen einer Neutronenquelle (z.B.  $^{226}\text{Ra}/\text{Be}$  oder  $^{241}\text{Am}/\text{Li}$ , Siehe Abschnitt 6) bekannter Neutronenemissionsrate ermittelt.

#### d) Mögliche Störungen bei der Anwendung der DNAA

Die Bestimmung von  $^{235}\text{U}$  über  $\beta$ -verzögerte Neutronen kann auf zwei Arten gestört werden:

1. Es werden Neutronen registriert, die nicht aus einer Spaltung von  $^{235}\text{U}$  stammen. Andere durch thermische Neutronen spaltbare Nuklide wie  $^{239}\text{Pu}$  oder  $^{233}\text{U}$  haben ebenfalls Neutronenvorläufer unter ihren Spaltprodukten und stören die Bestimmung. Sie treten jedoch nur in Ausnahmefällen in Proben auf. In jedem Kernreaktor ist neben den thermischen Neutronen auch ein geringer Fluss an schnelleren Neutronen vorhanden. Ihre Energie ist groß genug, um neben  $^{235}\text{U}$  auch die Nuklide  $^{232}\text{Th}$  und  $^{238}\text{U}$  zu spalten. Um den Anteil der verzögerten

Neutronen zu ermitteln, die durch Spaltung mit schnellen Neutronen entstehen, kann man folgendermaßen vorgehen: Man bestrahlt einen Teil der Probe ohne und einen Teil mit einer Umhüllung aus Cadmium. Cadmium hat die Eigenschaft, den Anteil der thermischen Neutronen aus dem Neutronenstrahl des Reaktors zu absorbieren und die schnellen durchzulassen. Die Bestrahlung in der Cadmium-Hülle liefert daher nur den Anteil an verzögerten Neutronen, der durch schnelle Neutronen induziert wurde.

Eine weitere Störung kann durch den Neutronenstrahler  $^{17}\text{N}$  mit einer Halbwertszeit von 4,17 s entstehen.  $^{17}\text{N}$  entsteht bei der Bestrahlung von sauerstoffreichen Proben (Reaktion:  $^{17}\text{O}(n, p)^{17}\text{N}$ ).

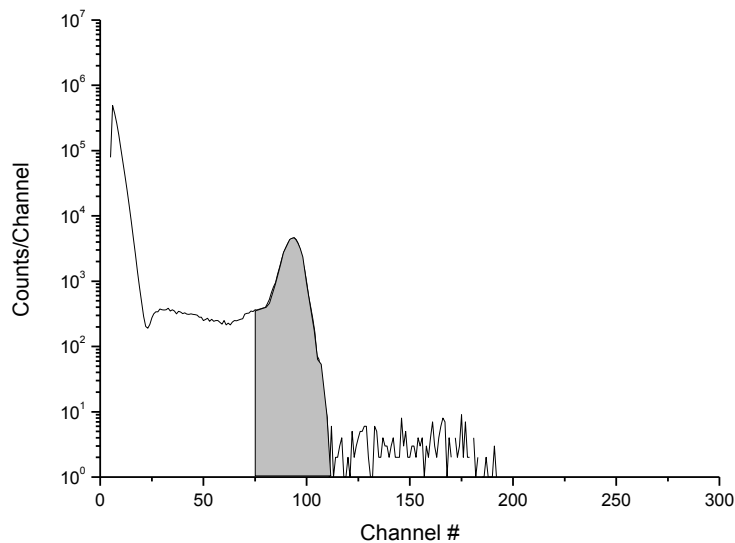
Die Störung ist dadurch zu beseitigen, dass man die Zerfallszeit nach der Messung so lange wählt, dass  $^{17}\text{N}$  weitgehend abgeklungen ist.

Störungen können auch dann auftreten, wenn in der Probe durch die Aktivierung hohe Aktivitäten an  $\gamma$ -Strahlern der Energie  $> 2$  MeV auftreten. Solche hochenergetischen  $\gamma$ -Strahlen können mit Materie ( $\gamma, n$ )-Reaktionen auslösen.

2. Verzögerte Neutronen können sich der Messung durch Kernreaktionen in der Probe entziehen. Cadmium, Lithium und Bor besitzen neutronenabsorbierende Isotope, die zum Verlust an verzögerten Neutronen in der Probe führen können.  $^6\text{Li}$  reagiert z.B. mit thermischen Neutronen nach  $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ .

#### 7.4.2 Durchführung: DNAA-Versuche mit $^{235}\text{U}$ und $^{232}\text{Th}$

Die Bestrahlungen werden an der Rohrpost II des Forschungsreaktors Triga-Mark II durchgeführt. Die Probe wird zunächst in eine Bestrahlungskapsel aus Polyethylen verpackt, die dann in eine Fahrkapsel eingebracht wird. Diese Fahrkapsel wird in das Rohrpostsystem gegeben und zur Bestrahlungsposition geschossen. Die Bestrahlungszeit beträgt 2 min bei einer Reaktorleistung von 100 kW. In der Bestrahlungsposition beträgt der Fluss an thermischen Neutronen  $\phi_{\text{th}} = 1,7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  und der Fluss an epithermischen (schnelleren) Neutronen  $\phi_{\text{epi}} = 4,6 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . Nach der Bestrahlung wird die Probe wieder zurücktransportiert, von der Fahrkapsel befreit und in den Neutronenzähler eingebracht. Nach einer Verzögerungszeit von 20 s wird die Neutronenmessung gestartet und eine Minute lang gezählt. Zur Detektion wird ein Neutronenzähler, bestehend aus 12, in zwei Kreisen um das Probenbehälterrohr angeordneten He-3-Zählrohren verwendet. Messungen mit einer Neutronenquelle liefern eine Detektoreffizienz von 18 %. Die Zählrohre werden bei einer Hochspannung von 1500 V betrieben. Die Zählimpulse werden mit einem Vielkanalanalysator sortiert, so dass ein Spektrum resultiert, wie es in Abbildung 32 gezeigt ist. Für die Auswertung wird die Zählrate in einem geeigneten Kanalbereich herangezogen (in Abbildung 32 grau unterlegt). Der niederenergetische Untergrund wird durch Strahlung gebildet, der höherenergetische Untergrund durch Höhenstrahlung.



**Abbildung 32:** Spektrum mit gewähltem Kanalbereich für die Auswertung.

Zur Kalibrierung wurden verschiedene Mengen einer  $^{235}\text{U}$ -Lösung verwendet (Masse  $0,3 - 1,0 \mu\text{g } ^{235}\text{U}$ ). Jede Gruppe misst unterschiedliche Proben. Mit den Werten aller Gruppen wird die Kalibriergerade erstellt.

Anschließend werden unbekannte Uranproben gemessen und deren Gehalt ermittelt. Bei einer Probe handelt es sich um Uran aus einer Chemikalienflasche (Uranylнитrat-hexahydrat). Hierbei ist der Gesamtgehalt an Uran bekannt. Mit dem gemessenen  $^{235}\text{U}$ -Anteil kann der Anreicherungsgrad ausgerechnet werden.

Eine Fahrkapsel wurde mit Cd ausgekleidet. Dies ermöglicht Bestrahlungen, bei denen die thermischen Neutronen abgefangen werden und nur schnellere Neutronen für Spaltungen zur Verfügung stehen. Ein Teil der  $^{235}\text{U}$ -Kalibrierstandards wird mit Cd-Hülle bestrahlt und dann gemessen. Eine zweite Kalibriergerade wird erstellt und mit der Gerade, die aus den Bestrahlungen ohne Cd-Hülle resultiert, verglichen.

Zur Untersuchung der Spaltung von  $^{232}\text{Th}$  werden Th-Proben mit und ohne Cd-Hülle bestrahlt. Die Messergebnisse werden verglichen. Die Auswertung erfolgt auch hier gruppenübergreifend.



## 1. Aufstellung eines Zerfallsschemas

### 1.1 Auswertung des Spektrums von $^{190m}\text{Os}$

Aus dem Spektrum sucht jede Gruppe die  $\gamma$ -Linien des  $^{190m}\text{Os}$ , bestimmt deren Energien und Intensitäten und ordnet sie zu. Welche Nuklide ausser  $^{190m}\text{Os}$  lassen sich nachweisen?

### 1.2 Erstellung des Energieniveau-Schemas

Intensitäten der einzelnen  $\gamma$ -Linien gegen Zeit auftragen. Die Linien herausuchen, die exponentiell abfallen. HWZ von  $^{190m}\text{Os}$  bestimmen und Energieniveauschema aufstellen. Hinweis: nur  $\Delta I=2$  beobachtbar; für Berechnung jedoch Abstand zum GZ berücksichtigen.  $\Theta$  mit (1) für alle Niveaus berechnen.  $\Theta$  zudem aus (2) theoretisch berechnen.

$$(1) \quad E_{\text{rot}}(I) = \frac{\hbar^2}{2\Theta} \cdot (I \cdot (I + 1)) \quad \text{mit } I = 0, 2, 4.$$

$$(2) \quad \Theta = \int r^2 dm = \frac{2}{5} MR^2 \quad \text{mit } R = r_0 \cdot A^{\frac{1}{3}} = 1,2 \text{ fm.}$$

### 2. Die Energiekalibrierung des $\beta$ -Spektrometers

Anhand der Spektren der Konversionselektronen der Standards von  $^{137}\text{Cs}$  (624 keV) und  $^{207}\text{Bi}$  (976 keV, 1051 keV) werden die Eichkoeffizienten ermittelt. Messzeit: 5 min.

### 3. Endpunktenergie des $\beta$ -Spektrums von $^{32}\text{P}$

Mit der geeichten Messanordnung wird das  $\beta$ -Spektrum des  $^{32}\text{P}$ -Präparats aufgenommen (5 min). Mit diesem Spektrum wird ein Fermi-Curie Plot erstellt (siehe Skript Abschnitt 7.3).

Die Endpunktbestimmung wird nur mit dem letzten, linearen Teil der Fermifunktion durchgeführt.

## 4. DNAA

Wichtig: stets aufschreiben, welche Proben wann gemessen wurden.

Die Proben werden 2 min mit dem Rohrpostsystem II im Reaktor bestrahlt. 20 s abklingen lassen, 1 min im  $^3\text{He}$ -Zählrohr messen. Bei 1. Messung am Messcomputer sinnvolle Kanäle selektieren, später nicht mehr verändern.

### Stammösungen:

Stammlösung	$^{235}\text{U}$ -Gehalt/ $\mu\text{g}$	Probe	Stamm-Lsg/ $\mu\text{l}$
Uranylnitrat-Stammlösung (Probe 1)	0,30	Pr-1	100
214,8 mg $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ pro 50 ml	0,45	Pr-2	15
Uran Stammlösung: (Probe 2 und 3)	0,60	Pr-3	25
0,5 mg U/50ml Lösung	1,00	Pr-4	15
Ammoniumdiuranat-Stamm-lsg: (Proben 4-6)		Pr-5	20
141,7 mg $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ pro 50 ml		Pr-6	30
Thorium Stammlösung		Th 1	50
134 mg $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ pro 50 ml		Th 2	100

Auswertung: Werte der Standards mit anderen Gruppen austauschen, Kalibrationskurven erstellen und Steigungen vergleichen (mit/ohne Cd-Abschirmung).  $^{235}\text{U}$  Masse und Anreicherung der unbekannteren Proben bestimmen.

## 8. Nachweis der Kernspaltung mittels Mitfällung von Radioisotopen durch Mischkristallbildung

Literatur: Keller, S. 114-120  
Lieser, S. 279-297  
Friedlander, S. 158-170

Wenn ein Element der Ordnungszahl  $Z$  mit Neutronen beschossen wird, so können im Allgemeinen Radioisotope nach dem folgenden Schema entstehen:

$Z + 2$	durch $(n, \gamma)$ -Reaktion und zwei nachfolgende $\beta$ -Zerfälle
$Z + 1$	durch $(n, \gamma)$ -Reaktion und $\beta$ -Zerfälle
$Z$	durch $(n, \gamma)$ -Reaktion oder $(n, 2n)$ -Reaktion
$Z - 1$	durch $(n, p)$ -Reaktion
$Z - 2$	durch $(n, \alpha)$ -Reaktion

Diese Zusammenhänge waren vor der Entdeckung der Kernspaltung bekannt. Beim Beschuss von Uran ( $Z = 92$ ) mit Neutronen sollten demnach Radioisotope des Thoriums ( $Z = 90$ ), des Protactiniums ( $Z = 91$ ) und der Elemente mit  $Z = 93$  und  $94$  entstehen. Es wurden jedoch sehr viel mehr Radioisotope gefunden, darunter auch solche, die dem chemischen Verhalten nach Radiumisotope ( $Z = 88$ ) sein konnten, da sie wie bereits bekannte Radiumisotope von allen möglichen Ba-Niederschlägen mitgefällt wurden.

Hahn und Strassmann versuchten, die vermeintlichen Radiumisotope durch fraktionierte Fällung der Ba-Salze anzureichern. Durch wiederholte fraktionierte Fällung von  $\text{BaCl}_2$  hatten M. und P. Curie schon 1902 das erste Radium rein dargestellt. Mit diesem erprobten Verfahren gelang es jedoch nicht, die aus dem Uran erzeugten ‚Radiumisotope‘ von Barium abzutrennen, weil es sich in Wirklichkeit um Ba-Isotope handelte, die durch Spaltung von Urankernen entstanden waren.

Im Folgenden werden die durchgeführten Fällungsexperimente zur Unterscheidung zwischen Barium und Radium als mögliche Produkte der Reaktion von  $^{235}\text{U}$  mit Neutronen allgemein wiedergegeben. Ziel des anschließend beschriebenen Praktikumsversuchs ist es, diese Experimente nachzuvollziehen und dadurch selbst einen Nachweis für die Kernspaltung zu erbringen.

Man geht aus von einer Lösung, die das bei der Kernspaltung gebildete und zu identifizierende Element X (Ba oder Ra) enthält sowie  $^{224}\text{Ra}$  als Tracer. Anschließend gibt man eine makroskopische Menge inaktiven Bariums ( $^{\text{nat}}\text{Ba}$ ) hinzu. Diese Lösung wird in verschiedenen Fraktionen (1, 2, 3, 4, 6, 8 ml) mit derselben Konzentration aufgeteilt. Durch Zugabe von  $\text{CrO}_4^{2-}$ -Ionen wird in jeder Fraktion dieselbe (im Volumen von 1 ml Lösung enthaltene) Bariummenge als  $\text{BaCrO}_4$  ausgefällt.

Bei der Fällung oder Kristallisation von wägbaren Substanzmengen können Mikromengen von Radioisotopen (hier: Element X und  $^{224}\text{Ra}$ ) durch Mischkristallbildung mitgerissen werden. Im Gleichgewicht verteilt sich die Mikromenge  $U$  in charakteristischer Weise zwischen den Kristallen (Index  $f$ ) und der gesättigten Lösung (Index  $l$ ) der Makrokomponente  $W$  (hier:  $^{\text{nat}}\text{Ba}$ ).

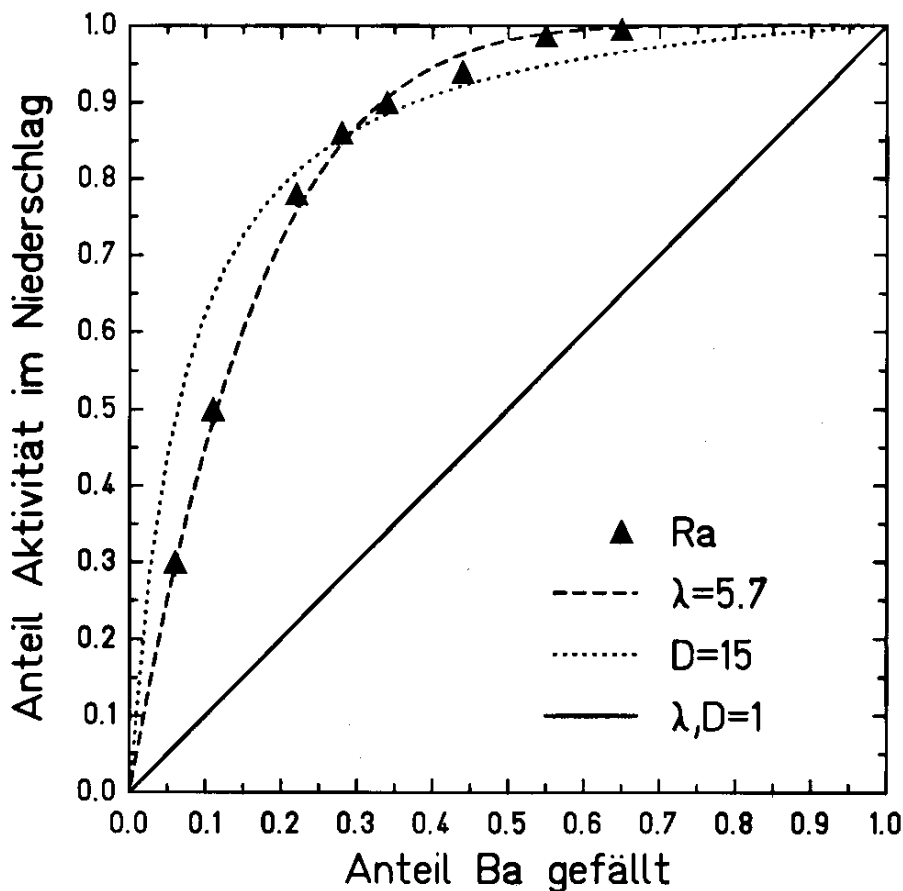
Für eine homogene Verteilung im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Verteilungskoeffizienten  $D$  gilt dann Formel (83).

$$\frac{U_f}{U_l} = D \cdot \frac{W_f}{W_l} \quad (83)$$

Besteht das thermodynamische Gleichgewicht nur zwischen der Lösung und einer kleinen Oberflächenschicht des Kristalls, so wird eine in Formel (84) angegebene logarithmische Verteilung beobachtet ( $\lambda$ -Verteilungskoeffizient).

$$\log\left(\frac{U_f+U_l}{U_l}\right) = \lambda \cdot \log\left(\frac{W_f+W_l}{W_l}\right) \quad (84)$$

Durch die Messung der  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivität des  $\text{BaCrO}_4$ -Niederschlags lässt sich die Menge des mitgefällten  $^{224}\text{Ra}$  ( $\alpha$ -Strahler) und des Elements X (Ba als  $\beta$ -Strahler bzw. Ra als  $\alpha$ -Strahler) ermitteln. Trägt man die durch  $\alpha$ - und  $\beta$ -Messung des  $\text{BaCrO}_4$ -Niederschlags bestimmten relativen Anteile des gefällten  $^{224}\text{Ra}$  und des Elements X gegen den Anteil des gefällten  $^{\text{nat}}\text{Ba}$  auf, so erhält man Abbildung 33. Die Verteilungskoeffizienten für Ra (schwarze Dreiecke) sind  $> 1$ .



**Abbildung 33:** Fällung verschiedener Mengen von  $\text{BaCrO}_4$  aus einer Lösung, die neben inaktivem Barium noch mikroskopische Mengen von  $^{224}\text{Ra}$  als Tracer enthält.



Die entsprechenden Werte des bei der Kernspaltung gebildeten Elements X sollten sich hingegen um die durchgezogene Linie verteilen, die einem Verteilungskoeffizienten von  $\lambda = D = 1$  entspricht. Erhält man dies als Ergebnis des Experiments, so ist gezeigt, dass das bei der Kernspaltung gebildete Element X chemisch identisch ist mit  $^{nat}\text{Ba}$ .

Ausgehend vom Massenwirkungsgesetz lässt sich der Kurvenverlauf in Abbildung 33 ableiten. Die mathematische Herleitung wird für das Beispiel einer homogenen Verteilung zwischen der Mikrokomponente Ra und der Makrokomponente  $^{nat}\text{Ba}$  durchgeführt (entsprechend erhält man den Kurvenverlauf bei einer logarithmischen Verteilung).

Die Gleichgewichtskonstanten  $K_{\text{Ba}}$  und  $K_{\text{Ra}}$  für die Komplexierungsreaktionen von Barium bzw. Radium mit Chromat sind in den Formeln (85) und (86) angegeben. Eckige Klammern geben hierbei Konzentrationen an.

$$K_{\text{Ba}} = \frac{[\text{natBaCrO}_4]}{[\text{natBa}^{2+}][\text{CrO}_4^{2-}]} \quad (85)$$

$$K_{\text{Ra}} = \frac{[\text{RaCrO}_4]}{[\text{Ra}^{2+}][\text{CrO}_4^{2-}]} \quad (86)$$

Setzt man diese beiden Gleichgewichtskonstanten miteinander ins Verhältnis, so ergibt sich daraus nach Formel (87) der Verteilungskoeffizient  $D$ .

$$\frac{K_{\text{Ra}}}{K_{\text{Ba}}} = \frac{[\text{RaCrO}_4]}{[\text{natBaCrO}_4]} \cdot \frac{[\text{natBa}^{2+}]}{[\text{Ra}^{2+}]} = D. \quad (87)$$

Umstellen dieser Formel liefert dann Formel (88).

$$\frac{[\text{Ra}^{2+}]}{[\text{RaCrO}_4]} = \frac{1}{D} \cdot \frac{[\text{natBa}^{2+}]}{[\text{natBaCrO}_4]} \quad (88)$$

Die Anteile an gefällttem Ra und  $^{nat}\text{Ba}$  an der jeweiligen Gesamtmenge sind gegeben durch  $f_{\text{Ra}}$  und  $f_{\text{Ba}}$  (in den Formeln (89) und (90)).

$$f_{\text{Ra}} = \frac{[\text{RaCrO}_4]}{[\text{RaCrO}_4] + [\text{Ra}^{2+}]} \quad (89)$$

$$f_{\text{Ba}} = \frac{[\text{natBaCrO}_4]}{[\text{natBaCrO}_4] + [\text{natBa}^{2+}]} \quad (90)$$

Aus diesen Überlegungen erhält man Formel (91) und damit den Kurvenverlauf in Abbildung 33.

$$\frac{1}{f_{\text{Ra}}} = 1 + \frac{1}{D} \cdot \frac{[\text{natBa}^{2+}]}{[\text{natBaCrO}_4]} = 1 + \frac{1}{D} \cdot \left( \frac{1}{f_{\text{Ba}}} - 1 \right). \quad (91)$$

Das Ergebnis entsprechender Versuche von F. Strassmann und O. Hahn ist in Abbildung 34 dargestellt. Bei der fraktionierten Bromidfällung von Radium III (entspricht  $^{139}\text{Ba}$ ) und Mesothorium-1 (entspricht  $^{228}\text{Ra}$ ) reichert sich  $^{228}\text{Ra}$  in den ersten Fraktionen an, da sein Verteilungskoeffizient  $> 1$  ist. Damit ist bewiesen, dass sich Barium und Radium chemisch unterschiedlich verhalten. Die durch Neutronenbestrahlung aus Uran erzeugte Aktivität ist somit dem Barium und nicht dem Radium zuzuordnen.

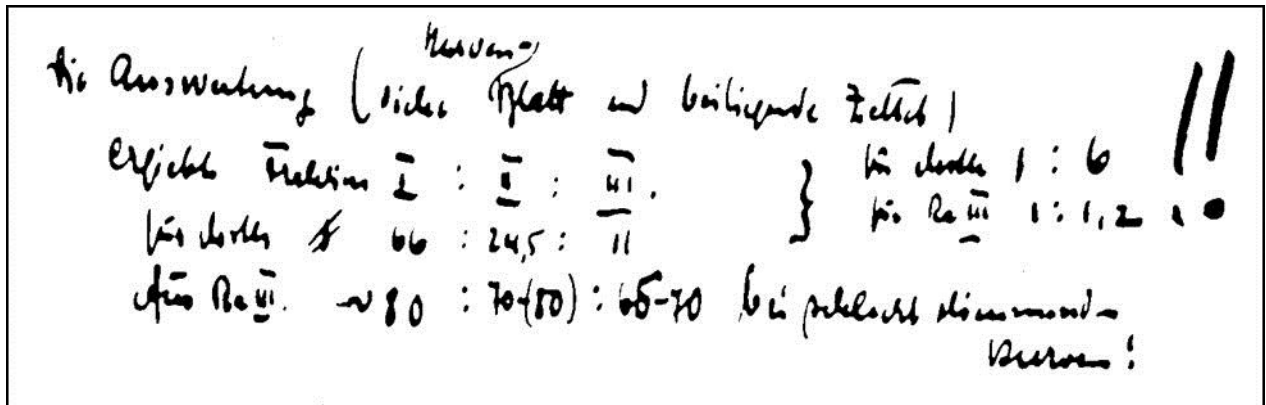


Abbildung 34: Otto Hahns Fazit aus der fraktionierten Bromidfällung von Radium III (entspricht  $^{139}\text{Ba}$ ) und Mesothorium-1 (entspricht  $^{228}\text{Ra}$ ) vom 17. Dezember 1938.

Dort zu lesen sind die folgenden Angaben:

**Die Auswertung (siehe Kurvenblatt und beiliegende Zettel)**

ergibt Fraktion	I	:	II	:	III.	für Msth	1:6	!!
Für Msth	66	:	24,5	:	11	für Ra III	1:1,2	
Für Ra III	~80	:	70(-80)	:	65-70	bei schlecht stimmenden Kurven!		

## 8.1 Versuche

### 8.1.1 Durchführung: Bestimmung der Spaltausbeute des $^{139}\text{Ba}$

#### Herstellung der Stammlösung

10 µg angereichertes  $^{235}\text{U}$  wird als  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$  (gelöst in 2 N  $\text{HNO}_3$ ) mit thermischen Neutronen bei einem Fluss von  $7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  bestrahlt. Barium muss nun vom Gemisch der übrigen Spaltprodukte abgetrennt werden.

Nach Zugabe von 1 ml Ba-Träger (100 mg Ba/ml) und 1 ml Sr hold-back Träger (10 mg Sr/ml) wird Barium mit dem zehnfachen Volumen eiskalter konzentrierter HCl als  $\text{BaCl}_2$  gefällt. Unter diesen Bedingungen fällt  $\text{SrCl}_2$  wegen seines größeren Löslichkeitsproduktes nicht aus. Damit bleibt auch das bei der Kernspaltung ebenfalls entstandene Strontium, ebenso wie Barium ein Erdalkalielement, in Lösung.

Für 5 min wird mit Eiswasser gekühlt. Der Niederschlag wird über einen Glasfaserfilter abgesaugt und mit wenig konzentrierter HCl gewaschen. Danach wird der Niederschlag in

heißem Wasser aufgelöst und die Lösung in ein Reagenzglas gesaugt, das in die Saugflasche gestellt wurde. Es wird noch mal 1 ml Sr hold-back Träger (10 mg Sr/ml) zugegeben und das Fällern und Lösen des BaCl<sub>2</sub> wiederholt.

Nach Zugabe von 1 ml Fe<sup>3+</sup>-Lösung (1 mg Fe/ml) wird Fe(OH)<sub>3</sub> mit CO<sub>2</sub>-freiem, konzentriertem NH<sub>3</sub> gefällt (Scavenger-Fällung). Bei der Scavenger-Fällung werden die neben Barium eventuell ebenfalls noch vorhandenen Radionuklide wie Yttrium oder die Lanthanide, als Hydroxide vom Fe(OH)<sub>3</sub>-Niederschlag mitgerissen. Der Ammoniak muss carbonatfrei sein, da Barium sonst als Carbonat ausfallen würde.

Der Niederschlag wird abgesaugt und das Filtrat mit H<sub>2</sub>O auf 10 ml verdünnt. Dies ist die **Stammlösung für alle folgenden Versuche**, sie darf also keinesfalls entsorgt werden.

### Messung und Auswertung

Aus 1 ml der Stammlösung wird das Barium mit 2 N H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> ausgefällt und ein Präparat hergestellt.

Zur Bestimmung der Halbwertszeit des isolierten Bariums wird das Präparat in 2 min Intervallen im GMZ gemessen. Das Präparat sollte sich hierbei in dem Einschub befinden, für den der Geometriefaktor  $f_g$  experimentell ermittelt wurde (siehe Abschnitt 1.5).

Eine Stunde nach Bestrahlungsende (BE) liegt im Wesentlichen nur das <sup>139</sup>Ba mit 83 min Halbwertszeit vor. Die Extrapolation der Zerfallskurve dieses Isotops auf die Zählrate zum Zeitpunkt des Bestrahlungsendes  $I_{BE}$  ermöglicht die Bestimmung der Aktivität  $A_{BE}$  des <sup>139</sup>Ba in der gesamten Probe bei Bestrahlungsende nach Formel (92).

$$A_{BE} = \frac{I_{BE} \cdot 10}{f_g \cdot f_r} \quad (92)$$

Der Faktor 10 berücksichtigt hierbei den Probenanteil, da nur 1/10 der Stammlösung zur Herstellung des Präparats verwendet wurden. Der Rückstreufaktor  $f_r$  kann wieder wie bereits in Abschnitt 1.5 als 1,2 angenommen werden. Zu einer genaueren Berechnung müssten neben Messgeometrie und Rückstreuung auch noch Faktoren wie Absorption und chemische Ausbeute berücksichtigt werden.

Mit der Zahl der Uranatome  $N$ , dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_f$ , dem Neutronenfluss  $\Phi$  und dem Bindungsfaktor  $(1 - e^{-\lambda t})$ , wobei  $t$  die Bestrahlungsdauer ist, kann die Spaltausbeute  $y$  des <sup>139</sup>Ba nach Formel (93) berechnet werden.

$$y = \frac{A_{BE}}{N \cdot \sigma_f \cdot \Phi \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad (93)$$

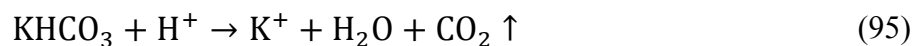
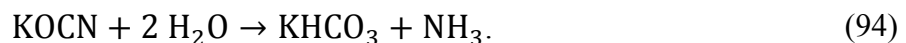
### 8.1.2 Durchführung: Fraktionierte Fällung von BaCrO<sub>4</sub> in Gegenwart von <sup>139</sup>Ba und <sup>224</sup>Ra in Mikromengen

#### Herstellung der Präparate

Die restliche Ba-Stammlösung aus Versuch 8.1.1 wird mit 200 mg Ba-Träger und 2 ml <sup>224</sup>Ra-Aktivität (ca. 2000 Imp/min) versetzt, mit 10 ml H<sub>2</sub>O verdünnt und mit 4 ml 2 N HNO<sub>3</sub> angesäuert.

In 6 Reagenzgläser werden 1, 2, 3, 4, 6 und 8 ml der Stammlösung gegeben. Im Anschluss werden zum „1 ml“-Reagenzglas 1 ml  $K_2CrO_4$ -Lösung zugegeben und mit konz.  $NH_3$  alkalisch gestellt (zwecks quantitativer Fällung von Ba und Ra, 1 ml  $K_2CrO_4$ -Lösung fällt ungefähr die in 1 ml Probelösung enthaltene Menge Barium aus). In alle anderen Reagenzgläser wird je 1 ml  $K_2CrO_4$ -Lösung gegeben. Anschließend gibt man etwa eine Spatelspitze KOCN pro Milliliter Probelösung hinzu. Tritt nach 20 min Abwarten bei Raumtemperatur kein Niederschlag auf, so wird noch eine Spatelspitze KOCN hinzugegeben. Die Niederschläge werden über Membranfilter abgesaugt, mit wenig Wasser gewaschen und Präparate hergestellt. Zu diesem Zeitpunkt dürfen die Präparate noch nicht abgeklebt werden, da sonst die  $\alpha$ -Messung für die Bestimmung der Ra-Aktivität nicht mehr möglich ist.

Entscheidend für das Gelingen des Experiments ist eine homogene Fällung von  $BaCrO_4$ . Hierzu wird mittels KOCN langsam der geeignete pH-Wert im gesamten Lösungsvolumen eingestellt. Vor der Zugabe von KOCN ist die Lösung sauer ( $pH \approx 1$ ). Unter diesen Bedingungen fällt  $BaCrO_4$  nicht aus, da das Chromat als  $Cr_2O_7^{2-}$  vorliegt. In saurer Lösung hydrolysiert KOCN nach den in den Formeln (94) und (95) angegebenen Reaktionen.



Das  $CO_2$  entweicht als Gas aus der Lösung. Durch das entstehende  $NH_3$  ( $\rightarrow NH_4^+ + OH^-$ ) wird die Lösung zunehmend neutral bis alkalisch und  $BaCrO_4$  fällt aus.

**Wichtig:** Bevor mit der Herstellung der Präparate begonnen wird, muss eine Blindfällung ohne Zugabe der Aktivität durchgeführt werden, damit die Geräte mit den Chemikalien benetzt sind und bei der ersten Fällung mit Aktivität keine Ausbeuteverluste entstehen.

### Messung und Auswertung

Die  $BaCrO_4$ -Präparate werden nach dem Trocknen unbedeckt im Proportionalzähler gemessen. Nach Rücksprache mit einem der Assistenten werden sie mit Tesafilm überklebt und nach Beendigung aller  $\alpha$ -Messungen direkt nacheinander im GMZ gemessen ( $\beta$ -Messung).

Die Anteile an gefällttem Ra und Ba an der jeweiligen Gesamtmenge  $f_{Ra}$  bzw.  $f_{Ba}$  für jede Probe ( $x$  steht jeweils für die Anzahl der mL der Stammlösung) werden aus den Messwerten mit den Formeln (96) und (97) berechnet.

$$f_{Ba}(x \text{ mL}) = \frac{I_{\beta}(x \text{ mL})}{x \cdot I_{\beta}(1 \text{ mL})}. \quad (96)$$

$$f_{Ra}(x \text{ mL}) = \frac{I_{\alpha}(x \text{ mL})}{x \cdot I_{\alpha}(1 \text{ mL})}. \quad (97)$$

Zur Auswertung wird  $f_{Ra}(x \text{ mL})$  und  $f_{Ba}(x \text{ mL})$  gegen  $1/x$  aufgetragen und der Kurvenverlauf wird diskutiert.



### 1. Bestimmung der Spaltausbeute von $^{139}\text{Ba}$

Vor diesem Versuch alle RG und Pipetten reinigen um  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -Reste zu entfernen.

1.1 Herstellung der Ba-Stammlösung: Zu 5 Tr.  $\text{Ba}^{2+}$ -Träger (= 100 mg) (pipettieren!) und 10 Tr.  $\text{Sr}^{2+}$ -Träger 1 ml radioaktive Lösung geben. Mit 10-facher Menge (30 ml, bzw. 50-80 ml bei der 2. Fällung) eisgekühlter konz.  $\text{HCl}$   $\text{BaCl}_2$  fällen. Den Niederschlag (5 min ins Eisbad) über **GFF** absaugen, mit wenig eisgekühlter  $\text{HCl}_{\text{konz}}$  nachwaschen. **ENTSORGUNG:** Filtrat in die Abfallkanister. Zum Lösen des Niederschlags den Filter in 4 ml  $\text{H}_2\text{O}$  auskochen und mit 1 ml nachspülen. Nach erneuter Zugabe von 5 Tr.  $\text{Ba}^{2+}$ - und 10 Tr.  $\text{Sr}^{2+}$ -Träger Fällung wiederholen (gut kühlen!). Nach dem zweiten Auflösen 1 ml  $\text{Fe}^{3+}$ -Träger zugeben und erwärmen. Mit  $\text{CO}_2$ -freiem konz.  $\text{NH}_3$  im heißen  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  fällen (Spaltproduktabtrennung). Zur besseren Abtrennung kurz aufkochen. RG auf 10 ml eichen und in die Saugflasche stellen. Niederschlag über MF absaugen. Lösung mit  $\text{H}_2\text{O}$  auf 10 ml auffüllen-> Ba-Stammlösung **NICHT WECKPAPPEN!!!** Sie wird für Versuch 2 gebraucht.

1.2 Bestimmung der Spaltausbeute: 1 ml der Ba-Stammlösung mit 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  versetzen.  $\text{BaSO}_4$  fällt aus (evtl. erwärmen). Niederschlag über einen MF absaugen, mit wenig verd.  $\text{H}_2\text{SO}_4$  waschen, aufleben, trocknen und abkleben. Messung im GMZ (2. Einschub,  $f_{\beta}^2$ ): 2 min Intervalldauer, lange Messzeit wählen (2 h). **ENTSORGUNG:** Filter in  $\beta$ -kurz. Achtung: Aktivität > Freigrenze: **besondere Sorgfalt!!!** Auswertung: Bei hoher Zählrate Totzeitkorrektur (1. Tag). Die HWZ von  $^{139}\text{Ba}$  bestimmen. Aktivität auf BE zurückextrapolieren. Spaltausbeute berechnen.

10  $\mu\text{g } ^{235}\text{U}$  pro Gruppe

(mit  $\sigma = 582,2 \text{ b}$ ,  $\Phi = 7 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2\text{s}$ ,  $t = 30 \text{ min}$ ,  $10 \mu\text{g } ^{235}\text{U} = 2,56 \cdot 10^{16}$  Atome;  $t_{1/2} = 83 \text{ min}$ )

$$A_{\text{BE}} = \frac{I_{\text{BE}} \cdot 10}{f_{\text{g}} \cdot f_{\text{r}}} \cdot \quad y = \frac{A_{\text{BE}}}{N \cdot \sigma_f \cdot \Phi \cdot (1 - e^{-\lambda t})}$$

### 2. Fraktionierte Fällung von $\text{BaCrO}_4$ und $\text{RaCrO}_4$

Vor Versuchsbeginn  $\text{BaCrO}_4$ -Blindfällung ohne Aktivität machen, um die Gefäßwände zu sättigen. Stammlösung mit 2 ml  $\text{Ba}^{2+}$ -Träger versetzen. 2 ml  $^{224}\text{Ra}$ -Aktivität zugeben. Mit 10 ml Wasser verdünnen und mit 4 ml 2 N  $\text{HNO}_3$  ansäuern. In 6 RG 1, 2, 3, 4, 6 und 8 ml der Lösung geben: Zum „1 ml“-RG 1 ml  $\text{K}_2\text{CrO}_4$ -Lsg. zugeben und mit  $\text{NH}_3$  alkalisch stellen (quantitative Fällung von Ba und Ra). In alle anderen RG's je 1 ml  $\text{K}_2\text{CrO}_4$ -Lsg. zugeben. Dann 1 Spatelspitze  $\text{KOCN}$  pro 1 ml Probenlösung **langsam** hinzugeben, pH überprüfen. Reaktion dauert! Nach frühestens 10 min bei RT über MF absaugen. Aufkleben, vorsichtig trocknen, im Prop.zähler 5 min messen. **Präparate erst nach Auswertung der  $\alpha$ -Messungen abkleben.** Nach Messung aller Proben im Prop.zähler direkt nacheinander im GMZ je 1 min messen (erspart Zeitkorrektur). Auswertung:

$$f_{\text{Ba}}(x \text{ mL}) = \frac{I_{\beta}(x \text{ mL})}{x \cdot I_{\beta}(1 \text{ mL})} \quad \text{und} \quad f_{\text{Ra}}(x \text{ mL}) = \frac{I_{\alpha}(x \text{ mL})}{x \cdot I_{\alpha}(1 \text{ mL})}$$

$f_{\text{Ba}}(x \text{ mL})$  und  $f_{\text{Ra}}(x \text{ mL})$  gegen  $1/x$  auftragen; diskutieren.

**ENTSORGUNG:** Filtrat in die Abfallkanister; Nds.  $\beta$ -kurz.

## 9. Anwendung von Radioisotopen

Literatur: Keller, S. 249-257  
Lieser, S. 580-585  
Friedlander, S. 415-419

### 9.1 Die Untersuchung des Elektronenaustauschs in einem System $X^+/X^{3+}$

Wenn in einer Lösung nebeneinander  $X^+$ - und  $X^{3+}$ -Ionen desselben Elements vorliegen, so kann ein Elektronenübergang vom  $X^+$ - zum  $X^{3+}$ -Ion stattfinden. Das ursprünglich einwertige Ion wird dreiwertig und umgekehrt. Diese Elektronenaustauschreaktion kann sehr gut untersucht werden, wenn eine Ionenart radioaktiv markiert ist. Wird z. B.  $X^{3+}$  markiert, so kann man in verschiedenen Zeitabständen nach Zugabe von  $X^{1+}$ -Ionen Proben entnehmen und feststellen, welcher Bruchteil der Aktivität einwertig geworden ist.

Triebkraft des Elektronenaustauschs ist der Entropiegewinn  $\Delta S$  des Systems. Aus diesen Austauschreaktionen lassen sich Informationen über die Reaktionsgeschwindigkeit im Gleichgewichtszustand gewinnen.

Unter den möglichen Austauschsystemen haben nur wenige Reaktionsgeschwindigkeiten, die bequem messbar sind. Für das Praktikum eignet sich das System  $Tl^+/Tl^{3+}$ . Werden eine inaktive  $Tl^+$ -Lösung und eine radioaktiv markierte  $Tl^{3+}$ -Lösung miteinander gemischt, so wächst die Konzentration des markierten  $Tl^+$  gemäß Formel (98) an. Mit dem Sternchen \* werden die radioaktiv markierten Ionen gekennzeichnet.

$$\frac{d[*Tl^+]}{dt} = k \cdot [Tl^+] \cdot [*Tl^{3+}] - k \cdot [*Tl^+] \cdot [Tl^{3+}]. \quad (98)$$

Die Geschwindigkeitskonstanten  $k$  für die Hin- und Rückreaktion sind identisch, wenn kein Isotopie-Effekt auftritt. Wird von gleichen Konzentrationen an inaktiven  $Tl^+$  und  $Tl^{3+}$  ausgegangen und ist die Zahl der markierten Tl-Atome gegenüber der Zahl der inaktiven Tl-Atome vernachlässigbar, so gilt Formel (99).

$$[Tl^+] = [Tl^{3+}] = 0,5 \cdot [Tl]. \quad (99)$$

Die Konzentrationen aller markierten Tl-Atome sind konstant, woraus Formel (100) folgt.

$$[*Tl^+] + [*Tl^{3+}] = [*Tl]. \quad (100)$$

Die Kombination der Formeln (98) bis (100) führt zu Formel (101).

$$\frac{d[*Tl^+]}{dt} = k \cdot [Tl] \cdot (0,5 \cdot [*Tl] - [*Tl^+]). \quad (101)$$

Integration dieser Formel liefert schließlich Formel (102).

$$\ln\left(C \cdot \left(0,5 \cdot [^*\text{Tl}] - [^*\text{Tl}^+]\right)\right) = -k \cdot [\text{Tl}] \cdot t. \quad (102)$$

Liegt zum Zeitpunkt  $t = 0$  kein aktives  $\text{Tl}^+$  vor, so lässt sich die Konstante  $C$  bestimmen. Formel (102) kann dann zu Formel (103) umgeformt werden.

$$[^*\text{Tl}^+] = 0,5 \cdot [^*\text{Tl}] \cdot \left(1 - e^{-k \cdot [\text{Tl}] \cdot t}\right). \quad (103)$$

Die Konzentration des aktiven  $\text{Tl}^+$  wächst mit der Zeit  $t$  an. Bei unendlicher Zeit  $t$  wird die Sättigung erreicht und die Hälfte des aktiven  $\text{Tl}$  liegt als  $\text{Tl}^+$  vor. Die Halbwertszeit  $t_{1/2}$  des Elektronenaustauschs ergibt sich dann aus Formel (104).

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{k \cdot [\text{Tl}]}. \quad (104)$$

Daraus erhält man die Geschwindigkeitskonstante  $k$ , deren Abhängigkeit von der Temperatur  $T$  durch eine Arrhenius-Gleichung (Formel (105)) gegeben ist.

$$k = k_0 \cdot e^{-\frac{E_a}{RT}}. \quad (105)$$

Aus dieser Formel kann also die Aktivierungsenergie  $E_a$  des Elektronenaustauschs bestimmt werden.

## 9.2 Versuche

### 9.2.1 Durchführung: Herstellung der markierten $\text{Tl}^{3+}$ -Lösung

Es werden 30 ml einer 0,012 M  $\text{Tl}^+$ -Lösung (hergestellt aus 3 g  $\text{Tl}_2\text{SO}_4$  gelöst in 1 L 2 n  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) und 100  $\mu\text{L}$   $^{204}\text{Tl}$ -Aktivität mehrere Male mit Bromwasser bis zur bleibenden Gelbfärbung versetzt. Hierbei wird das  $\text{Tl}^+$  zu  $\text{Tl}^{3+}$  oxidiert. Durch Erhitzen für einige Minuten wird anschließend überschüssiges  $\text{Br}_2$  verdampft (Uhrglas verwenden! Achtung: Es entsteht elementares Brom!). Es muss dabei darauf geachtet werden, dass nicht zu weit eingedampft wird, da sonst auch  $\text{Tl}$  abdampft. Danach wird mit konz.  $\text{NaOH}$ -Lösung  $\text{Tl}(\text{OH})_3$  ausgefällt und die Lösung wird noch einmal kurz erwärmt. Der Überstand wird dann zunächst abdekantiert und anschließend wird über einen Glasfaserfilter abgesaugt. Der Niederschlag wird gut gewaschen, anschließend wird der gesamte Filter und gegebenenfalls auch der Schornstein der Hahn'schen Nutsche in  $\text{H}_2\text{O}$  aufgekocht. Dabei gehen nicht oxidierte  $\text{Tl}^+$ -Rückstände in Lösung. Der Niederschlag wird dann erneut mit einem Glasfaserfilter abfiltriert und danach in 25 ml 2 N  $\text{H}_2\text{SO}_4$  aufgelöst und auf Raumtemperatur abkühlen gelassen. Dabei geht das  $\text{Tl}^{3+}$  in Lösung. Nach dem Reinigen der Saugflasche wird die Lösung über einen Membranfilter abgesaugt und das Filtrat wird in einem Messzylinder auf 25 mL aufgefüllt. Diese Lösung wird im Wasserbad auf die entsprechende Temperatur temperiert (je zwei Gruppen führen den Versuch bei 20 °C, 30 °C und 40 °C durch)

Zusätzlich werden in einen weiteren Messzylinder 25 mL inaktive  $\text{Tl}^+$ -Lösung temperiert.

## 9.2.2 Durchführung: Messung der Halbwertszeit des Elektronenaustauschs im System $Tl^+/Tl^{3+}$

Die in Abschnitt 9.2.1 hergestellte markierte  $Tl^{3+}$ -Lösung wird mit der  $Tl^+$ -Lösung bei der Temperatur, bei der die Gruppe den Elektronenaustausch messen soll, miteinander vereinigt. Dieser Zeitpunkt ist  $t = 0$  und eine Stoppuhr wird gestartet. Die Temperatur der Mischung wird dadurch konstant gehalten, dass das Gefäß mit der Lösung die gesamte Zeit im temperierten Wasserbad verbleibt. Zu den Zeitpunkten  $t = 0,5, 5, 10, 15, 20, 30$  und  $50$  min werden je  $5$  ml der Lösung entnommen und in ein Reagenzglas gegeben (Die  $40$  °C-Gruppen nehmen noch eine Probe nach  $2,5$  min und lassen dafür die  $50$  min Messung weg). Mit  $5$  Tropfen Fällungsreagenz (zur Herstellung wurden  $4$  g  $1$  N NaOH und  $30$  g  $1$  M  $K_2Cr_2O_7$ -Lösung mit  $7$  N  $NH_4OH$  auf  $100$  mL aufgefüllt) wird  $Tl_2CrO_4$  gefällt. Das Reagenzglas wird dann für  $5$  min in Eiswasser gekühlt und anschließend wird der Niederschlag abfiltriert und zweimal mit je  $10$  ml Eiswasser gewaschen. Die Verwendung von Eiswasser soll einen weiteren Elektronenaustausch unterbinden und die Löslichkeit von  $Tl_2CrO_4$  vermindern.

Zur Bestimmung des Gleichgewichtszustands (also nach einer unendlichen Reaktionszeit  $t_\infty$ ) werden zweimal je  $5$  mL der Reaktionslösung entnommen und  $5$ - $10$  min zum Sieden erhitzt. Da die Reaktionsgeschwindigkeit mit der Temperatur stark zunimmt, erreicht man auf diesem Weg sehr schnell den Gleichgewichtszustand. Anschließend wird ebenfalls mit  $5$  Tropfen des Fällungsreagenz  $Tl_2CrO_4$  gefällt.

Alle so hergestellten Präparate werden getrocknet, mit Klebefolie abgedeckt und mit dem GMZ für  $5$  min gemessen.

Zur Auswertung werden die Zählraten halblogarithmisch gegen die Reaktionszeit  $t$  aufgetragen. Für jedes Präparat wird die Differenz zwischen der Sättigungszählrate (Mittelwert der beiden  $t_\infty$ -Messungen) und der Zählrate gebildet. Diese Differenzen liegen auf einer Geraden, aus deren Steigung die Halbwertszeit des Elektronenaustauschs folgt (siehe Abbildung 35). Über Formel (104) kann daraus dann die Geschwindigkeitskonstante  $k$  berechnet werden.

Aus den bei verschiedenen Temperaturen von den unterschiedlichen Gruppen gemessenen Geschwindigkeitskonstanten lässt sich die Aktivierungsenergie  $E_A$  nach Formel (105) bestimmen. Hierzu wird  $\ln(k)$  gegen  $1/RT$  aufgetragen und gefittet. Aus der Steigung ergibt sich dann  $E_A$ .



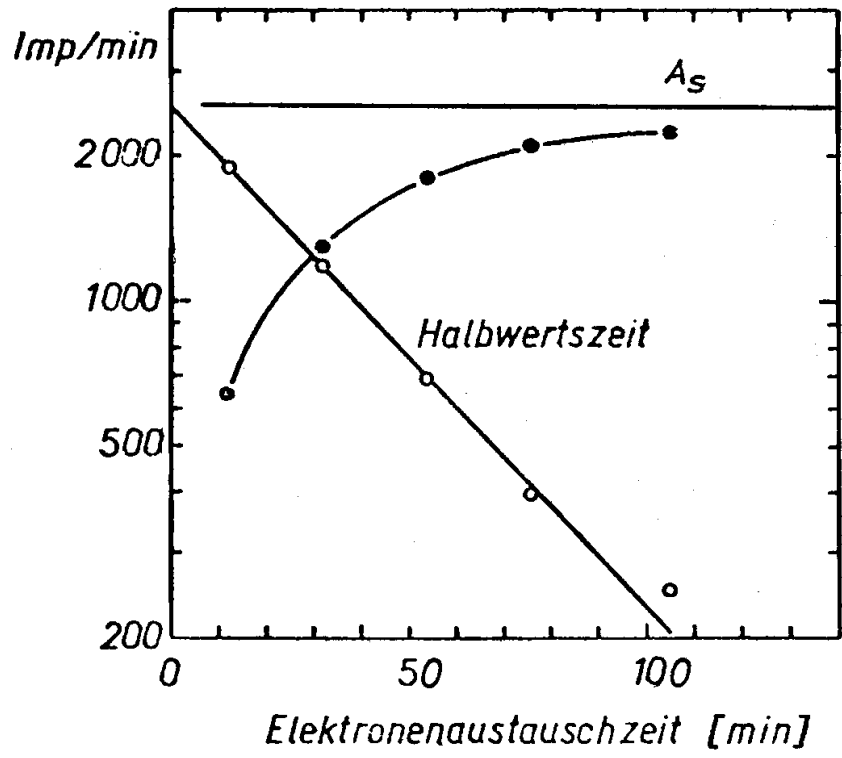


Abbildung 35: Bestimmung der Halbwertszeit für den Elektronenaustausch  $Tl^+/Tl^{3+}$ .



### 1. Elektronenaustausch im System $Tl^+ / Tl^{3+}$

#### 1.1 Herstellung der markierten $Tl^{3+}$ -Lösung

$^{204}Tl \rightarrow ^{204}Pb$ :  $t_{1/2} = 3,78$  a;  $E_{\beta, \max} = 763$  keV.

Zu 30 ml  $Tl_2SO_4$  in 2 N  $H_2SO_4$  in einem hinreichend großen Becherglas werden 100  $\mu$ l  $^{204}Tl$ -Lösung zugegeben und im Abzug mit Bromwasser bis zur bleibenden Gelbfärbung versetzt. Die Lösung einige Minuten bis zum Sieden erhitzen (nicht eintrocknen lassen, sonst dampft Tl ab!). Dabei entsteht Brom! Die Oxidation zweimal wiederholen. Nach dem Abkühlen wird mit konzentrierter NaOH-Lösung  $Tl(OH)_3$  gefällt. Nach kurzem Aufwärmen lässt man den Niederschlag absetzen und dekantiert den Überstand ab. Dann saugt man den Niederschlag über einen **Glasfaserfilter** ab.

ENTSORGUNG: Das Filtrat in die Abfallkanister.

Niederschlag: Filter und gegebenenfalls den Schornstein in Wasser aufkochen. Dabei lösen sich  $Tl^+$ -Rückstände. Erneut über einen **Glasfaserfilter** abfiltrieren.

Anschließend die Filter mit Niederschlag und Schornstein in einem hinreichend großen Becherglas mit 25 ml 2 N  $H_2SO_4$  versetzen und erwärmen. Dabei geht das  $Tl^{3+}$  in Lösung. Danach wird die Saugflasche gereinigt. Die Lösung wird über einen **Membranfilter** abgesaugt. Das Filtrat wird im Messzylinder (100 ml) mit Wasser auf 25 ml aufgefüllt und danach im Thermostatbad temperiert. 25 ml inaktive  $Tl_2SO_4$ -Lsg ebenfalls temperieren. Messzylinder beschriften!

Filter:  **$\beta$ -lang** Abfall!

#### 1.2 Messung der Halbwertszeit des Elektronenaustauschs

Die Messung wird (von verschiedenen Gruppen) bei 20°, 30° bzw. 40° durchgeführt. 25 ml  $Tl^+$ -Lösung und 25 ml markierte  $Tl^{3+}$ -Lösung werden im Thermostatbad temperiert und anschließend miteinander vermischt (mit Pipette umrühren). Stoppuhr starten. Die vereinigte Lösung wird ins Thermostatbad zurückgestellt. Bei  $t = 0,5, 5, 10, 15, 20, 30, 50, \text{ min}$  und  $2 \cdot t_{\text{unendlich}}$  (s.u.) je 5 ml entnehmen und in ein Reagenzglas geben, in dem sich 5 Tropfen des Fällungsreagens befinden. (Die 40°C-Gruppe nimmt noch eine Probe nach 2,5 min und lässt dafür die 50 min Messung weg.) Zeit nehmen:  $t = x$  (**Stoppuhr weiterlaufen lassen!**). Reagenzglas mit einem Stopfen verschließen und 5 min im Eisbad kühlen (damit die Reaktion abgebrochen wird). Der Niederschlag wird über einen Membranfilter abgesaugt und mit 10 ml Eiswasser gewaschen. Aufkleben, trocknen, abkleben und im GMZ 5 min messen. In den längeren Pausen gegen Ende zwei  $t_{\text{unendlich}}$ -Proben herstellen: 5 ml Lösung werden im Becherglas 5-10 Minuten lang bis zum Sieden erhitzt (Gleichgewicht stellt sich ein). Die Fällung wird nach dem Abkühlen durchgeführt.

Auswertung: Die HWZ des Elektronenaustauschs wird bestimmt. Aus den Werten bei verschiedenen Temperaturen wird mit Hilfe der Arrhenius-Gleichung die Aktivierungsenergie bestimmt.

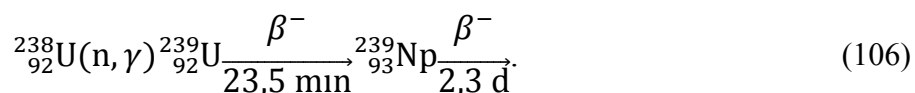
ENTSORGUNG: Filtrat in die Abfallkanister; Präparate in  **$\beta$ -lang** Abfall!

## 10. Transurane – Die Chemie des Neptuniums

Literatur: Keller, S. 136-162  
Lieser, S. 527-555  
Friedlander, S. 449-451

Die in der Natur nicht vorkommenden Elemente 93 bis 103 sind zusammen mit Protactinium, Thorium und Uran Mitglieder der Actiniden-Gruppe, deren Elektronenhüllen sich durch unterschiedliche Auffüllung der 5f-Schale (analog zu den Lanthaniden, 4f) unterscheiden. Transurane können durch (vielfachen) Neutroneneinfang in Reaktoren, durch Kernexplosionen oder durch Schwerionenreaktionen hergestellt werden.

Das erste Transuran, Neptunium, wurde 1940 von McMillan und Abelson durch die in Formel (106) gezeigte Reaktion hergestellt und durch Mitfällung an  $\text{LaF}_3$  chemisch isoliert.



Der genetische Zusammenhang der neuen 2,3 d  $\beta^-$ -Aktivität zum 23,5 min  ${}^{239}\text{U}$  wurde durch Abmelken bewiesen (Originalveröffentlichung hierzu: McMillan und Abelson, Phys. Rev. 57, 1985, (1940)).

Zunächst war nicht klar, ob bei Np die 6d-Schale weiter aufgefüllt wird oder die 5f-Schale. Im ersten Falle wäre Np ein dem Rhenium (Re) homologes Element der VII. Nebengruppe, im zweiten Fall das vierte Mitglied einer neu entdeckten Actiniden-Reihe mit einem dem Uran ähnlichen chemischen Verhalten. Die chemischen Eigenschaften des Neptuniums (Rhenium-homolog oder Uran-ähnlich) wurden durch Mitfällung trägerfreier Aktivitäten an inaktiven Niederschlägen aufgeklärt. Entsprechende Versuche werden im Folgenden beschrieben und im Praktikum durchgeführt.

${}^{239}\text{Np}$  wird durch Bestrahlung von  ${}^{238}\text{U}$  mit thermischen Neutronen (10 mg  ${}^{238}\text{U}$ , 1 h bei 100 kW,  $\Phi = 7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ) im Reaktor nach der oben angegebenen Gleichung hergestellt. Das bestrahlte Salz wird in Wasser aufgelöst und liefert so die für den Versuch benötigte Np-Stammlösung.

### 10.1 Fällungsversuche zur Neptunium Chemie

Zur Herstellung einer Stammlösung wird von den Assistenten 1 mL Np-Aktivität ausgegeben, die auf 10 mL mit  $\text{H}_2\text{O}$  aufgefüllt wird. Mit jeweils 1 mL dieser Stammlösung werden dann die im Folgenden beschriebenen Versuche durchgeführt.

#### 10.1.1 Durchführung: 1. Präparat – Re ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden 10 mg (entspricht 3 Tropfen)  $\text{Ag}^+$ -Träger und 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  gegeben. Mit  $\text{H}_2\text{S}$ -Wasser wird  $\text{Ag}_2\text{S}$  gefällt. Die Lösung wird dann nach kurzem Aufkochen (macht den Niederschlag besser filtrierbar) durch einen Membranfilter abgesaugt.

### 10.1.2 Durchführung: 2. Präparat – U ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden 10 mg (entspricht 5 Tropfen)  $\text{Th}^{4+}$ -Träger, 5 ml 2 N HCl, 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  und eine Spatelspitze  $\text{FeSO}_4$  gegeben und zum Sieden erhitzt. Nach Abkühlen der Lösung wird mit einem  $\text{KIO}_3$ -Überschuss  $\text{Th}(\text{IO}_3)_4$  ausgefällt. Falls Neptunium ein Actiniden-Element ist, sollte es als  $\text{Np}(\text{IO}_3)_4$  mitgefällt werden.

Th-haltige Abfälle im  $\alpha$ -Abfall entsorgen!

### 10.1.3 Durchführung: 3. Präparat – Re ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden 5 mg  $\text{Fe}^{3+}$ -Träger (entspricht 50 Tropfen), 10 ml 2 N  $\text{HNO}_3$  und eine Spatelspitze  $\text{KBrO}_3$  gegeben. Um eine vollständige Oxidation des Np zu erreichen, muss 5 bis 10 min gekocht werden (**Abzug –  $\text{Br}_2$ -Entwicklung!**). Mit carbonathaltiger  $\text{NH}_3$ -Lösung im Überschuss wird  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  ausgefällt. Falls Neptunium ein Actiniden-Element ist, sollte es analog dem Uran als Carbonat-Komplex in Lösung bleiben.

### 10.1.4 Durchführung: 4. Präparat – U ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden eine gehäufte Spatelspitze  $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$  und 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  gegeben. Es wird 5 min lang gekocht. Nach Zugabe von 5 mg  $\text{Fe}^{3+}$ -Träger (entspricht 50 Tropfen) wird mit carbonathaltiger  $\text{NH}_3$ -Lösung  $\text{Fe}(\text{OH})_2$  gefällt. Neptunium sollte wie Uran im vierwertigen Zustand als Hydroxid ausfallen.

### 10.1.5 Durchführung: 5. Präparat – Re ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden 10 ml 2 N  $\text{HNO}_3$  und eine Spatelspitze  $\text{KBrO}_3$  gegeben. Im Abzug wird 5 bis 10 min lang gekocht. Nach Zugabe von 10 mg (entspricht 10 Tropfen)  $\text{La}^{3+}$ -Träger und 5 Tropfen  $\text{Zr}^{4+}$ -Träger wird mit gesättigter NaF-Lösung  $\text{LaF}_3$  gefällt.  $\text{LaF}_3$  fällt erst im Eisbad langsam als farbloser Niederschlag. Als Actiniden-Element sollte Neptunium, das in der Form  $\text{NpO}_2^{2+}$  vorliegt, in Lösung bleiben, da zur Fluoridfällung reine Metallionen ( $\text{Np}^{6+}$ ) nötig wären.

### 10.1.6 Durchführung: 6. Präparat – U ähnlich?

Zu 1 ml Np-Stammlösung werden eine gehäufte Spatelspitze  $\text{NH}_2\text{OH} \cdot \text{HCl}$  und 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  gegeben. Es wird 5 min lang gekocht. Nach Zugabe von 10 Tropfen  $\text{La}^{3+}$ - und 5 Tropfen  $\text{Zr}^{4+}$ -Träger wird mit gesättigter NaF-Lösung  $\text{LaF}_3$  gefällt. Neptunium sollte im vierwertigen Zustand ein schwerlösliches Fluorid bilden, das am  $\text{LaF}_3$ -Niederschlag mitgefällt wird.

### 10.1.7 Durchführung: Standardpräparat

Das Standardpräparat wird vom Assistenten bereits morgens während dem Seminar hergestellt. Hierzu wird ein Glasfaserfilter, dessen Durchmesser gleich dem Innendurchmesser des Schornsteins der Hahn'schen Nutsche ist, auf einen Präparateträger gelegt, mit 100 µl der ursprünglichen Np-Stammlösung benetzt, unter dem Heizstrahler getrocknet und mit Klebefolie abgedeckt. Die Zählrate dieses Standardpräparats wird als 100 % gesetzt. Alle anderen Aktivitäten der übrigen Präparate werden dazu ins Verhältnis gesetzt.

Die Oxidation und Reduktion des trägerfreien Neptuniums verläuft sehr langsam. Deshalb sollten die bei den Präparaten angegebenen Zeiten eingehalten werden.

Die Präparate werden mit einem NaI(Tl)-Detektor gemessen. Die Peakfläche der 106 keV  $\gamma$ -Linie des  $^{239}\text{Np}$  wird ermittelt. Eine Untergrundkorrektur ist nicht nötig. Die Zählraten der Präparate 1 bis 6 werden auf die Zählrate des Standardpräparats (100 %) bezogen. In den Präparaten ist die in Tabelle 8 gezeigte Aktivitätsverteilung zu erwarten.

**Tabelle 8:** Übersicht über die zu erwartenden Ergebnisse der Neptunium-Chemie Versuche.

Präparat	Niederschlag	Aktivität des Präparats/%	Chemisches Verhalten des Neptuniums
1	$\text{Ag}_2\text{S}$	1	Keine Sulfidfällung kein Eka-Rhenium
2	$\text{Th}(\text{IO}_3)_4$	60	Mitfällung als $\text{Np}^{4+}(\text{IO}_3)_4$
3	$\text{Fe}(\text{OH})_3$	10	$\text{NpO}_2^{2+}$ bleibt wie $\text{UO}_2^{2+}$ als Carbonatkomplex in Lösung
4	$\text{Fe}(\text{OH})_2$	90	Mitfällung als $\text{Np}(\text{OH})_4$
5	$\text{LaF}_3$	10	$\text{NpO}_2^{2+}$ bleibt in Lösung
6	$\text{LaF}_3$	100	Mitfällung als $\text{Np}^{4+}\text{F}_4$





### Neptunium-Chemie

Die Präparate werden jeweils im zweiten Einschub im NaI-Detektor gemessen (jeweils 5 min).

1 ml Aktivität im RG abholen und auf 10 ml auffüllen liefert Stammlösung.

1. 1 ml Np-Lösung wird mit 3 Tr.  $\text{Ag}^+$ -Träger und 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  versetzt. Mit  $\text{H}_2\text{S}$ -Wasser wird Silbersulfid gefällt. Kurz aufkochen (macht den Niederschlag besser filterbar) und über MF absaugen.

2. 1 ml Np-Lösung wird mit 5 Tr.  $\text{Th}^{4+}$ -Träger, 5 ml 2 N  $\text{HCl}$ , 5 ml  $\text{H}_2\text{O}$  und einer Spatelspitze Eisen(II)sulfat versetzt. Die Lösung 5 min kochen und gut abkühlen lassen. In der Kälte wird mit  $\text{KIO}_3$  gefällt. Das Präparat kommt später in den  $\alpha$ -Abfall.

3. 1 ml Np-Lösung mit 5 mg  $\text{Fe}^{3+}$ -Träger (50 Tropfen), 10 ml 2 N  $\text{HNO}_3$  und einer Spatelspitze  $\text{KBrO}_3$  versetzen. Im Abzug in der Siedehitze 5-10 min oxidieren ( $\text{Br}_2$ -entwicklung!). Fällung von Eisen(III)hydroxid mit  $\text{CO}_2$ -haltigem  $\text{NH}_3$ . (Falls Fe nicht fällt, ist die Lösung noch zu sauer.)

4. 1 ml Np-Lösung mit 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  und einer gehäuften Spatelspitze Hydroxylamin versetzen und 5 min in der Siedehitze reduzieren. Dann werden 5 mg  $\text{Fe}^{3+}$  (50 Tropfen) zugegeben. Fällung von  $\text{Fe(II)hydroxid}$  mit  $\text{CO}_2$ -haltigem Ammoniak.

5. 1 ml Np-Lösung mit 10 ml 2 N  $\text{HNO}_3$  und einer Spatelspitze  $\text{KBrO}_3$  versetzt und im Abzug 5-10 min in der Siedehitze oxidiert. Dann gibt man 10 mg  $\text{La}^{3+}$ -Träger und 5 Tropfen  $\text{Zr}^{4+}$ -Träger hinzu und fällt mit gesättigter  $\text{NaF}$ -Lösung. Der Niederschlag wird mit Eis gekühlt und abgesaugt.

6. 1 ml Np-Lösung wird mit 10 ml  $\text{H}_2\text{O}$  und einer gehäuften Spatelspitze Hydroxylamin versetzt. In der Siedehitze wird 5 min lang reduziert. Dann setzt man 10 Tropfen  $\text{La}^{3+}$ -Träger und 5 Tropfen  $\text{Zr}^{4+}$ -Träger zu. Anschließend wird mit gesättigter  $\text{NaF}$ -Lösung gefällt. Der Niederschlag wird im Eis gekühlt und abgesaugt.

7. Standardpräparat (wird vom Assistenten angefertigt)

Auf einem Glasfaserfilter mit dem Durchmesser wie der Innendurchmesser der Nutsche sind 100  $\mu\text{l}$  der Original-Lösung eingetrocknet worden. Danach wurde das Präparat mit Klebeband abgedeckt.

Auswertung: Der Gehalt an Neptunium relativ zum Standard soll bestimmt werden.

ENTSORGUNG: Die Filtrate in die Kanister, die Präparate in den  $\beta$ -kurz-Abfall. Das Thorium-Präparat (Versuch 2) in den  $\alpha$ -Abfall.

## 11. Der Forschungsreaktor TRIGA Mainz (Dr. Christopher Geppert, Dr. Klaus Eberhardt)

### 11.1 Einleitung

Der Forschungsreaktor TRIGA Mainz (FR MZ) am Institut für Kernchemie der Johannes Gutenberg-Universität Mainz ist einer von derzeit drei in Deutschland in Betrieb befindlichen Forschungsreaktoren. Mit dem Einsetzen des 57. Brennelements in den Reaktorkern wurde der Reaktor am 3. August 1965 erstmals kritisch. Bei der Einweihungsfeier im April 1967 erfolgte die offizielle Inbetriebnahme durch den Nobelpreisträger und Entdecker der Kernspaltung Otto Hahn, was in Abbildung 36 dargestellt ist. Seitdem ist der Reaktor bis auf eine kurze Umbauphase im Jahr 1995 störungsfrei in Betrieb. Die Nutzung des FR MZ beruht auf drei Säulen: die universitäre Nutzung des FR MZ in der angewandten Wissenschaft sowie Grundlagenforschung, die Ausbildung junger Studenten auf aktuellen Wissenschaftsgebieten und der Kompetenzerhalt durch Anfänger- sowie weiterführende Kurse für eine breite Öffentlichkeit. In allen diesen Bereichen spielt der TRIGA-Reaktor als intensive Neutronenquelle und Trainingsreaktor eine unverzichtbare Rolle.



**Abbildung 36:** Nobelpreisträger Otto Hahn am Steuerpult des TRIGA Mainz im Moment der offiziellen Einweihung am 3. April 1967.

### 11.2 Aufbau

Der Forschungsreaktor der Universität Mainz ist ein TRIGA-Reaktor Typ Mark II von General Atomic, einem Tochterunternehmen des amerikanischen Großkonzerns General Electric. TRIGA Reaktoren wurden seit den sechziger Jahren des vergangenen Jahrhunderts bis kurz nach der Jahrtausendwende weltweit aufgebaut und bis heute sind davon noch über 30 Reaktoren im Betrieb.

### 11.2.1 Reaktortank

Der Reaktor hat eine Höhe von etwa 6,5 m über dem Hallenboden und eine Sockelbreite von gleichfalls 6,5 m. Abbildung 37 zeigt eine Schnittzeichnung durch den Reaktor. Eine 2,3 m dicke Betonumwandung bildet das sogenannte biologische Schild um den Reaktortank. Dieser hat einen Durchmesser von 2 m und eine 18 m<sup>3</sup> Wasser fassende Außenhülle bestehend aus einer AlMg<sub>3</sub>-Legierung. Da der Tank zur Oberseite hin offen ist, spricht man von einem sogenannten „swimming-pool“-Reaktor. Das verwendete Wasser ist vollentsalztes normales Wasser mit einer Leitfähigkeit von kleiner als 1  $\mu$ S/cm.

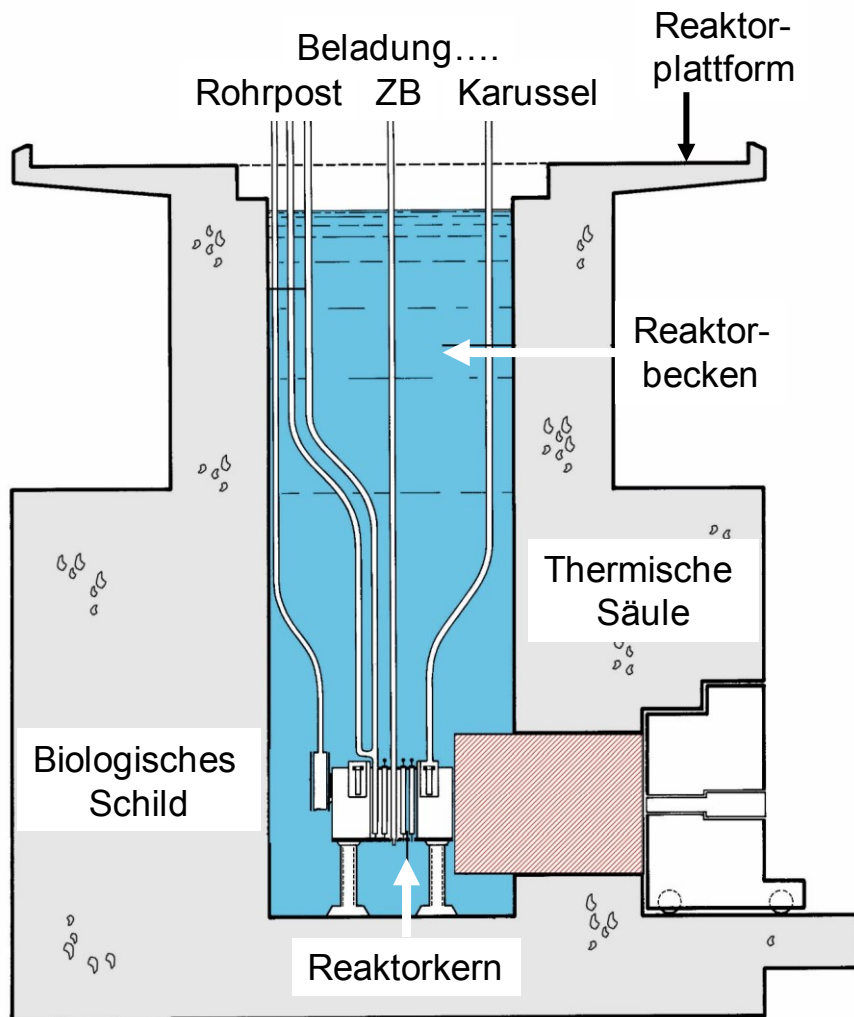


Abbildung 37: Schnittzeichnung durch einen Reaktor vom Typ TRIGA Mark II.

### 11.2.2 Steuerstäbe

Der Mittelpunkt des Reaktortanks ist der Reaktorkern. Fünf Meter unter der Wasseroberfläche befindet sich im Zentrum des Tanks eine Halterung hauptsächlich für derzeit 76 Brennelemente (siehe Abschnitt 11.3) sowie die Aufnahmen für die Steuerstäbe. Insgesamt verfügt der FR MZ über drei unterschiedliche Steuerstäbe. Alle Steuerstäbe bestehen aus dünnwandig mit Aluminium ummantelten Borkarbid-Zylindern, die durch einen Antrieb oberhalb des Reaktortanks in den Kern hinein- oder herausgefahren werden können. Bor, insbesondere das im natürlichen Gemisch zu ca. 20 % enthaltene Isotop <sup>10</sup>B hat einen hohen

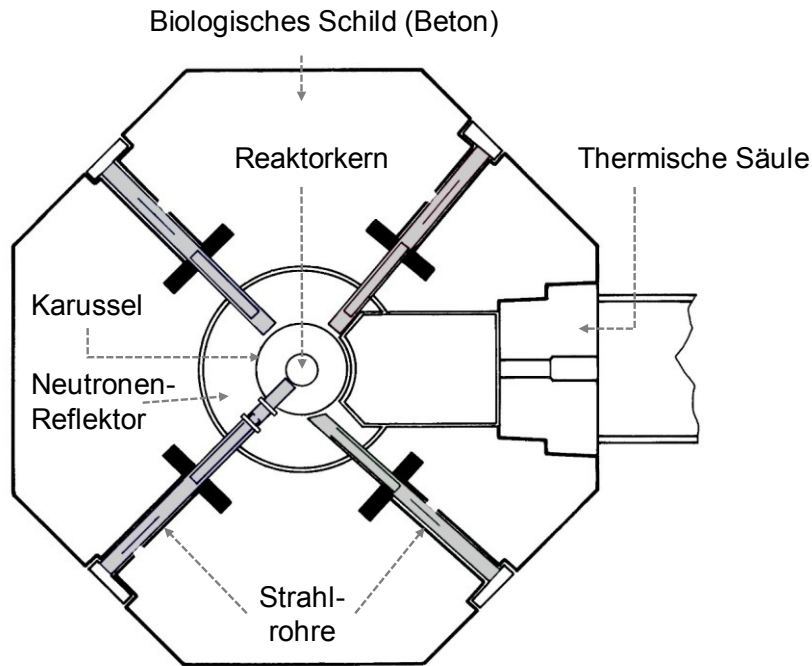


Einfangsquerschnitt für thermische Neutronen. Dies bedeutet: je weiter die Steuerstäbe in den Reaktorkern hineingefahren werden, umso mehr Neutronen werden durch die Steuerstäbe absorbiert und stehen für die Kettenreaktion (siehe Theorie zur Kernspaltung Abschnitt 8. Nachweis der Kernspaltung mittels Mitfällung von Radioisotopen durch Mischkristallbildung) nicht zur Verfügung.

Den größten Einfluss hat der sogenannte Trimmstab, der zur Grobeinstellung der Reaktorleistung verwendet werden kann. Er allein hat eine ausreichende Wertigkeit, d.h. absorbiert so viele Neutronen, dass sein komplettes Einbringen in den Reaktor die Kettenreaktion im Kern vollständig unterbricht und einen weiteren Reaktorbetrieb unmöglich macht. Parallel dazu gibt es einen sogenannten Regelstab, der dazu dient, kleine Leistungsschwankungen des Reaktors zu kompensieren und die Reaktorleistung auf einer wählbaren thermischen Leistung automatisiert zu stabilisieren. Zusätzlich ist der FR MZ mit einem weiteren, optionalen Steuerstab ausgestattet. Dieser wird nicht über einen Elektromotor, sondern über ein Steuerventil, angeschlossen an eine Druckluftleitung mit 5 bar Druckluft, angetrieben. Bei geschlossenem Steuerventil liegt dieser sogenannte „Pulsstab“ im Reaktorkern. Wird das Ventil über ein Regelsignal aus der Reaktorwarte geöffnet, so wird der Pulsstab in Sekundenbruchteilen aus dem Kern herausgeschossen.

### 11.2.3 Bestrahlungseinrichtungen

Zur weiteren elementaren Ausstattung des Reaktors gehören die Bestrahlungseinrichtungen. Kleine Proben können kurzfristig in drei verschiedenen Einrichtungen bestrahlt werden (siehe auch Abbildung 37). Den höchsten Neutronenfluss ( $\Phi_{\text{therm}} = 4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ) erzielen Bestrahlungen im zentralen Bestrahlungsrohr (ZB). In einem Ring um die Brennelemente herum befindet sich das sogenannte Karussell. Es beinhaltet einen Probenrevolver mit 40 Positionen, in denen Probenkapseln mit einem mittleren Neutronenfluss von  $\Phi_{\text{therm}} = 0,7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  ständig um den Reaktorkern herum zirkulieren. Die Einbringung und die Entnahme der Proben in das ZB oder das Karussell geschehen manuell durch einen Reaktoroperateur. Im Gegensatz dazu erlaubt ein Rohrpostsystem Proben aus verschiedenen Labors mittels Unterdruck in bis zu drei verschiedene Probenpositionen mit einem Neutronenfluss von  $\Phi_{\text{therm}} = 2 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  einzuschießen und mittels einer halbautomatischen Zeitsteuerung wieder auszuschießen.



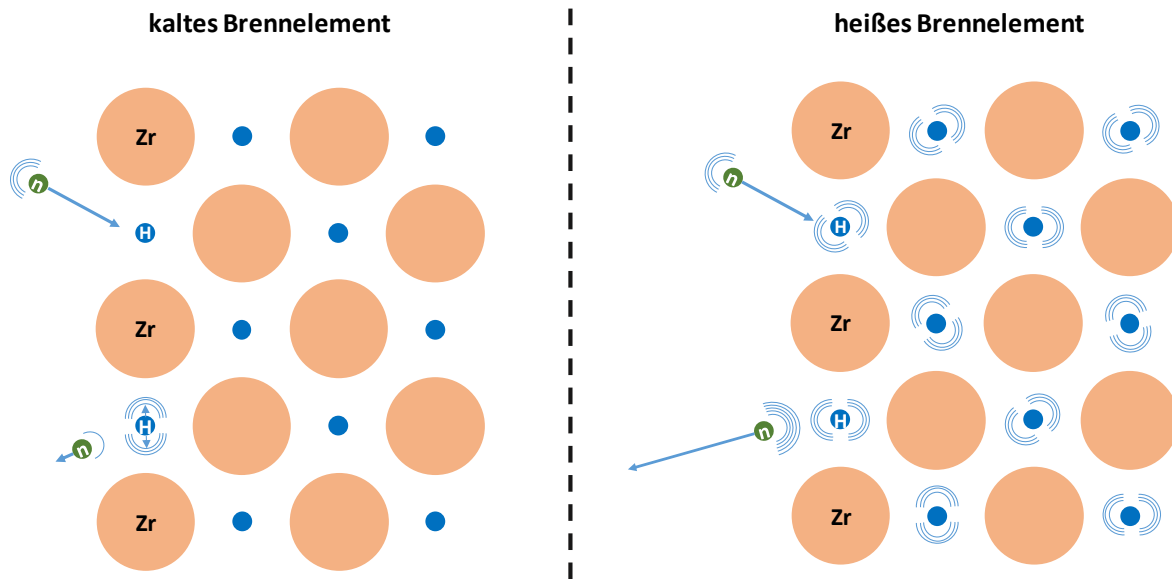
**Abbildung 38:** Horizontale Schnittzeichnung durch den Reaktor auf Höhe des Kerns und der vier Strahlrohre.

In Ergänzung zu den über die Reaktorplattform zu beladenden Bestrahlungspositionen können auf Höhe des Kerns verschiedenen Experimente in vier sogenannte Strahlrohrpositionen (siehe Abbildung 38) eingebracht werden und in der Reaktorkernnähe positioniert werden. Die Strahlrohreinsätze erlauben Experimente mit einem Durchmesser von maximal 150 mm einzubauen, die in der Regel in mehrtägigen Strahlzeiten zum Einsatz kommen.

Die thermische Säule (TS) ist ein großer, mit Grafit gefüllter Behälter mit Aluminiumhülle. Die Grafitfüllung der TS besteht aus hochreinen („reactor-grade“), dichtgefügt Grafitblöcken mit einem Querschnitt von 200 mm x 200 mm. Zur äußeren Abschirmung der TS in Richtung der Experimentierhalle ist ein etwa 1 m dickes, auf Schienen fahrbares Beton-Strahlenschutztor vorhanden. Bei geöffnetem Strahlenschutztor lassen sich einzelne Grafitblöcke mit einem Querschnitt von jeweils 100 mm x 100 mm und einer Länge von 127 cm entfernen, um größere Proben wie z.B. Behälter mit Zellkulturen oder Elektronikkomponenten zur Bestrahlung in die TS einzubringen.

### 11.3 Brennstoff und Moderation

Eine herausragende Besonderheit von TRIGA Reaktoren sind die Eigenschaften der Brennelemente (BE). Dabei handelt es sich um Stäbe bestehend aus einer Zirkoniumhydrid (ZrH)-Matrix in einem dünnwandigen Aluminium- bzw. Edelstahlgehäuse. Diese Matrix ist mit nur 8 Gewichtsprozent Uran dotiert. Der Anreicherungsgrad des Anteils  $^{235}\text{U}$  ist derart gering, dass man hier von nicht-waffenfähigem Uran spricht (auch „low enriched uranium“ = LEU genannt).



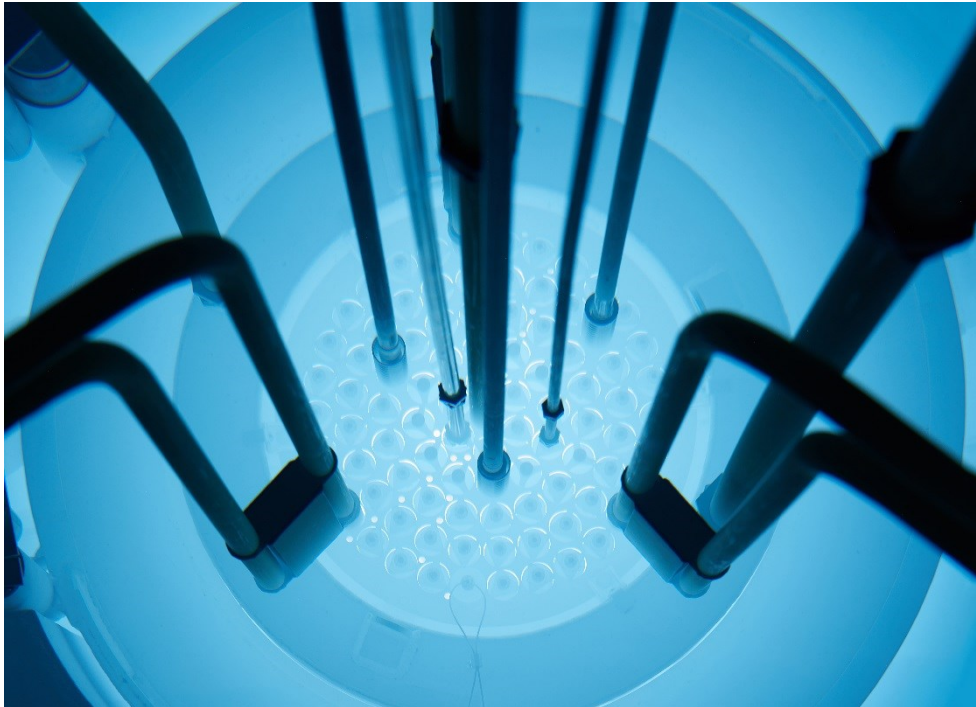
**Abbildung 39:** Illustration der Moderationsfähigkeit von ZrH bei unterschiedlichen Temperaturen des Brennelements. Das Neutron (n) aus der Spaltung findet in den Wasserstoff-Atomen (H) der Moderator-Matrix (ZrH) einen idealen weil gleichschweren Stoßpartner, um seine kinetische Energie abzugeben. Ist das Brennelement kalt (linkes Bild), so ist das Wasserstoff-Atom annähernd in Ruhe und nimmt die Energie auf, woraufhin das Neutron abgebremst die Matrix verlässt. Bei hohen Temperaturen im Brennelement (rechtes Bild) befindet sich das Wasserstoff-Atom bereits durch die thermische Anregung in einem hohen Vibrationszustand und anstatt das Neutron aus der Spaltung abzubremsen, wird noch Energie an das Neutron übergeben und beschleunigt. Die Moderation von Neutronen kommt somit im Brennelement zum Stillstand und die Kettenreaktion bricht ab.

Im Gegensatz zu Leistungsreaktoren geschieht die primäre Moderation der Neutronen aus dem Spaltungszyklus in den BE selbst. Der Wasserstoff (H) in der ZrH-Matrix kann im sogenannten Einstein-Modell in guter Näherung als freier Oszillator beschrieben werden. Durch seine im Vergleich zu den Spaltneutronen annähernd gleiche Masse ist er ein idealer Stoßpartner zur Energiedissipation und damit zum Abbremsen der Neutronen. Wie in Abbildung 39 illustriert kann in einem kalten Brennelement dann die Energie des Neutrons auf ein Wasserstoffmolekül übertragen werden. Steigt die Temperatur in den BE und damit im ZrH, so wird der Wasserstoff in der Matrix selbstständig (thermische) Energie aufnehmen. Stößt ein Neutron unter solchen Bedingungen auf ein H-Molekül, so läuft der Energietransfer in die umgekehrte Richtung und die Neutronen werden nicht länger abgebremst. Das bedeutet, mit steigender Temperatur nimmt die Moderation der Neutronen ab, man spricht von einem negativen Moderations-Temperaturkoeffizient. Dieser Sicherheitsmechanismus reagiert binnen Millisekunden und bedarf keinerlei Eingriffen durch mechanische oder elektronische Maßnahmen außerhalb der BE. Er beruht allein auf unveränderlichen physikalisch-chemischen Eigenschaften und ist damit ausfallsicher gegenüber Fehlbehandlung oder Systemausfällen. Diese inhärente Sicherheit ist das charakteristische Merkmal der TRIGA Forschungsreaktoren. Nachteilig ist dieser negative Moderations-Temperaturkoeffizient für die Energieerzeugung: durch das automatische Abschalten der Kettenreaktion bei steigender Betriebstemperatur kann das Wasser im Reaktortank nicht zum Sieden oder zur Dampfbildung erhitzt werden, wodurch keine nachgeschalteten Turbinen etc. zur Energiegewinnung eingesetzt werden können.

Der Kern des Forschungsreaktor TRIGA Mainz ist ein sogenannter „life-time core“. Das bedeutet, dass bedingt durch seinen geringen Abbrand von nur etwa 4 g Uran im Jahr im Gegensatz zu anderen Forschungsreaktoren die BE des Reaktorkerns nicht regelmäßig ausgetauscht und entsorgt werden müssen. Eine Entsorgung von BE aus dem Reaktorkern wird damit nur bei der endgültigen Abschaltung und Rückbau des Forschungsreaktors notwendig.

## 11.4 Betriebsarten

Es gibt zwei wählbare Betriebsarten des FR MZ. Im sogenannten Dauerbetrieb wird der FR MZ bei konstanten thermischen Leistungen zwischen 100 mW und 100 kW, je nach Erfordernissen der Nutzer, betrieben. Gemessen an der maximalen Leistung ist der FR MZ weltweit einer der kleinsten Forschungsreaktoren. Der Reaktor wird zu etwa 80 % im Dauerbetrieb betrieben.



**Abbildung 40:** Blick in den Reaktorkern im Lichte der Tscherenkov-Strahlung während eines Neutronen-Pulses. (Foto: Bernhard Ludewig)

Außer dem Dauerbetrieb ist allerdings, aufgrund des negativen Moderations-Temperaturkoeffizient der ZrH-Brennstoffmatrix (vgl. Abschnitt 11.3), auch ein Impulsbetrieb möglich. Dabei wird bei einer geringen, stabilisierten Reaktorleistung der Pulsstab schnell aus dem Reaktorkern ausgeschossen und die Rate der Kettenreaktionen im Kern steigt stark an. Die dabei zunehmende Temperatur in den BE führt dann zu einer abnehmenden Moderationsfähigkeit der ZrH-Matrix und schließlich zur Unterbrechung der Kettenreaktion in den BE. Dieser Vorgang führt zu einer pulsförmigen Freisetzung von Neutronen bei denen in einem Zeitfenster von etwa 30 Millisekunden eine mittlere Spitzenleistung von bis zu 250 MW erreicht wird. Beobachtet werden kann dieser Neutronenpuls durch die begleitende Tscherenkov-Strahlung.

## 11.5 Wissenschaftliche Nutzung

Das Anwendungsgebiet des FR MZ ist sehr breit gefächert. Es beinhaltet neben dem Arbeitsbereich der angewandten Wissenschaft auch aktuelle Themen der physikalischen Grundlagenforschung sowie der Ausbildung und dem Kompetenzerhalt.

### 11.5.1 Angewandte Wissenschaft

Für die Elementanalytik im ppm-Bereich wird am FR MZ die Neutronenaktivierungs-Analyse (NAA) eingesetzt. Dabei werden aus stabilen Spurenelementen durch Neutroneneinfang radioaktive Isotope. Diese können nach der Bestrahlung im Reaktor anhand ihrer charakteristischen Strahlung unter einem Detektor identifiziert und quantitativ bestimmt werden. Dadurch kann auf die ursprüngliche Zusammensetzung der Probe zurück geschlossen werden. Nach den ersten spektakulären Analysen von Mondgestein in Deutschland im Jahr 1970 aus der Apollo 11 Mission wird die NAA heute beispielsweise eingesetzt zur Herkunftsanalyse historischer Gesteins oder Materialproben. Auch für landwirtschaftliche Fragestellungen an Bodenproben oder aktuell zuletzt zur Untersuchung und Optimierung von Verfahren zwecks Herstellung von hochreinem Silizium für Solarzellen wird die NAA des FR MZ im Rahmen wissenschaftlicher Kollaborationen eingesetzt.

Zudem kann der Reaktor für Materialtests eingesetzt werden: so kann in Nähe des Reaktorkerns die Empfindlichkeit bzw. Ausfallsicherheit von Detektoren, Platinen oder Halbleiterbauteilen gegenüber radioaktiver Strahlung untersucht werden. Dies dient zur Simulation beispielsweise von Betriebsbedingungen oder beschleunigten Alterungstests von Bauteilen, die in der Umgebung von intensiven radioaktiven Strahlen in leistungsstarken Beschleunigerzentren eingesetzt werden könnten oder für Baugruppen, die auf Satelliten bzw. der Raumfahrt im All zum Einsatz kommen sollen.

### 11.5.2 Grundlagenforschung

An zwei der Strahlrohre des FR MZ wurden in den letzten Jahren auch in Zusammenarbeit mit der TU München Quellen zur Erzeugung ultrakalter Neutronen (im engl.: ultra-cold neutrons = UCN) entwickelt und in Betrieb genommen. Diese dienen zur kontinuierlichen oder gepulsten Erzeugung von Neutronenstrahlen mit einer Energie von unter 300 Nanoelektronenvolt (neV) die beim Durchgang durch einen Deuterium-Eiskristall bei -268 °C gekühlt werden. Die derart erzeugten UCN werden in nachfolgend aufgebauten Experimenten verwendet um die Eigenschaften von Neutronen wie etwa deren Lebensdauer oder Ladungsneutralität zu untersuchen.

An einem weiteren Strahlrohr des FR MZ wird mittels hochauflösender Penningfallen-Massenspektrometrie ein Präzisionsexperiment zur Untersuchung exotischer radioaktiver Isotope betrieben. Diese Experimente, die in Kollaboration mit dem Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg durchgeführt werden, beschreiben die Bindungsenergie von Atomkernen und liefern damit einen Beitrag zum Verständnis des Aufbaus und der Entstehung von Atomkernen.

Das vierte Strahlrohr wird für die Entwicklung schneller, kontinuierlicher Trennverfahren zur Untersuchung der chemischen Eigenschaften der Transaktiniden-Elemente (mit  $Z > 103$ ) eingesetzt. Diese Elemente werden an Beschleunigern mit so geringen Produktionsraten erzeugt, dass man chemische Umsetzungen mit einzelnen Atomen durchführt. Am TRIGA erzeugte Spaltprodukte können als Modellelemente dienen, um hocheffiziente Trennverfahren für Transaktiniden auszuarbeiten.

### 11.5.3 Ausbildung

Das den FR MZ beinhaltende Institut für Kernchemie hat eine langanhaltende Tradition in der Ausbildung und Lehre. Es bietet zweimal pro Semester umfangreiche Praktika auf dem Bereich der Kernchemie für Studenten in den Studiengängen Chemie und Physik an, für die der Reaktor zur Erzeugung der benötigten radioaktiven Präparate eingesetzt wird. Ein

Alleinstellungsmerkmal unter den Universitäten in Deutschland hat der FR MZ als Ausbildungsreaktor, bei dem Studenten sowohl den Betrieb des Reaktors als auch die zugrundeliegende Reaktorphysik durch eine Reihe von Prüflisten bzw. Experimenten in einem einwöchigen Praktikum erlernen. In diesem Praktikum „fahren“ die Studenten den Reaktor selbstständig.

Außerhalb des Studienangebots der Universität ist die Teilnahme an einem Reaktorpraktikum am FR MZ derzeit eine Grundvoraussetzung für das Bestehen der Reaktorschule am Paul-Scherrer-Institut und damit langfristig zur Zulassung als Operateur in der Schweiz. Weiterhin bietet das Institut für Kernchemie eine Vielzahl von Kursen auf dem Gebiet des Strahlenschutzes zur Erlangung der Fachkunde im Strahlenschutz an. So gibt es beispielsweise neben den allgemeinen Grundkursen auch spezialisierte Lehrveranstaltungen beispielsweise für Lehrer an Schulen, ABC-Truppführer der Feuerwehr etc.

Damit liefert der FR MZ, etwa 50 Jahre nach seiner offiziellen Inbetriebnahme durch Otto-Hahn, einen wertvollen Beitrag zu Forschung, wissenschaftlicher Ausbildung und Kompetenzerhalt am Wissenschaftsstandort Deutschland, auch über die Grenzen der Johannes Gutenberg-Universität heraus. Seinen im Vergleich zu anderen deutschen Forschungsreaktoren geringeren Neutronenflüssen steht eine inhärente Sicherheit gegenüber, die den FR MZ zu einem idealen, vielseitig einsetzbaren Werkzeug im universitären Betrieb machen.

## 12. Anhang

### 12.1 Abbildungsverzeichnis

<b>Abbildung 1:</b> Charakteristik eines Geiger-Müller-Zählrohrs. Die Spannungswerte gelten nicht für die im Praktikum verwendeten GMZ. ....	- 2 -
<b>Abbildung 2:</b> Skizze des Versuchsaufbaus zur Herstellung fester radioaktiver Präparate. .	- 7 -
<b>Abbildung 3:</b> Absorptionskurve für die $\beta$ -Strahlung von $^{234}\text{Pa}$ . ....	- 12 -
<b>Abbildung 4:</b> Energie-Reichweite-Diagramm für $\beta$ -Teilchen und Elektronen in Aluminium. .	- 14 -
<b>Abbildung 5:</b> Nachbildungskurve für verschiedene Verhältnisse der Halbwertszeiten von Mutter- und Tochternuklid. ....	- 19 -
<b>Abbildung 6:</b> Das Zerfallsschema des $^{137}\text{Cs}$ . ....	- 20 -
<b>Abbildung 7:</b> Die Nachbildung des $^{137}\text{Ba}$ aus $^{137}\text{Cs}$ . Punkte: Nachbildungskurve des $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ; Dreiecke: Zerfall von $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ( $I_\infty - I$ ). ....	- 22 -
<b>Abbildung 8:</b> Graphische Darstellung des Comtoneffekts. ....	- 23 -
<b>Abbildung 9:</b> Der Absorptionskoeffizient für $\gamma$ -Strahlung bei verschiedenen Materialien. -	- 24 -
<b>Abbildung 10:</b> Die Funktionsweise eines Szintillationsdetektors mit Photomultiplier. ....	- 26 -
<b>Abbildung 11:</b> Zeitlicher Verlauf der Signale im Wilkinson-ADC. ....	- 27 -
<b>Abbildung 12:</b> Blockschaltbild einer Messanordnung mit NaI(Tl)-Detektor. ....	- 28 -
<b>Abbildung 13:</b> Der Wirkungsgrad $T(E_\gamma)$ eines 3x3-NaI(Tl)-Detektors. ....	- 31 -
<b>Abbildung 14:</b> Peak-to-Total-Verhältnis $P(E_\gamma)$ für einen 3x3-NaI(Tl)-Detektor. ....	- 32 -
<b>Abbildung 15:</b> Graphische Veranschaulichung zur Bestimmung der Netto-Peakfläche in einem $\gamma$ -Spektrum. ....	- 34 -
<b>Abbildung 16:</b> Die natürlichen radioaktiven Zerfallsreihen. ....	- 37 -
<b>Abbildung 17:</b> Prinzipielle Verfahren in der nuklearmedizinischen Diagnostik. ....	- 46 -
<b>Abbildung 18:</b> Allgemeines Design eines peptidischen Targetingvektors. ....	- 47 -
<b>Abbildung 19:</b> Octreotid und seine Derivate. ....	- 48 -
<b>Abbildung 20:</b> Säkuläres Gleichgewicht des $^{68}\text{Ge}/^{68}\text{Ga}$ -Generators bezogen auf einen Trennvorgang (A: Anstieg der Tochteraktivität in einer reinen Mutterfraktion, B: unabhängiger Zerfall der abgetrennten reinen Tochterfraktion, C: unabhängige Aktivität der reinen Mutterfraktion). ....	- 52 -
<b>Abbildung 21:</b> Analyse der Markierungskinetiken und Produktqualität durch Radio-Dünnschichtchromatographie. ....	- 53 -
<b>Abbildung 22:</b> Neutroneneinfangquerschnitt von Silber in Abhängigkeit von der Neutronenenergie. Die Resonanzen lassen sich jeweils einem der beiden natürlichen Isotope $^{107}\text{Ag}$ und $^{109}\text{Ag}$ zuordnen. ....	- 56 -
<b>Abbildung 23:</b> Bestrahlungsanordnung für eine Am/Be-Quelle. ....	- 57 -
<b>Abbildung 24:</b> a Zerlegung der komplexen Zerfallskurve von $^{108}\text{Ag}$ und $^{110}\text{Ag}$ ; b Bildungskurven von $^{108}\text{Ag}$ und $^{110}\text{Ag}$ . ....	- 58 -
<b>Abbildung 25:</b> Speisung von Anregungszuständen durch $\beta^-$ -Zerfall und Abregung durch Emission von $\gamma$ -Strahlung. ....	- 64 -
<b>Abbildung 26:</b> Energieniveau-Schema für $^{190\text{m}}\text{Os}$ . Links sind die realen Zustände, rechts die eines starren Rotators angegeben. ....	- 66 -
<b>Abbildung 27:</b> $\beta$ -Spektrum in der Fermi-Curie Darstellung. ....	- 67 -
<b>Abbildung 28:</b> Die Fermi-Funktion für den $\beta^-$ -Zerfall in Abhängigkeit vom Impuls $p$ der Elektronen. ....	- 70 -
<b>Abbildung 29:</b> Der Zusammenhang zwischen Elektronenimpuls und kinetischer Energie der Elektronen. ....	- 71 -
<b>Abbildung 30:</b> Konversionselektronenspektrum von $^{207}\text{Bi}$ . ....	- 72 -

<b>Abbildung 31:</b> Zerfallsschema zur Emission $\beta$ -verzögerter Neutronen. ....	- 74 -
<b>Abbildung 32:</b> Spektrum mit gewähltem Kanalbereich für die Auswertung. ....	- 78 -
<b>Abbildung 33:</b> Fällung verschiedener Mengen von $\text{BaCrO}_4$ aus einer Lösung, die neben inaktivem Barium noch mikroskopische Mengen von $^{224}\text{Ra}$ als Tracer enthält. ....	- 81 -
<b>Abbildung 34:</b> Otto Hahns Fazit aus der fraktionierten Bromidfällung von Radium III (entspricht $^{139}\text{Ba}$ ) und Mesothorium-1 (entspricht $^{228}\text{Ra}$ ) vom 17. Dezember 1938. ....	- 83 -
<b>Abbildung 35:</b> Bestimmung der Halbwertszeit für den Elektronenaustausch $\text{Tl}^+/\text{Tl}^{3+}$ . ....	- 90 -
<b>Abbildung 36:</b> Nobelpreisträger Otto Hahn am Steuerpult des TRIGA Mainz im Moment der offiziellen Einweihung am 3. April 1967. ....	- 96 -
<b>Abbildung 37:</b> Schnittzeichnung durch einen Reaktor vom Typ TRIGA Mark II. ....	- 97 -
<b>Abbildung 38:</b> Horizontale Schnittzeichnung durch den Reaktor auf Höhe des Kerns und der vier Strahlrohre. ....	- 99 -
<b>Abbildung 39:</b> Illustration der Moderationsfähigkeit von ZrH bei unterschiedlichen Temperaturen des Brennelements. Das Neutron (n) aus der Spaltung findet in den Wasserstoff-Atomen (H) der Moderator-Matrix (ZrH) einen idealen weil gleichschweren Stoßpartner, um seine kinetische Energie abzugeben. Ist das Brennelement kalt (linkes Bild), so ist das Wasserstoff-Atom annähernd in Ruhe und nimmt die Energie auf, woraufhin das Neutron abgebremst die Matrix verlässt. Bei hohen Temperaturen im Brennelement (rechtes Bild) befindet sich das Wasserstoff-Atom bereits durch die thermische Anregung in einem hohen Vibrationszustand und anstatt das Neutron aus der Spaltung abzubremsen, wird noch Energie an das Neutron übergeben und beschleunigt. Die Moderation von Neutronen kommt somit im Brennelement zum Stillstand und die Kettenreaktion bricht ab. ....	- 100 -
<b>Abbildung 40:</b> Blick in den Reaktorkern im Lichte der Tscherenkov-Strahlung während eines Neutronen-Pulses. (Foto: Bernhard Ludewig) ....	- 101 -

## 12.2 Tabellenverzeichnis

<b>Tabelle 1:</b> Aktivitäten des Tochternuklids zu unterschiedlichen Zeitpunkten t bei Betrachtung des 1. Grenzfalls. ....	- 18 -
<b>Tabelle 2:</b> Die Abhängigkeit der Absorptionskoeffizienten für $\gamma$ -Strahlung von der Ordnungszahl des Absorbers und der $\gamma$ -Energie. ....	- 24 -
<b>Tabelle 3:</b> Literaturwerte für die Peakmaxima der $\gamma$ -Spektren von $^{137}\text{Cs}$ und $^{60}\text{Co}$ . ....	- 33 -
<b>Tabelle 4:</b> Radionuklide für die Diagnostik und Therapie. ....	- 44 -
<b>Tabelle 5:</b> Bindungsaffinitäten ( $\text{IC}_{50}$ ) von mit Metallen markiertem DOTA-konjugiertem Octreotid. ....	- 48 -
<b>Tabelle 6:</b> Auswahl einiger Radionuklidgeneratorsysteme. ....	- 50 -
<b>Tabelle 7:</b> Eigenschaften verzögerter Neutronen (Reactor Physics Constants, ANL-5800).- 74 -	- 74 -
<b>Tabelle 8:</b> Übersicht über die zu erwartenden Ergebnisse der Neptunium-Chemie Versuche. .-	- 94 -