

# Grundlagen der Gammaskpektrometrie

$\gamma$ -SPEKT/GRUNDL

Bearbeiter:

D. Arnold<sup>1</sup>

K. Debertin<sup>1†</sup>

A. Heckel<sup>2</sup>

G. Kanisch<sup>3</sup>

H. Wershofen<sup>1</sup>

C. Wilhelm<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Physikalisch-Technische Bundesanstalt

<sup>2</sup> Bundesamt für Strahlenschutz

<sup>3</sup> Thünen-Institut für Fischereiökologie

<sup>4</sup> Karlsruher Institut für Technologie

## Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung .....	1
2	Komponenten einer Gammaspektrometriemesseinrichtung .....	2
2.1	Detektor .....	2
2.1.1	Detektormaterial .....	2
2.1.2	Kristallformen .....	3
2.1.3	Betrieb von Reinstgermaniumdetektoren .....	3
2.1.4	Kenngößen eines Detektors .....	4
2.1.5	Hinweise zur Auswahl eines geeigneten Detektors .....	5
2.2	Abschirmung .....	5
2.3	Elektronik .....	6
2.4	Rechner und Auswerteprogramm .....	7
3	Geometrie der Messpräparate .....	8
4	Nachweiswahrscheinlichkeiten für Gammastrahlung .....	9
5	Auswertung des Impulshöhenspektrums .....	10
5.1	Liniensuche .....	10
5.2	Radionuklidbibliothek .....	10
5.3	Impulsanzahlen unter einer ungestörten Gammalinie (Singulett) .....	11
5.3.1	Additionsverfahren .....	11
5.3.2	Verfahren der empirischen Stufenfunktion $S_e(K)$ .....	13
5.3.3	Linienanpassungsverfahren .....	14
5.3.3.1	Gaußfunktion $G(K)$ .....	15
5.3.3.2	Tailingfunktion $T(K)$ .....	16
5.3.3.3	Untergrundkontinuum .....	16
5.4	Impulsanzahlen unter einer Gruppe von Gammalinien (Multipllett) .....	17
6	Kalibrierung einer Gammaspektrometriemesseinrichtung .....	18
6.1	Energiekalibrierung .....	18
6.2	Kalibrierung der Energieabhängigkeit der Linienform .....	18
6.3	Bestimmung des Nachweisvermögens oder der Nachweiswahrscheinlichkeit .....	19
6.3.1	Nuklidspezifische Kalibrierung (Nachweisvermögen) .....	20
6.3.2	Kalibrierung als Funktion der Energie (Nachweiswahrscheinlichkeit) .....	20
6.3.2.1	Kalibrierung als Funktion der Energie mit Einliniennukliden .....	20
6.3.2.2	Kalibrierung als Funktion der Energie mit Mehrliniennukliden .....	21
6.3.2.3	Kalibrierkurve für die Nachweiswahrscheinlichkeit .....	21
6.3.3	Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit .....	23
6.3.3.1	Grundlagen .....	23
6.3.3.2	Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit mit Vorkalibrierung des Detektors .....	24
6.3.3.3	Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit nach dem Prinzip der „Übertragung der Nachweiswahrscheinlichkeit“ .....	26

7	Korrektion von Koinzidenzsumationen .....	27
7.1	Grundlagen .....	27
7.2	Korrektionsfaktoren für Koinzidenzsumationen $f_{i,j}$ .....	28
8	Korrektion der Selbstschwächung .....	32
9	Aktivitätsbestimmung .....	33
9.1	Aktivitätsbestimmung nach nuklidspezifischer Kalibrierung .....	33
9.2	Aktivitätsbestimmung nach energiespezifischer Kalibrierung .....	33
9.3	Pile-up und Totzeitkorrektion .....	33
9.4	Zerfallskorrekturen .....	34
9.4.1	Korrektion des radioaktiven Zerfalls während der Messung .....	34
9.4.2	Korrektion des radioaktiven Zerfalls bezogen auf einen Bezugszeitpunkt .....	34
9.4.3	Hinweise zu Zerfallskorrekturen bei Mutter-Tochter-Paaren .....	34
9.5	Nulleffektazug .....	35
9.6	Interferenzen .....	35
9.7	Summations- und Escapelinien .....	35
9.8	Aktivitätsbestimmung von Radionukliden, die Gammastrahlung mehrerer Energien emittieren .....	36
9.8.1	Gewichteter Mittelwert der Aktivität .....	36
9.8.2	Auswertung mit linearem Gleichungssystem .....	37
9.9	Besonderheiten bei der Aktivitätsbestimmung natürlicher Radionuklide .....	38
9.10	Bezogene Aktivität .....	39
9.11	Messunsicherheit .....	39
10	Erkennungsgrenze und Nachweisgrenze .....	40
	Anhänge .....	41
A	Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids durch Auswertung einer Gammalinie .....	41
B	Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids durch Auswertung mehrerer Gammalinien ..	43
C	Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen am Beispiel der Bestimmung der spezifischen Aktivitäten von Cs-134 und Cs-137 in Fisch .....	45
C.1	Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze für die spezifische Cs-137-Aktivität .....	45
C.2	Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze für die spezifische Cs-134-Aktivität .....	46
D	Grundlagen zu Korrektionsfaktoren für Koinzidenzsumation .....	47
D.1	Physikalische Grundlagen .....	49
D.2	Korrektionsfaktoren .....	53
D.3	Rechenbeispiel für Y-88 .....	54
D.3.1	Korrektionsfaktor für die 898-keV-Linie .....	55
D.3.2	Korrektionsfaktor für die 1836-keV-Linie .....	56
E	Anwendung spezieller Radionuklidbibliotheken für natürliche Radionuklide .....	58
E.1	Betrachtung der Radionuklide Pb-214 und Bi-214 .....	58
E.2	Betrachtung der Radionuklide Th-228 und Ra-224 .....	58
	Literatur .....	61

# Grundlagen der Gammaspektrometrie

## 1 Einleitung

Bei der Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt spielt die Gammaspektrometrie eine wesentliche Rolle, da eine Vielzahl von natürlichen Radionukliden und von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus kerntechnischen Anlagen Gammastrahlung emittieren.

Vorteile der Gammaspektrometrie sind unter anderem die simultane Identifikation und Aktivitätsbestimmung verschiedener Radionuklide in einem Messpräparat; die Messpräparate können dabei meist ohne aufwendige Probenaufbereitung aus unterschiedlichsten Matrices hergestellt werden. Der relevante Energiebereich der nachzuweisenden Gammastrahler erstreckt sich von ca. 30 keV bis zu ca. 2000 keV. Mit diesem Verfahren lassen sich geringe Aktivitäten radioaktiver Stoffe bis 0,1 Bq noch ausreichend sicher nachweisen.

In den folgenden Kapiteln werden Informationen über

- den Aufbau einer Gammaspektrometriemesseinrichtung,
- deren Kalibrierung,
- die Auswertung der Impulshöhenspektren sowie
- die Aktivitätsbestimmung

gegeben.

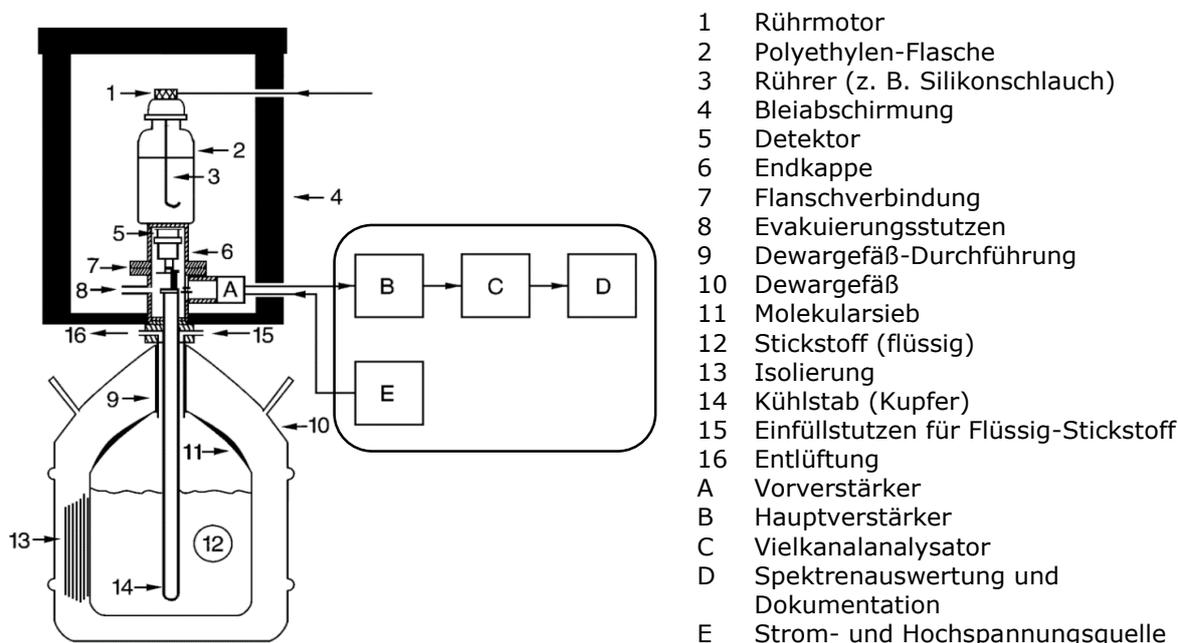
Auf die physikalischen Grundlagen der Gammaspektrometrie sowie auf die Funktionsweise der Detektoren und der Elektronik wird nicht näher eingegangen, hierzu wird auf die einschlägige Literatur (1, 2, 3), verwiesen.

Für die Erklärung von Fachbegriffen steht das „Glossar zu den Messanleitungen für die Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt und externer Strahlung“ zur Verfügung.

## 2 Komponenten einer Gammaskpektrometrie-messeinrichtung

Eine Gammaskpektrometriemesseinrichtung besteht im Wesentlichen aus vier Komponenten (siehe Abbildung 1):

- dem Detektor (siehe Abschnitt 2.1),
- der Abschirmung des Detektors (siehe Abschnitt 2.2),
- der Elektronik (siehe Abschnitt 2.3),
- dem Rechner inkl. Software (siehe Abschnitt 2.4).



**Abb. 1:** Schematische Darstellung einer Messeinrichtung für die Gammaskpektrometrie mit wässrigem Messpräparat

### 2.1 Detektor

#### 2.1.1 Detektormaterial

Gammaskpektrometriedektoren werden hinsichtlich der verwendeten Detektormaterialien und der Bauformen unterschieden.

Heutzutage werden für gammaskpektrometrische Messungen folgende Detektormaterialien verwendet:

- NaI(Tl);
- LaBr<sub>3</sub>;
- Si(Li);
- Reinstgermanium (High Purity Germanium, HPGe).

Gammaskpektrometer mit NaI(Tl) oder LaBr<sub>3</sub> als Detektormaterial werden wegen ihres relativ geringen Energieauflösungsvermögens u. a. für Screeningverfahren, in mobilen Messeinrichtungen oder für Dosis- bzw. Dosisleistungsmessungen eingesetzt.

Si(Li)-Detektoren sind hingegen in der Gammaskopie für die Aktivitätsbestimmung von Röntgen- und niederenergetischen Gammastrahlern mit Photonenenergien unterhalb 60 keV geeignet.

Für Messungen radioaktiver Stoffe werden überwiegend HPGe-Detektoren eingesetzt, weil sie aufgrund ihrer hohen Energieauflösung die gleichzeitige Bestimmung verschiedener Radionuklide in Messpräparaten ermöglichen. Bei HPGe-Detektoren wird zwischen zwei Arten hinsichtlich ihrer Dotierung im Kristall unterschieden; im p-type-Germanium wird mit dreiwertigen Elementen (z. B. Bor), im n-type-Germanium mit fünfwertigen (z. B. Phosphor) dotiert. Die beiden Detektortypen unterscheiden sich in den Standardausführungen hinsichtlich der Dicke ihrer Totschicht auf der Eintrittsseite der Strahlung. Bei n-type-Detektoren ist diese dünner, weshalb sie sich besser für die Messung niederenergetischer Gammastrahler eignen (siehe Abschnitt 6.3).

Komponenten in unmittelbarer Umgebung des Kristalls, z. B. Kristallhalterung, Endkappe mit Eintrittsfenster und Vorverstärkerbauteile, sind so zu wählen, dass Störungen durch Aktivitäten natürlicher oder künstlicher Radionuklide im Material dieser Komponenten minimiert werden (siehe Allgemeines Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/NULLEF dieser Messanleitungen).

### 2.1.2 Kristallformen

Die genannten Detektormaterialien werden als Kristalle in unterschiedlichen Bauformen gefertigt:

- planarer Kristall;
- koaxialer Kristall;
- Sonderformen, z. B. Bohrlochkristall.

Bei planaren Kristallen ist der Durchmesser des Kristalls größer als seine Höhe. Dadurch eignen sich diese Kristalle gut für Messungen flacher Messpräparate. Wegen der geringen Höhe des Kristalls ist das Nachweisvermögen für höherenergetische Gammastrahlung geringer als bei koaxialen Kristallen.

Bei koaxialen Kristallen sind Durchmesser und Höhe des Kristalls einander ähnlich. Dadurch eignen sich diese Kristalle besser für Messungen von Messpräparaten mit größerem Volumen und für die Bestimmung höherenergetischer Gammastrahler.

Neben diesen am häufigsten verwendeten Bauformen gibt es Sonderformen, von denen der Bohrlochkristall besonders hervorzuheben ist. Dabei handelt es sich um einen koaxialen Kristall, in dem sich eine Bohrung entlang der Längsachse bis etwa zur Kristallmitte befindet. In diese Bohrung wird das Messpräparat eingebracht. Wenn nur geringe Mengen an Probenmaterial oder ein auf ein kleines Volumen reduziertes Messpräparat zur Verfügung stehen, bietet der Bohrlochkristall ein besonders hohes Nachweisvermögen.

### 2.1.3 Betrieb von Reinstgermaniumdetektoren

HPGe-Detektoren werden unter Hochspannung betrieben, wobei sie vor Inbetriebnahme auf sehr niedrige Temperaturen gekühlt werden müssen. Dies geschieht entweder durch flüssigen Stickstoff oder mit einem elektrisch betriebenen Kühlsystem. Für die Langzeitstabilität ist eine permanente Kühlung ratsam, da so Veränderungen der Totschicht des Kristalls durch Diffusion minimiert werden. Nach längeren Betriebspausen oder Reparaturen, bei denen der Kristall Raumtemperatur annahm, sollten die Detektoreigenschaften bei Wiederinbetriebnahme überprüft werden.

#### **Anmerkung:**

Veränderungen bei der Nachweiswahrscheinlichkeit sind insbesondere im niederenergetischen Bereich zu erwarten.

Die einfachste Ausführung eines Kühlsystems (Kryostat) auf Flüssigstickstoffbasis besteht aus den Komponenten 9 bis 16 in Abbildung 1. Die Positionierung des Kristalls zum Kryostaten erfolgt auf unterschiedliche Weise, u. a. senkrecht oder gewinkelt, die je nach Messzweck und räumlichen Gegebenheiten auszuwählen sind. Bei der einfachsten Anordnung sitzt der Kristall wie in Abbildung 1 auf einem senkrecht in das Dewargefäß eingetauchten Kühlfinger (engl. „vertical dipstick“). Horizontal abgewinkelte Kryostaten benötigen längere Kühlfinger und haben dadurch einen etwas höheren Verbrauch an flüssigem Stickstoff.

Bei der technischen Ausführung des Ensembles Kristall – Kryostat muss die Übertragung mechanischer Schwingungen, z. B. Schall oder Gebäudeschwingungen, auf das Detektorsystem möglichst minimiert werden. Diese sogenannte Mikrophonie beeinträchtigt die Energieauflösung des Spektrometers. Beispielsweise reduzieren eine elastische Unterlage oder Schwingungsdämpfer unter dem Dewargefäß diese Effekte deutlich.

#### 2.1.4 Kenngrößen eines Detektors

Die wichtigsten Kenngrößen eines Detektors sind seine Empfindlichkeit, sein Energieauflösungsvermögen und das Peak/Compton-Verhältnis. Diese Kenngrößen werden für die Gammastrahlung von Co-60 bei 1332,5 keV ermittelt und vom Hersteller im Detektordatenblatt dokumentiert.

Die Empfindlichkeit – im Datenblatt als „relative efficiency“ bezeichnet – wird als das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeit des betrachteten Detektors relativ zu derjenigen eines Bezugsdetektors definiert und in Prozent angegeben (4, 5). Daher sind Detektoren mit einer Empfindlichkeit von 100 % und mehr erhältlich.

Für die Bestimmung radioaktiver Stoffe in der Umwelt sind koaxiale Detektoren mit einer Empfindlichkeit ab etwa 25 % ausreichend; dies entspricht einem Kristallvolumen von etwa 100 cm<sup>3</sup>. Je nach Anwendungsfall werden auch Detektoren mit einer größeren Empfindlichkeit eingesetzt. Bei planaren Detektoren können andere Verhältnisse vorliegen.

##### **Anmerkung:**

Der Bezugsdetektor ist festgelegt als zylinderförmiger NaI(Tl)-Kristall mit den Abmessungen 3" x 3" (7,62 cm) in Höhe und Durchmesser. Für die Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit des betrachteten Detektors wird eine punktförmige Strahlenquelle mit bekannter Aktivität in 25 cm Entfernung zur Detektorendkappe auf der Mittelachse gemessen. Der Referenzwert des Bezugsdetektors beträgt  $1,2 \cdot 10^{-3}$ .

Zur Ermittlung des Energieauflösungsvermögens wird die Halbwertsbreite der Co-60-Gammalinie, die bei modernen Detektoren bauartabhängig zwischen 1,5 keV und 2,0 keV liegt, herangezogen.

##### **Anmerkung:**

Die Halbwertsbreite ist eine Funktion der Gammastrahlenenergie und nimmt mit der Energie zu (siehe Abschnitt 6.2). Bei 100 keV beträgt sie bauartabhängig 1,0 keV oder weniger. Zusätzlich wird die Zehntelwertsbreite im Detektordatenblatt angegeben, die ein Maß für die Abweichung der Linienform von der einer Gaußfunktion ist. Im Idealfall ist die Zehntelwertsbreite gleich dem 1,82fachen der Halbwertsbreite.

Das Peak/Compton-Verhältnis ist als der Quotient aus der Impulsanzahl der Gesamtabsorptionslinie des Co-60 bei 1332,5 keV und der mittleren Impulsanzahl des Comptonspektrums im Bereich zwischen 1040 keV und 1096 keV definiert. Im Allgemeinen ist das Verhältnis umso größer, je größer der Kristall ist. Im Vergleich zweier gleich großer Kristalle gleicher Bauart steigt das Peak/Compton-Verhältnis mit steigendem Energieauflösungsvermögen.

### 2.1.5 Hinweise zur Auswahl eines geeigneten Detektors

Je nach Messzweck ergeben sich im Rahmen einer Neubeschaffung, Modernisierung oder Optimierung von Gammaskpektrometriemesseinrichtungen unterschiedliche Anforderungen. Dabei sind folgende Kriterien bei der Auswahl zu berücksichtigen:

- Probenaufkommen und Anforderungen an Nachweisgrenzen im Routine- bzw. Störfallbetrieb des jeweiligen Messprogramms;
- Probenmatrix und Geometrie der Messpräparate;
- Energiebereich der emittierten Photonen der zu betrachtenden Radionuklide;
- Detektoreigenschaften, z. B. Kristallmaterial, Kristalltyp, Kenngrößen;
- evtl. vorhandene räumliche und technische Infrastruktur.

Aus den bisherigen Ausführungen wird deutlich, dass es keinen für alle Messaufgaben gleich gut einzusetzenden Detektor gibt. In der Regel ist ein möglichst großer Detektor mit einem sehr hohen Energieauflösungsvermögen und einem hohen Peak/Compton-Verhältnis empfehlenswert. Die Komponenten in der Nähe des Detektors sollten aus Materialien bestehen, die möglichst frei von radioaktiven Verunreinigungen sind.

#### **Anmerkung:**

Der Untergrund im Impulshöhenspektrum unterhalb von 1200 keV wird von der K-40-Comptonverteilung dominiert. Dabei ist es unerheblich, ob die Quelle des K-40 im Messpräparat, den Detektorbaumaterialien oder den Komponenten der Abschirmung liegt, oder ob es von Nulleffektbeiträgen aus der Umgebung des Spektrometers, z. B. aus Gebäudewänden, stammt. Daher ist ein hohes Peak/Compton-Verhältnis besonders vorteilhaft.

Der im Folgenden als Beispiel beschriebene Reinstgermaniumdetektor hat sich für einen großen Aufgabenbereich bewährt:

- Kristalldurchmesser: 65,5 mm;
- Kristallhöhe: 60 mm;
- „relative efficiency“ bezogen auf einen 3" x 3" NaI(Tl)-Kristall: 50 %;
- Halbwertsbreite der 1332,5-keV-Gammalinie des Co-60: 1,9 keV;
- Peak/Compton-Verhältnis: 60/1.

## 2.2 Abschirmung

Eine Abschirmung des Detektors ist grundsätzlich erforderlich, um den Einfluss der Umgebungsstrahlung zu minimieren. Als Abschirmmaterialien kommen verschiedene Materialien, wie Blei, Stahl, Cadmium und Kupfer, oder Kombinationen davon zum Einsatz. Dabei sollte das Abschirmmaterial selbst möglichst wenig radioaktive Verunreinigungen, wie Pb-210 in Blei, andere natürliche Radionuklide oder Co-60 in Stahlbauteilen, enthalten; das am häufigsten verwendete Abschirmmaterial ist Blei. Eine optimale Abschirmwirkung wird erreicht, wenn der Detektorkristall möglichst vollständig von einem Bleigehäuse mit einer Wandstärke von 5 cm bis 10 cm umgeben wird.

Bei Low-level-Messeinrichtungen hat sich eine Wandstärke von 15 cm Blei zur Unterdrückung der 1460,8-keV-Linie des K-40, z. B. aus Gebäudewänden, bewährt, wobei das verwendete Blei eine möglichst geringe Eigenaktivität von Pb-210 besitzen soll. Dies ist vor allem dann sinnvoll, wenn Pb-210 in geringer Aktivität bestimmt werden muss.

Gammastrahlung, vor allem aus dem Messpräparat, erzeugt in der Bleiabschirmung eine Röntgenfluoreszenzstrahlung bei ca. 75 keV. Zu deren Absorption wird die Abschirmung innen mit einem Material niedrigerer Ordnungszahl, z. B. einem 1 mm dicken Cadmiumblech, einem 3 mm dicken Kupferblech oder einer Kombination von 3 mm dickem Kupferblech und 3 mm dickem Plexiglas, ausgekleidet.

Zur Reduzierung von Streustrahlungseinflüssen auf das Impulshöhenspektrum sollte der Mindestabstand zwischen der Abschirmung und dem Messpräparat bzw. dem Detektor 10 cm betragen. Dieser Abstand erleichtert zudem die Handhabung der Messpräparate in der Abschirmung.

Auch die im Innenraum der Abschirmung verbleibende Luft trägt wegen ihres Radongehalts über die Radonfolgeprodukte Pb-214 und Bi-214 zum Untergrund bei. Das Radon kann z. B. durch Spülung mit dem aus dem Dewargefäß entweichenden Stickstoff, der über ein Schlauchsystem in die Abschirmung eingeleitet wird, aus dem Innenraum der Abschirmung verdrängt werden.

## 2.3 Elektronik

Die Elektronik besteht aus folgenden Baugruppen:

- der Hochspannungsversorgung;
- dem Vorverstärker;
- dem Hauptverstärker zur Impulsformung und Verstärkung mit einstellbarer Impulsformzeitkonstante, integriert oder separat mit
- dem Impulshöhenanalysator, bestehend aus Analog-Digital-Konverter (ADC) und Speicher.

Der Vorverstärker bildet meist mit dem Detektor eine integrale Einheit, weil dessen Eingangsstufe ebenfalls gekühlt wird. Für Low-level-Messungen ist es üblich, den Vorverstärker außerhalb der Bleiabschirmung anzubringen, um die Eigenaktivität der elektronischen Bauteile zum Detektor abzuschirmen. Bei dieser Bauform ist darauf zu achten, dass der verbleibende Ringspalt zwischen Kryostat und Bleiabschirmung möglichst schmal ist.

Zusätzlich kann ein Impulsgenerator zur Funktionsprüfung der Elektronikbauteile und zur Korrektur von Aufstockungsverlusten (engl. „Pile-up“, siehe Abschnitt 9.3), die bei Messungen größerer Aktivitäten auftreten können, eingesetzt werden.

Im Wesentlichen existieren drei Konzepte zur Anordnung bzw. zum Betrieb dieser Baugruppen:

- das historische Konzept mit separaten Komponenten für Hochspannungsversorgung, Hauptverstärker, ADC-Einschub, Vielkanalanalysator usw.;
- ein zweites, noch vereinzelt in Gebrauch befindliches Konzept, das einen Rechner, der mit ADC auf einer Einsteckkarte und einer Software zur Impulshöhenanalyse inklusive Aktivitätsberechnung ausgestattet ist, nutzt;
- das aktuelle Konzept, das Stromversorgung, Hauptverstärker, ADC und Speichereinheit in einem digitalen Gerät integriert. Einige dieser digitalen Spektrometer lassen sich in gängige Computernetzwerke integrieren und von entfernt stehenden Rechnern betreiben.

Soll ein Energiebereich von ca. 30 keV bis ca. 2000 keV erfasst werden, sind mindestens 4096 Kanäle für die Impulshöhenanalyse (siehe Abschnitt 5) erforderlich. Auf diese Weise ist die Halbwertsbreite der 1332,5-keV-Gammalinie des Co-60 mit der mindestens erforderlichen Anzahl von vier Kanälen für die Linienauswertung beschrieben (2). Zweckmäßiger sind 8192 Kanäle, weil die Halbwertsbreite dann acht Kanälen entspricht.

## 2.4 Rechner und Auswerteprogramm

Eine Gammaskpektrometriemesseinrichtung ist in der Regel mit einem Rechner und der dazugehörigen Spektrometriesoftware ausgestattet. Mit dieser Software werden die Betriebsparameter der Gammaskpektrometriemesseinrichtung eingestellt und kontrolliert, der Messbetrieb gesteuert und die Impulshöhenspektren ausgewertet.

Für die Auswertung der Impulshöhenspektren sollte die Software mindestens folgende Funktionen besitzen:

- Automatische und manuelle Suche und Auswertung von Linien im Impulshöhenspektrum (siehe Abschnitt 5.1);
- Ermittlung der genauen Kanallage einer Linie (siehe Abschnitt 5.1);
- Zuordnung der Linien zu bestimmten Radionukliden an Hand einer Radionuklidbibliothek (siehe Abschnitt 5.2);
- Berechnung der Nettoimpulsanzahl  $N_n$  in einer Gammalinie und der Standardunsicherheit von  $N_n$  unter Berücksichtigung von Untergrundlinien (siehe Abschnitt 5.3) inklusive einer graphischen Darstellung;
- Anpassung von Liniengruppen (engl. „deconvolution of multiplets“; siehe Abschnitt 5.4);
- Überprüfung der Energiekalibrierung (siehe Abschnitt 6.1);
- Nuklid- und energiespezifische Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit (siehe Abschnitt 6.3);
- Berücksichtigung von Korrekturfaktoren für Koinzidenzsummationen (siehe Abschnitt 7 und Anhang D) und Selbstschwächung (siehe Abschnitt 8), Korrektur von Pile-up- und Totzeiteffekten (siehe Abschnitt 9.3) sowie Zerfallskorrektur (siehe Abschnitt 9.4);
- Berücksichtigung von Interferenzen durch Linien anderer Radionuklide (siehe Abschnitt 9.6 und Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/INTERF dieser Messanleitungen);
- Berechnung der Aktivität und der Aktivitätskonzentration (siehe Abschnitte 5.3, 9.1, 9.2 und 9.8);
- Berechnung der bezogenen Aktivität (siehe Abschnitt 9.10 sowie Anhänge A und B);
- Ermittlung der Messunsicherheit (siehe Abschnitt 9.11);
- Ermittlung der charakteristischen Grenzen (siehe Abschnitt 10 und Anhang C sowie Allgemeines Kapitel ERK/NACHWEISGR-ISO-01 dieser Messanleitungen);
- Dokumentation der Ergebnisse in einem Mess- und Auswerteprotokoll, das alle Informationen über die benutzten Daten (Nulleffekt, Nachweiswahrscheinlichkeit, Radionuklidaten etc.) mit Angabe der Versionsnummer bzw. des Erstellungsdatums enthält.
- Zusätzlich sind auch Module für das Dateimanagement und die Qualitätssicherung erhältlich.

### 3 Geometrie der Messpräparate

Das Messgut wird, je nach anfallender Menge oder der erwarteten Aktivität, in Röhren, Dosen oder Flaschen gefüllt. Ringschalen, auch Marinellibecher genannt, erlauben es, das Messpräparat zusätzlich seitlich um den Detektor zu positionieren, wodurch die Nachweisempfindlichkeit steigt. Ringschalen gibt es sowohl in Einwegausführung als auch zur mehrfachen Verwendung sowie mit verschiedenen, an gängige Außendurchmesser der Detektorendkappen angepassten Innendurchmessern und verschiedenen Füllvolumina (siehe Abbildung 2).



**Abb. 2:** Beispiele gebräuchlicher Ringschalen („Marinellibecher“)

Die Behältnisse werden entweder direkt auf die Detektorendkappe oder in einen geeigneten Präparatehalter gestellt. In beiden Fällen muss die Position des Messpräparates mit der des Kalibrierpräparates übereinstimmen. Zudem müssen die bei der Kalibrierung und bei der Messung verwendeten Behältnisse die gleichen Abmessungen und identische Füllhöhen aufweisen. Bei der Messung der Aktivität in pulverförmigen oder körnigen Materialien müssen Schüttkegel vermieden werden, und die Oberfläche muss planparallel zum Boden des Messgefäßes sein. Nach dem Verschließen des Messgefäßes darf sich die Form des Messpräparates nicht mehr durch z. B. Neigen, Rütteln oder Aufstampfen verändern; sonst kann es zum Verdichten des Messguts und damit zur Verringerung der Füllhöhe kommen.

Bei Messpräparaten wie Filterkuchen, die bei radiochemischen Abtrennungen entstehen, ist die Einhaltung der identischen Messbedingungen zum Kalibrierpräparat manchmal schwierig. Bei solchen Messpräparaten tritt z. B. eine Welligkeit des Filters auf, die durch Auflegen einer Plexiglasscheibe oder durch Abkleben mit einer geeigneten Folie verhindert werden kann. Wird der Filterkuchen im Anschluss an die gammaspektrometrische Messung weiteren radiochemischen Arbeitsschritten unterzogen, kann das Messpräparat durch einen schmalen Ring fixiert werden, der den unbedeckten Rand des Filters z. B. in einer Messschale beschwert, bevor der Filterkuchen getrocknet wird (siehe Abbildung 3).



**Abb. 3:** Mit einem Haltering in der Messschale fixierter Filterkuchen.

Um eine Kontamination der Detektorendkappe zu vermeiden, sollte sie mit einer dünnen Folie, z. B. Frischhaltefolie oder kleinen haushaltsüblichen Müllbeuteln, abgedeckt werden. Um Kondenswasserbildung und damit eine Korrosion der Detektorendkappe zu vermeiden, müssen die Folien regelmäßig ausgewechselt werden.

#### 4 Nachweiswahrscheinlichkeiten für Gammastrahlung

Im Allgemeinen ist die Nachweiswahrscheinlichkeit (engl. „efficiency“) als das Verhältnis der bei der Kalibrierung erhaltenen Zählrate (in  $s^{-1}$ ), die durch Strahlung einer bestimmten Art und Energie hervorgerufen wird, und der bekannten Emissionsrate (in  $s^{-1}$ ) dieser Strahlung aus dem Kalibrierpräparat definiert.

In der Gammaskopimetrie werden verschiedene Nachweiswahrscheinlichkeiten aufgrund physikalischer Prozesse unterschieden:

- die Liniennachweiswahrscheinlichkeit (engl. „full energy peak efficiency“), die sich auf die Gesamtabsorptionslinie bezieht;
- die totale Nachweiswahrscheinlichkeit (engl. „total efficiency“), die als das Verhältnis aller im Spektrum registrierten Impulse zur Anzahl der emittierten Photonen definiert ist; dazu zählen auch die Impulse, die den Detektor nach Streuprozessen in der Messkammer erreichen.

Diese Nachweiswahrscheinlichkeiten werden für die quantitative Auswertung der Impulshöhenspektren benötigt. Sie werden entweder durch Messung oder durch mathematische Verfahren ermittelt (siehe Abschnitt 6.3).

## 5 Auswertung des Impulshöhenspektrums

Gammastrahlung erzeugt aufgrund ihrer Wechselwirkungen mit dem Detektorkristall, bekannt als Photo-, Compton- und Paarbildungseffekt, elektrische Spannungsimpulse. Diese werden vom Impulshöhenanalysator proportional zu der im Detektorkristall deponierten Energie den Kanälen des Vielkanalanalysators zugeordnet. Als Messdauer wird bei der Auswertung des Impulshöhenspektrums die effektive Messdauer (engl. „live time“, siehe Abschnitt 9.3) verwendet.

Die Verteilung der Häufigkeit der während der Messdauer registrierten Impulse in den Kanälen wird Impulshöhenspektrum genannt und kann sehr komplex sein. Darin finden sich sowohl breite Verteilungen als auch schmale Linien. Für die quantitative Auswertung werden nur die Linien verwendet, weil sie als Folge des Photoeffekts die gesamte Gammaenergie repräsentieren. Solche Linien werden als Gesamtabsorptionslinien (engl. „full energy peak“) bezeichnet. Anhand der Lage der Gammalinien im Impulshöhenspektrum, die die Energieinformation liefert, werden die im Messpräparat enthaltenen Radionuklide identifiziert. Dafür sind zum einen eine Radionuklidbibliothek (siehe Abschnitt 5.2) und zum anderen eine Kalibrierung der Gammaskopfmessung (siehe Abschnitt 6) erforderlich.

Die Aktivität eines Radionuklids ist der Nettozählrate in der betrachteten Gammalinie proportional. Die Nettozählrate wird nach Abzug der stets vorhandenen Untergrundbeiträge und Nulleffektbeiträge ermittelt.

### 5.1 Liniensuche

In der Software zur Auswertung von Gammaskopfmessungen werden automatische oder manuelle Verfahren zur Liniensuche eingesetzt (3, 6).

Die Empfindlichkeit für die Erkennung von Linien bei Nutzung einer automatischen Liniensuche wird über einstellbare Parameter gesteuert. Bei zu geringer Empfindlichkeit werden nur die intensiven, d. h. deutlich über den Untergrund herausragenden Linien erkannt. Bei zu hoher Empfindlichkeit werden auch Linien erfasst, die nur durch statistische Schwankungen im Untergrund bedingt sind. Daher muss eine für die gegebene Messaufgabe optimale Einstellung der Empfindlichkeit gefunden werden.

Zusätzlich ist die Auswertung des Impulshöhenspektrums auch dadurch möglich, dass für alle in der Radionuklidbibliothek enthaltenen Linieneinträge eine Linienauswertung an den interessierenden Stellen (engl. „regions of interest“, ROI) im Impulshöhenspektrum erfolgt.

Es empfiehlt sich eine Kombination beider Verfahren. Intensivere Linien werden von der automatischen Liniensuche gefunden, Linien mit geringen Impulsanzahlen oder solche, die in den Randbereichen einer impulsreichen Linie „verborgen“ sind, können mit der bibliotheksorientierten Suche identifiziert werden.

### 5.2 Radionuklidbibliothek

Die Radionuklidbibliothek ist eine Sammlung radionuklidspezifischer Daten, die für die Zuordnung von Gammalinien zu Radionukliden sowie für deren Aktivitätsbestimmung erforderlich sind. Gammaskopfmessungssoftware enthält üblicherweise eine sehr umfangreiche Radionuklidbibliothek, die vom Nutzer als Grundlage für eigene, anwendungsspezifische Bibliotheken herangezogen werden kann. Diese umfasst bereits für eine große Anzahl von Radionukliden u. a. Werte und Unsicherheiten von Halbwertszeiten, Energien und Emissionsintensitäten.

Die Radionukliddaten müssen aktuell gehalten werden (siehe Allgemeines Kapitel KERNDATEN dieser Messanleitungen), was eine sorgfältige Dokumentation, Pflege und Datensicherung erfordert.

In der Praxis bewährt es sich eine Stammbibliothek anzulegen, die die kernphysikalischen Daten der für alle Messaufgaben des Nutzers relevanten Radionuklide enthält. Aus dieser Stammbibliothek werden die spezifischen Radionuklidbibliotheken, z. B. für spezielle Detektorarten, Probenmaterialien, Messgeometrien, Mutter-Tochter-Paare, erzeugt.

#### **Anmerkungen:**

- Besonderes Augenmerk ist bei Mutter-Tochter-Paaren darauf zu legen, dass die Halbwertszeit eines kurzlebigen Tochternuklides durch die Halbwertszeit des langlebigen Mutternuklids ersetzt wird, damit bei einer Zerfallskorrektur auf einen länger vor dem Messzeitpunkt zurück liegenden Bezugszeitpunkt einer Umweltprobe keine physikalisch unsinnigen Aktivitäten berechnet werden.
- Bei Messungen natürlicher Radionuklide ist es vorteilhaft, Radionuklidbibliotheken zu erstellen, die für radioaktives Gleichgewicht oder für radioaktive Ungleichgewichte optimiert sind (siehe Anhang E und Allgemeines Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/NATRAD dieser Messanleitungen).
- Ein weiteres Augenmerk ist auf reine Summationslinien zu legen. Hierbei handelt es sich um Linien, die besonders bei speziellen Geometrien (z. B. Messungen in Bohrlochdetektoren) auftreten als Summe zweier oder mehrere Gamma- bzw. Röntgenphotonen. Werden die Energien beider (oder mehrerer) Photonen gleichzeitig im Detektor registriert, so entstehen Linien im Spektrum, die zumeist nicht in den einschlägigen Radionuklidbibliotheken enthalten sind.

Um Mehrliniennuklide in einem Impulshöhenspektren zu erkennen, müssen deren relevante Linien in der verwendeten Radionuklidbibliothek ausgewählt werden.

Die Radionuklidbibliothek enthält außerdem die für die Aktivitätsberechnung der im Messpräparat erkannten Radionuklide erforderlichen Emissionsintensitäten von Gamma- bzw. Röntgenphotonen (siehe Abschnitt 9). Dabei müssen Koinzidenzsummations- und Selbstabsorptionseffekte (siehe Abschnitte 7 und 8) berücksichtigt werden, wofür in einigen Softwarepaketen vom Anwender experimentell ermittelte Korrekturfaktoren in die Radionuklidbibliothek eingefügt werden können.

### **5.3 Impulsanzahlen unter einer ungestörten Gammalinie (Singulett)**

Zur Berechnung der Aktivität eines Radionuklids wird die Nettoimpulsanzahl in der Gammalinie benötigt.

Im Folgenden werden drei häufig verwendete Verfahren vorgestellt:

- das Additionsverfahren (siehe Abschnitt 5.3.1),
- das Verfahren der empirischen Stufenfunktion (siehe Abschnitt 5.3.2) und
- das Linienanpassungsverfahren (siehe Abschnitt 5.3.3).

#### **5.3.1 Additionsverfahren**

Bei dieser einfachsten Methode wird zunächst die Bruttoimpulsanzahl in einer Gammalinie durch Addition der Impulsanzahlen in den Kanälen des betrachteten Energiebereichs ermittelt. Anschließend wird durch Subtraktion der Impulsanzahlen der Untergrundbeiträge und eventuell vorhandener Nulleffektbeiträge unter der auszuwertenden Linie gemäß Gleichung (3) die Nettoimpulsanzahl erhalten.

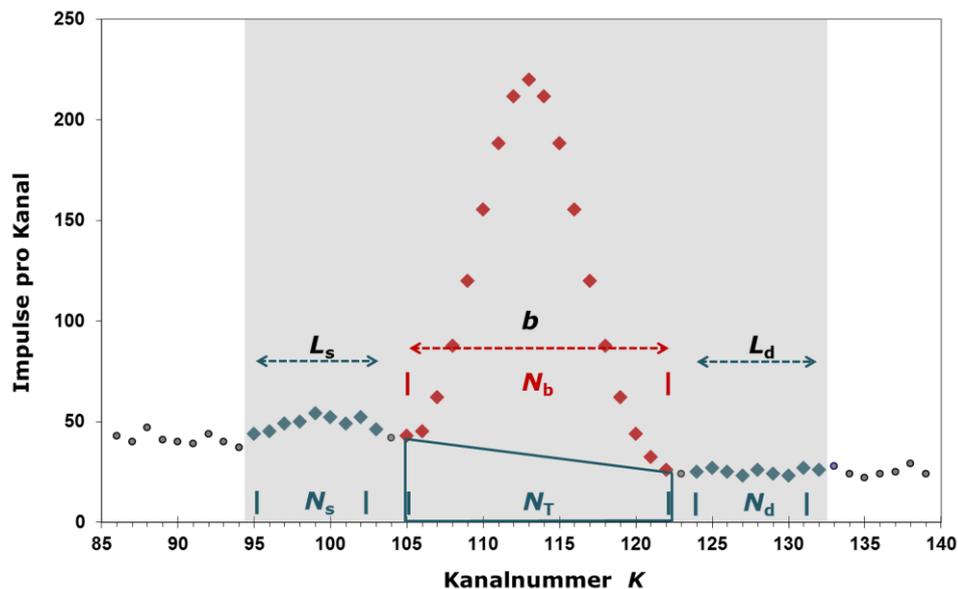
#### **Anmerkung:**

Die Untergrundbeiträge setzen sich dabei hauptsächlich aus der Comptonstreuung von Photonen, die aus der Probe bzw. dem Messpräparat oder der Umgebung stammen, sowie aus äußeren Beiträgen, z. B. elektronischen Störungen, zusammen.

Dieses Verfahren ist in Abbildung 4 skizziert, wobei der grau hinterlegte Bereich als „region of interest“ (ROI) bezeichnet wird. Dieser setzt sich aus der Linienfußbreite  $b$  und den Kanalbereichen  $L_d$  und  $L_s$  zur Ermittlung des Untergrundes zusammen.

Die Linienfußbreite  $b$  wird entweder manuell mit Markierungen auf dem Bildschirm festgelegt oder vom Programm automatisch gewählt. Üblich ist die Vorgabe von  $b$  in Vielfachen der Halbwertsbreite  $h$ , z. B.  $b = 2,5 h$  (siehe Abbildung 6).

Der Untergrundbeitrag im Bereich der betrachteten Gammalinie wird mit Hilfe des sogenannten Trapezverfahrens berechnet. Dafür werden die Summen der Impulsanzahlen  $N_d$  bzw.  $N_s$  in den Kanalbereichen  $L_d$  bzw.  $L_s$  ermittelt (siehe Abbildung 4). Die Kanalbereiche  $L_d$  und  $L_s$  werden üblicherweise gleich breit gewählt; sie können bei komplexen Spektren auch unterschiedlich breit festgelegt werden.



**Abb. 4:** Im Bereich der ROI (grau hinterlegt) zu betrachtende Größen beim Additionsverfahren; mit  
 $N_b$  Bruttoimpulsanzahl in der Linie;  
 $N_T$  Untergrundimpulsanzahl in der Linie;  
 $N_s$  Summe der Impulsanzahlen im Kanalbereich  $L_s$ ;  
 $N_d$  Summe der Impulsanzahlen im Kanalbereich  $L_d$ .

Aus den Impulsanzahlen je Kanal  $N_K$  und der Messdauer mit  $t_m$ , lassen sich die Bruttozählrate  $R_b$ , die Untergrundzählrate  $R_T$  und die Nettozählrate  $R_n$  berechnen. Dazu wird in den folgenden Gleichungen  $K_1$  für den linken Randkanal und  $K_2$  für den rechten Randkanal der Linienfußbreite  $b$  gesetzt.

$$R_b = \frac{N_b}{t_m} = \frac{1}{t_m} \cdot \sum_{K=K_1}^{K_2} N_K \quad (1)$$

$$R_T = \frac{N_T}{t_m} = \frac{1}{t_m} \cdot \frac{b}{2} \cdot \left[ \frac{N_s}{L_s} + \frac{N_d}{L_d} \right] = \frac{1}{t_m} \cdot \frac{b}{2} \cdot [\bar{N}_s + \bar{N}_d] \quad (2)$$

$$R_n = R_b - R_T - (R_{0,b} - R_{0,T}) \quad (3)$$

Die Standardunsicherheiten der einzelnen Zählraten werden entsprechend der Gleichungen (4) bis (6) berechnet.

$$u(R_b) = \sqrt{\frac{R_b}{t_m}} \tag{4}$$

$$u(R_T) = \sqrt{\frac{R_T \cdot b}{2 \cdot \bar{L} \cdot t_m}} \tag{5}$$

$$u(R_n) = \sqrt{u^2(R_b) + u^2(R_T) + u^2(R_{0,b}) + u^2(R_{0,T})} = \sqrt{\frac{R_b}{t_m} + \frac{R_T}{t_m} \cdot \frac{b}{2 \cdot \bar{L}} + \left( \frac{R_{0,b}}{t_0} + \frac{R_{0,T}}{t_0} \cdot \frac{b_0}{2 \cdot \bar{L}_0} \right)} \tag{6}$$

mit

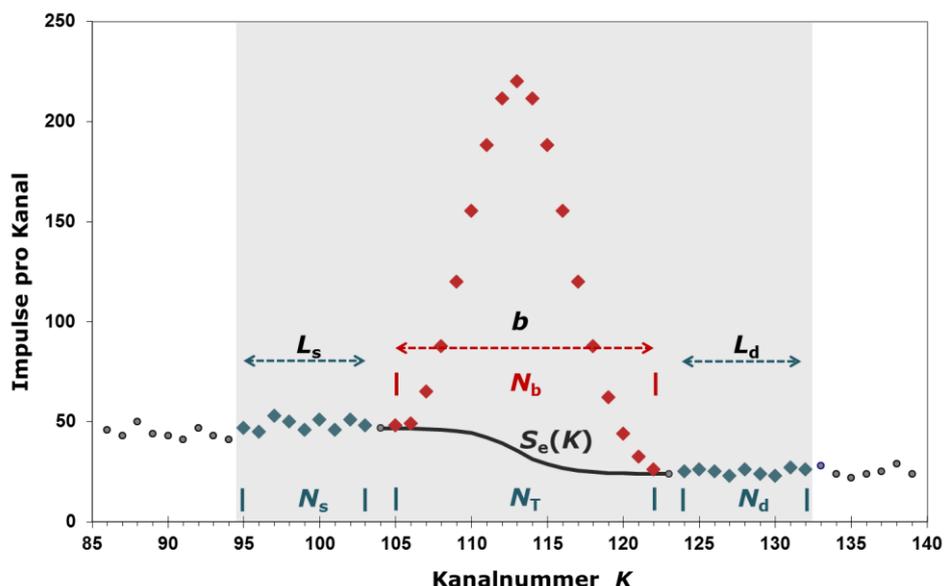
$$\bar{L} = \frac{\bar{N}_s + \bar{N}_d}{\frac{N_s}{L_s} + \frac{N_d}{L_d}}$$

Dabei bedeuten in den Gleichungen (3) und (6):

- $R_{0,b}$  Bruttozählrate der betrachteten Gammalinie im Nulleffektspektrum in  $s^{-1}$ ;
- $R_{0,T}$  Untergrundzählrate der betrachteten Gammalinie im Nulleffektspektrum in  $s^{-1}$ ;
- $\bar{L}, \bar{L}_0$  mittlerer Kanalbereich rechts bzw. links der betrachteten Gammalinie; für den Fall  $L_s = L_d = L$  gilt  $\bar{L} = L$ .

### 5.3.2 Verfahren der empirischen Stufenfunktion $S_e(K)$

Eine weitere Methode zur Ermittlung der Nettoimpulsanzahl in einer betrachteten Gammalinie ist das Verfahren der empirischen Stufenfunktion. In diesem Verfahren wird zur Ermittlung des Untergrundbeitrages unter der betrachteten Gammalinie statt des im Additionsverfahren beschriebenen Trapezes eine Stufenfunktion  $S_e(K)$  verwendet.



**Abb. 5:** Schematische Darstellung der empirischen Stufenfunktion  $S_e(K)$  für eine Gammalinie

In Gleichung (7) wird die Stufenfunktion  $S_e(K)$  über die mittleren Impulsanzahlen  $N_s/L_s$  und  $N_d/L_d$  (siehe Abbildung 5) beschrieben.

$$S_e(K) = \frac{N_d}{L_d} + \left( \frac{N_s}{L_s} - \frac{N_d}{L_d} \right) \cdot \frac{S_1(K)}{S_2} = \bar{N}_d + (\bar{N}_s - \bar{N}_d) \cdot \frac{S_1(K)}{S_2} \quad \text{mit} \quad K_1 \leq K \leq K_2 \quad (7)$$

mit den Hilfsgrößen:

$$S_1(K) = \sum_{m=K}^{K_2} N_m \quad \text{und} \quad S_2 = S_1(K = K_1) = \sum_{m=K_1}^{K_2} N_m = N_b \quad (8)$$

Die Untergrundzählrate  $R_T$  ergibt sich durch kanalweise Addition der Funktionswerte über den Bereich der Linienfußbreite  $b = (K_2 - K_1 + 1)$ .

$$R_T = \frac{1}{t_m} \cdot \left[ b \cdot \bar{N}_d + (\bar{N}_s - \bar{N}_d) \cdot \frac{\sum_{K=K_1}^{K_2} S_1(K)}{S_2} \right] \quad (9)$$

mit

$$\sum_{K=K_1}^{K_2} S_1(K) = \sum_{K=K_1}^{K_2} \sum_{m=K}^{K_2} N_m \quad (10)$$

Die Nettozählrate  $R_n$  wird nach Gleichung (11) berechnet:

$$R_n = R_b - R_T - (R_{0,b} - R_{0,T}) = \frac{N_b}{t_m} - \frac{N_T}{t_m} - \left( \frac{N_{0,b}}{t_0} - \frac{N_{0,T}}{t_0} \right) \quad (11)$$

Die Unsicherheiten der Untergrundzählrate  $R_T$  und der Nettozählrate  $R_n$  werden mit den Gleichungen (12) und (13) berechnet.

$$u^2(R_T) = \frac{1}{t_m^2} \left[ \frac{\sum_{K=K_1}^{K_2} S_1(K)}{S_2} \right]^2 \cdot \left( \frac{\bar{N}_s}{L_s} \right) + \left[ b - \frac{\sum_{K=K_1}^{K_2} S_1(K)}{S_2} \right]^2 \cdot \left( \frac{\bar{N}_d}{L_d} \right) \quad (12)$$

$$u(R_n) = \sqrt{\frac{R_b}{t_m} + u^2(R_T) + \frac{R_{0,b}}{t_0} + u^2(R_{0,T})} \quad (13)$$

### 5.3.3 Linienanpassungsverfahren

Das Linienanpassungsverfahren erlaubt die direkte Berechnung der Nettoimpulsanzahl einer Singulett-Gammalinie durch die Anpassung einer aus mehreren Komponenten bestehenden Summenfunktion  $f_{Sg}$  an das Impulshöhenspektrum in der ROI, wie sie in Gleichung (14) beschrieben ist.

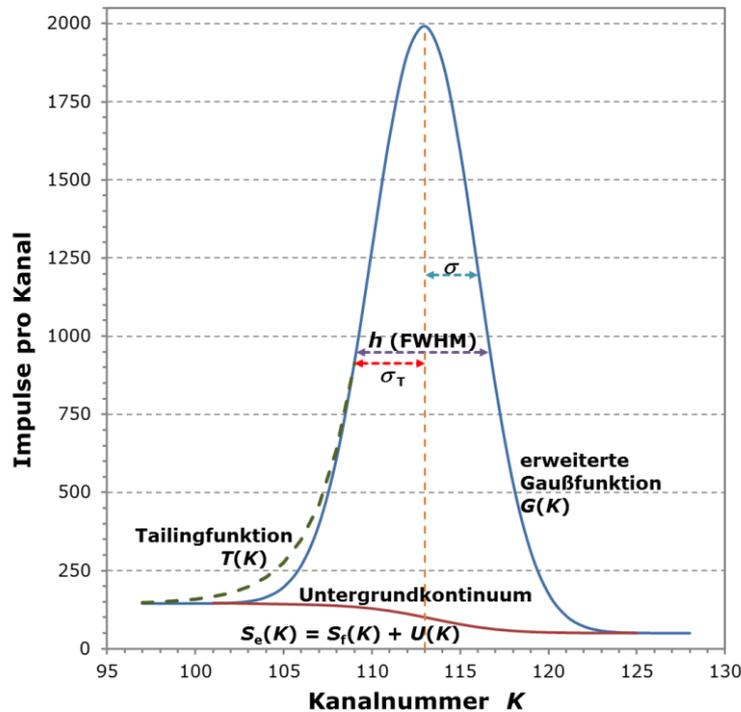
$$f_{Sg} = U(K) + S_f(K) + G(K) + T(K) \quad (14)$$

Die Grundform der Gammalinie wird dabei durch die Gaußfunktion  $G(K)$  beschrieben, Abweichungen von deren Idealform durch die Tailingfunktion  $T(K)$ . Das zu berücksichtigende Untergrundkontinuum setzt sich aus einem Untergrundpolynom  $U(K)$  und einer Stufenfunktion  $S_f(K)$ , wie in den Abbildungen 6 und 7 dargestellt, zusammen.

Die Anpassung der Summenfunktion an das Impulshöhenspektrum erfolgt mit Hilfe der nicht-linearen Methode der kleinsten Quadrate (engl. „non-linear weighted least squares“). Für die dazu benötigten Parameter  $k_0$ ,  $N_n$ ,  $\sigma$  und  $\sigma_T$  werden Startwerte festgelegt, die im Verlauf der Berechnungen optimiert werden, wobei die Startwerte für  $\sigma$  und  $\sigma_T$  aus der Kalibrierung der Linienform (siehe Abschnitt 6.2) übernommen werden.

**Anmerkung:**

Bei der Auswertung von Linien mit geringen Impulsanzahlen kann es vorteilhaft sein, die Startwerte für  $k_0$ ,  $\sigma$  und  $\sigma_T$  konstant zu halten, um das nicht-lineare in ein lineares Anpassungsverfahren übergehen zu lassen.



**Abb. 6:** Schematische Darstellung der Komponenten der Summenfunktion  $f_{Sg}$  bei der Linienanpassung.

Von Kanal 109 (roter Doppelpfeil) an abwärts geht die Gaußfunktion in die Tailingfunktion über. Zusätzlich sind die Halbwertsbreite  $h$  (engl. „full width at half maximum“ FWHM), der Breitenparameter  $\sigma$  der Gaußfunktion und der Tailingparameter  $\sigma_T$  dargestellt.

**5.3.3.1 Gaußfunktion  $G(K)$**

Die Berechnung der anzupassenden Gaußfunktion  $G(K)$  erfolgt nach Gleichung (15).

$$G(K) = N_n \cdot \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot e^{-\frac{(K-k_0)^2}{2 \cdot \sigma^2}} \tag{15}$$

Darin bedeuten:

$K$  Kanalnummer;

$k_0$  Linienmitte bezogen auf die Kanalnummern (muss nicht ganzzahlig sein);

$N_n$  Nettoimpulsanzahl in der Linie;

$\sigma$  Breitenparameter der Gaussfunktion in Kanälen.

**Anmerkung:**

- Der Faktor vor der Exponentialfunktion in Gleichung (15) stellt die Amplitude der Gammalinie dar.
- Zwischen dem Breitenparameter  $\sigma$  und der Halbwertsbreite  $h$  einer Gammalinie besteht folgender Zusammenhang:  $h = 2,355 \cdot \sigma$ .
- Die Gammalinie sollte eine Halbwertsbreite von vier Kanälen nicht unterschreiten.
- Das Verhältnis der Stufenhöhe zur Amplitude der Gammalinie (siehe Abbildung 6) ist energieabhängig; zusätzlich ist sie auch vom Material des Messpräparates, seiner Dichte und seiner Füllhöhe abhängig. Im mittleren Energiebereich zwischen etwa 100 keV bis 1500 keV ist die Stufenhöhe relativ konstant; bei niedrigeren bzw. höheren Energien steigt sie unterschiedlich stark an. Für Informationen zu den Effekten, die zur Stufenhöhe beitragen, wird auf (7) verwiesen.

**5.3.3.2 Tailingfunktion  $T(K)$**

Das sogenannte Tailing ist eine Detektoreigenschaft, die dazu führt, dass die linke Flanke der Gammalinie gegenüber der idealen Gaußfunktion etwas angehoben wird. Zur Beschreibung dieses Tailinganteils geht die Gaußfunktion  $G(K)$  beispielsweise in dem Punkt  $K_T = k_0 - \sigma_T$  mit stetiger Steigung in eine Exponentialfunktion  $T(K)$  über. Dies wird in Gleichung (16) beschrieben, wobei  $\sigma_T$  als Tailingparameter bezeichnet wird (siehe Abbildung 6).

$$T(K) = N_n \cdot \frac{1}{\sigma \cdot \sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot e^{\left[ \frac{\sigma_T^2}{2 \cdot \sigma^2} + \sigma_T \cdot \left( \frac{K - k_0}{\sigma^2} \right) \right]} \tag{16}$$

Je kleiner der Wert des Verhältnisses  $\sigma_T$  zu  $h$  ist, desto stärker ist der Effekt des Tailings. Ab einem Verhältnis von  $\sigma_T$  zu  $h$  gleich 1 ist der Beitrag des Tailings vernachlässigbar. Durch die Berücksichtigung des Tailings ändert sich die Nettofläche; ihr neuer Wert  $N_{n,T}$  wird durch folgende Beziehung beschrieben:

$$N_{n,T} = N_n \cdot \left[ \Phi \left( \frac{\sigma_T}{\sigma} \right) + \frac{1}{\sqrt{2 \cdot \pi}} \cdot \frac{\sigma}{\sigma_T} \cdot e^{-\frac{\sigma_T^2}{2 \cdot \sigma^2}} \right] \tag{17}$$

**5.3.3.3 Untergrundkontinuum**

Das Untergrundkontinuum setzt sich aus einem Untergrundpolynom  $U(K)$  und einer Stufenfunktion  $S_f(K)$  zusammen. Das Untergrundpolynom  $U(K)$ , das durch eine lineare oder quadratische Funktion der Kanalnummer beschrieben wird, ist bei kleinen Linienflächen der bestimmende Anteil des Untergrundkontinuums. Mit zunehmender Linienfläche überwiegt der Anteil der Stufenfunktion  $S_f(K)$  am Untergrundkontinuum.

$$S_f(K, k_0) = \frac{N_n}{\sqrt{2 \pi \cdot \sigma^2}} \cdot \frac{s_{rel}}{1 + e^{(K - k_0) / \sigma}} \tag{18}$$

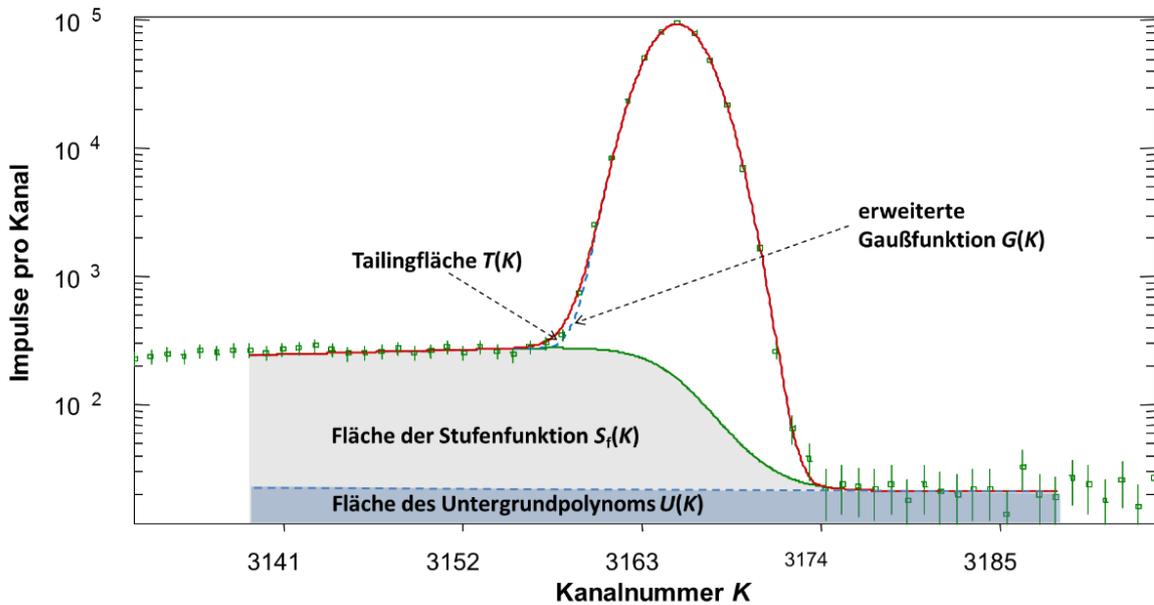
mit

$s_{rel}$  Verhältnis der Stufenamplitude zur Amplitude der Gammalinie.

Das Verhältnis der Stufenamplitude zur Amplitude der Gammalinie  $s_{rel}$  ist konstant und von der vorliegenden Aktivität unabhängig.

**Anmerkung:**

Wird die Fläche unter der Gammalinie gleich Null, besteht das Untergrundkontinuum nur mehr aus dem Beitrag des Untergrundpolynoms  $U(K)$ . Aus dieser Fläche wird die Erkennungsgrenze ermittelt (siehe Abschnitt 10).



**Abb. 7:** Schematische Darstellung des Untergrundkontinuums zusammengesetzt aus den Flächen unter der Stufenfunktion  $S_f(K)$  und dem Untergrundpolynom  $U(K)$ .

**5.4 Impulsanzahlen unter einer Gruppe von Gammalinien (Multipllett)**

Eine Gruppe von Gammalinien, die nahe beieinander liegen oder sich überlagern, wird als Multipllett bezeichnet. Diese Gammalinien können entweder zu einem einzigen oder zu mehreren Radionukliden gehören.

Vor der Berechnung der Aktivitäten der beteiligten Radionuklide müssen die Multiplletts separiert und die dabei erhaltenen Flächen den einzelnen Radionukliden zugeordnet werden.

Im einfachsten Fall, bei dem sich zwei Gammalinien nur wenig überlappen, kann das Multipllett im Minimum zwischen den beiden Gammalinien getrennt werden. In allen anderen Fällen wird die Summenfunktion  $f_{Sg}$  des Linienanpassungsverfahrens (siehe Abschnitt 5.3.3) auf die Anzahl  $n$  der vorhandenen Linien zur Summenfunktion des Multiplletts  $f_{Mp}$  erweitert.

$$f_{Mp}(K, k_{0,i}) = U(K) + \sum_{i=1}^n \{G(K, k_{0,i}) + T(K, k_{0,i}) + S_f(K, k_{0,i})\} \tag{19}$$

Die zu ermittelnden Nettoimpulsanzahlen  $N_{n,i}$  jeder einzelnen Gammalinie des Multiplletts sind in den Funktionen  $S_f(K, k_{0,i})$ ,  $G(K, k_{0,i})$  und  $T(K, k_{0,i})$  als Faktoren enthalten (siehe Abschnitt 5.3.3).

## 6 Kalibrierung einer Gammaskpektrometrie-messeinrichtung

Die Kalibrierung einer Gammaskpektrometriemesseinrichtung ist erforderlich, um mittels der bei der Auswertung von Impulshöhenspektren ermittelten Nettoimpulsanzahlen  $N_n$  oder der Nettozählraten  $R_n$  die spezifischen Aktivitäten bzw. Aktivitätskonzentrationen von Radionukliden zu ermitteln. Die dazu erforderlichen Kalibrier-schritte sind im Folgenden näher erläutert.

### 6.1 Energiekalibrierung

Eine Energiekalibrierung stellt den Zusammenhang zwischen der Kanalnummer des Impulshöhenspektrums und der Energie der Photonenstrahlung gemäß Gleichung (20) her. Die auftretenden Polynomkoeffizienten  $e_0$ ,  $e_1$  und  $e_2$  werden durch die Kalibrierung bestimmt.

$$E_j = e_0 + e_1 \cdot K_j + e_2 \cdot K_j^2 \quad (20)$$

Dazu werden ein oder mehrere Kalibrierpräparate mit bekannten gammastrahlenden Radionukliden verwendet, mit denen für die jeweilige Photonenergie  $E_j$  die zugehörige Kanalnummer  $K_j$  des Linienmaximums ermittelt wird. Die Genauigkeit einer Energiekalibrierung wird erhöht, je mehr Kalibrierpunkte zur Verfügung stehen.

Vor der Kalibrierung sind die elektronischen Komponenten der Gammaskpektrometrie-einrichtung auf den von der Messaufgabe abhängigen Energiebereich einzustellen (siehe Abschnitt 2.3). Für einen Energiebereich von beispielsweise 0 keV bis 2000 keV bei 4096 Kanälen ist zu prüfen, ob die Randbedingungen  $E_j(K_j = 0) = e_0 \approx 0$  keV und  $E_j(K_j = 4096) \approx 2000$  keV gelten. Eine deutliche Abweichung hiervon erfordert eine Nachjustierung der elektronischen Komponenten.

#### **Anmerkung:**

Der Polynomkoeffizient  $e_2$  sollte einen Wert von kleiner  $10^{-7}$  keV pro Kanal<sup>2</sup> aufweisen; ansonsten muss die Messeinrichtung überprüft werden.

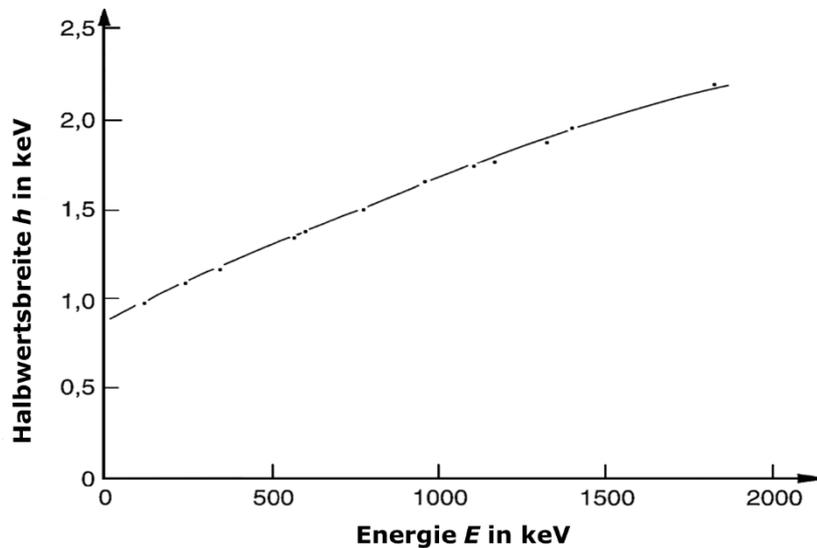
Zur eindeutigen Identifizierung von Radionukliden ist es notwendig, dass die Standardunsicherheit der Energielage kleiner als die Halbwertsbreite  $h$  der betrachteten Gammalinie ist.

Im Rahmen der Qualitätssicherung ist eine regelmäßige Überprüfung der Energiekalibrierung erforderlich (siehe auch Allgemeines Kapitel QUAKO/INTERN dieser Messanleitungen).

### 6.2 Kalibrierung der Energieabhängigkeit der Linienform

Die Halbwertsbreite  $h$  wird bei der Liniensuche, bei der Ermittlung der Impulsanzahl sowie bei der Radionuklididentifizierung verwendet und muss daher energieabhängig kalibriert werden (siehe Abbildung 8). Dafür werden Einzellinien mit hoher Impulsanzahl, die über den gesamten Energiebereich verteilt sein müssen, herangezogen.

Insbesondere bei der Anwendung des Linienanpassungsverfahrens gemäß Abschnitt 5.3.3 ist die Kenntnis der Energieabhängigkeit der Linienform essentiell, da daraus die Startwerte für die zu optimierenden Parameter  $\sigma$  und  $\sigma_T$  sowie für die Amplitude der Stufenfunktion  $S(K)$  abgeleitet werden. Dabei gilt die Beziehung  $h = 2,355 \cdot \sigma$ .



**Abb. 8:** Exemplarische Darstellung der Abhängigkeit der Halbwertsbreite  $h$  von der Energie  $E$ .

Zur Beschreibung der Halbwertsbreite  $h$  als Funktion der Gammastrahlungsenergie  $E$  wird Gleichung (21) verwendet:

$$h(E) = \sqrt{a + b \cdot E} \quad (21)$$

Die Parameter  $a$  und  $b$  werden in Analogie zu den Polynomkoeffizienten bei der Energiekalibrierung ermittelt.

Die verbleibenden energieabhängigen Linienformparameter, Tailingparameter  $\sigma_T$  und Amplitude der Stufenfunktion, werden üblicherweise durch interne Algorithmen der Auswertesoftware ermittelt.

### 6.3 Bestimmung des Nachweisvermögens oder der Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Bestimmung des Nachweisvermögens erfolgt nuklidspezifisch (siehe Abschnitt 6.3.1), während die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie (siehe Abschnitt 6.3.2) ermittelt wird. Je nach Messaufgabe ist eine der beiden Kalibrierungen erforderlich, um den quantitativen Zusammenhang zwischen der Nettozählrate  $R_n$  einer Gammalinie im Impulshöhenspektrum und der im Messpräparat vorliegenden Aktivität zu erhalten. Hierfür werden Kalibrierpräparate mit bekannter Aktivität und Radionuklidzusammensetzung benötigt.

Alternativ kann das Nachweisvermögen bzw. die Nachweiswahrscheinlichkeit mittels mathematischer Verfahren bestimmt werden (siehe Abschnitt 6.3.3).

Kalibrierpräparate stehen u. a. in Form von wässrigen Lösungen, Gelen oder Kunstharzen zur Verfügung. Die Geometrie und die Matrix von Kalibrier- und Messpräparat sollten weitestgehendst übereinstimmen, um Korrekturen zu minimieren.

#### **Anmerkung:**

Als Ersatz für wässrige Kalibrierlösungen sind Kalibrierpräparate auf Kunstharzbasis erhältlich, die Zusatzstoffe enthalten können, um eine Dichte von  $1,0 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$  einzustellen. Diese Zusatzstoffe haben andere Ordnungszahlen als die Atome im Wassermolekül und beeinflussen damit die Nachweiswahrscheinlichkeit insbesondere bei Energien der Gammastrahlung unterhalb von 100 keV.

Die Radionuklidzusammensetzung der Kalibrierpräparate hat sich an der Messaufgabe zu orientieren. Dabei sollten die Kalibrierpräparate Aktivitäten aufweisen, die die Totzeit- und Pile-up-Effekte so klein wie möglich halten (siehe Abschnitt 9.3), auf ein nationales Primärnormal rückführbar (engl. „traceable“) sind und deren relative Standardunsicherheiten bei ein bis zwei Prozent liegen.

Bei den Kalibriermessungen sind die Messdauern so zu wählen, dass die relativen Standardunsicherheiten der Nettozählraten der einzelnen Gammalinien bei Werten von ein bis zwei Prozent liegen.

### 6.3.1 Nuklidspezifische Kalibrierung (Nachweisvermögen)

Die nuklidspezifische Kalibrierung ist die einfachste Art der Kalibrierung. Das so ermittelte Nachweisvermögen  $\varepsilon_r$  gilt ausschließlich bei folgenden Bedingungen:

- Die im Messpräparat zu bestimmenden Radionuklide müssen in den Kalibrierpräparaten enthalten sein.
- Die Zusammensetzung und die Dichte der Präparate sollten einander entsprechen.
- Die Messgeometrien der Mess- und Kalibrierpräparate (siehe Abschnitt 3) müssen identisch sein.

Das Nachweisvermögen  $\varepsilon_r$  für ein Radionuklid  $r$  wird als Quotient aus Nettoimpulsrate  $R_n$  und Aktivität  $A$  nach Gleichung (22) berechnet.

$$\varepsilon_r = \frac{R_n}{A} \quad (22)$$

Bei Radionukliden mit mehreren Emissionslinien gilt Gleichung (22) entsprechend für jede einzelne Emissionslinie. Eine Korrektur der Koinzidenzsummutation ist nicht erforderlich. Der reziproke Wert  $\varphi_A = A/R_n$  wird auch als Kalibrierfaktor bezeichnet.

### 6.3.2 Kalibrierung als Funktion der Energie (Nachweiswahrscheinlichkeit)

Für Messaufgaben, bei denen unbekannte Radionuklidzusammensetzungen auftreten, ist die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie bei der Auswertung des Impulshöhenspektrums erforderlich.

Für die Kalibrierung der Nachweiswahrscheinlichkeit stehen zwei Verfahren zur Verfügung, die nachfolgend erläutert werden.

#### 6.3.2.1 Kalibrierung als Funktion der Energie mit Einliniennukliden

Es wird ein Kalibrierpräparat verwendet, das eine ausreichende Aktivität einer beliebigen Anzahl von Gammastrahlern mit nur einer Emissionslinie im Energiebereich zwischen 100 keV bis 1200 keV enthält, z. B. Mn-54, Zn-65, Sr-85 oder Cs-137. Um die Kalibrierkurve auch für Energien unter 100 keV zu erweitern, muss unter Umständen ein zweites Kalibrierpräparat verwendet werden, das z. B. Co-57, Cd-109, Pb-210 und Am-241 enthält.

Für den hochenergetischen Bereich steht nur das natürliche, radioaktive K-40 zur Verfügung, dessen Verwendung lange Messdauern erfordert, bis die erforderliche Standardunsicherheit für diesen Kalibrierpunkt erreicht ist.

#### Anmerkung:

Anstelle von K-40 kann z. B. auf das Mehrliniennuklid Y-88 ausgewichen werden, dessen Einsatz allerdings Koinzidenzsummutationskorrekturen erfordert, wie im Abschnitt 6.3.2.2 erläutert wird.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon(E_i)$  in  $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  wird gemäß Gleichung (23) für jede gemessene Emissionslinie berechnet.

$$\varepsilon(E_i) = \frac{R_n(E_i)}{A_r \cdot p_{\gamma,r}(E_i)} \quad (23)$$

Hierbei bedeuten:

$R_n(E_i)$  Nettozählrate der Linie bei der Energie  $E_i$  in  $\text{s}^{-1}$ ;

$p_{\gamma,r}(E_i)$  Emissionsintensität der Gammalinie des Radionuklids  $r$  bei der Energie  $E_i$ ;

$A_r$  Aktivität des Radionuklids  $r$  in Bq.

An die berechneten Nachweiswahrscheinlichkeiten wird eine Kalibrierkurve gemäß Abschnitt 6.3.2.3 angepasst.

### 6.3.2.2 Kalibrierung als Funktion der Energie mit Mehrliniennukliden

Mehrliniennuklide sind Radionuklide, die Photonen mit verschiedener Gammastrahlungsenergie emittieren. Typische Mehrliniennuklide sind z. B. Co-60, Y-88, Ba-133, Cs-134, Eu-152 und Eu-154.

Für die Kalibrierung werden vorzugsweise Radionuklide verwendet, deren Gammalinien sich nicht überlappen und den gewünschten Energiebereich abdecken.

#### Anmerkung:

Grundsätzlich ist die Kombination von Ein- und Mehrliniennukliden für die Erstellung der Kalibrierkurve möglich. Kalibrierpräparate mit geeigneten Radionuklidmischungen sind kommerziell erhältlich.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon(E_i)$  in  $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$  wird gemäß Gleichung (24) für jede gemessene Emissionslinie berechnet. Dabei sind Korrekturen für die Koinzidenzsumationen entsprechend Abschnitt 7.2 zu berücksichtigen.

$$\varepsilon(E_i) = \frac{R_n(E_i) \cdot f_{1,r,i}}{A_r \cdot p_{\gamma,r}(E_i)} \quad (24)$$

Hierbei bedeutet zusätzlich:

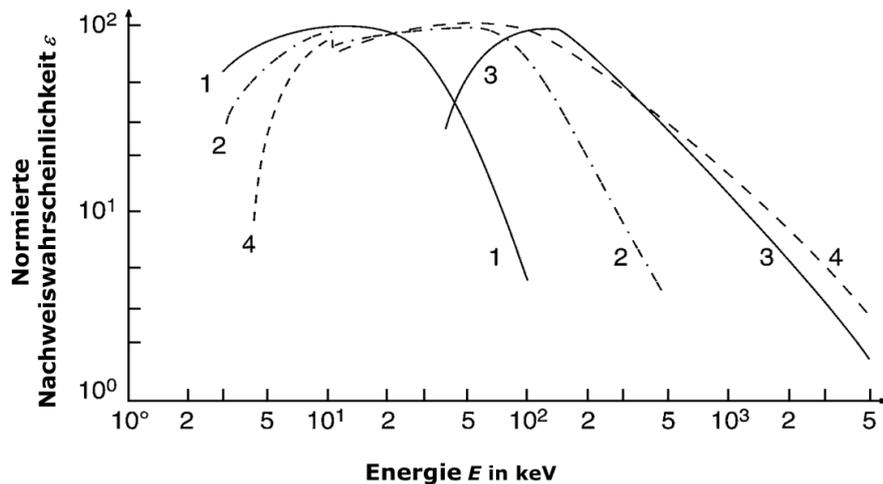
$f_{1,r,i}$  Korrektionsfaktor für Koinzidenzsumation für die Gammlinie  $i$  und das Nuklid  $r$ ;

An die berechneten Nachweiswahrscheinlichkeiten wird eine Kalibrierkurve gemäß Abschnitt 6.3.2.3 angepasst.

### 6.3.2.3 Kalibrierkurve für die Nachweiswahrscheinlichkeit

Aus den nach Abschnitt 6.3.2.1 oder Abschnitt 6.3.2.2 berechneten Nachweiswahrscheinlichkeiten  $\varepsilon(E_i)$  wird eine Kalibrierkurve ermittelt.

Abbildung 9 zeigt Beispiele für die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit verschiedener Detektortypen. Je nach Detektortyp unterscheiden sich die Nachweiswahrscheinlichkeiten in den verschiedenen Energiebereichen, wobei die grundsätzliche Form der Kurvenverläufe vergleichbar ist.



**Abb. 9:** Typischer Verlauf der Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$  verschiedener Detektoren als Funktion der Energie ermittelt mit punktförmigen Präparaten und Normierung des Maximums jeder Kurve auf 100 %; nach (2).  
 1 Si(Li)-Detektor;  
 2 planarer p-type Ge-Detektor (mit K-Kantenabsorption bei 10 keV);  
 3 koaxialer p-type Ge-Detektor;  
 4 koaxialer n-type Ge-Detektor.

Ein solcher Kurvenverlauf kann in einen niederenergetischen und höher energetischen Energiebereich aufgeteilt und mit unterschiedlichen Funktionen beschrieben werden (2). Die Kurven beider Energiebereiche müssen in einem Punkt an der Energie  $E_0$  stetig und mit gleicher Steigung ineinander übergehen. Die Energie  $E_0$  ist detektorspezifisch und liegt bei Germaniumdetektoren üblicherweise zwischen 50 keV und 200 keV.

Die Funktionen unterhalb und oberhalb der Energie  $E_0$  werden durch die Gleichungen (25) und (26) nach (8) beschrieben:

$$\ln(\varepsilon(E)) = v_1 + v_2 \cdot \ln\left(\frac{E}{E_0}\right) + v_3 \cdot \left(\ln\left(\frac{E}{E_0}\right)\right)^2 \quad \text{für } E \leq E_0 \quad (25)$$

$$\ln(\varepsilon(E)) = w_1 + w_2 \cdot \ln\left(\frac{E}{E_0}\right) + w_3 \cdot \left(\ln\left(\frac{E}{E_0}\right)\right)^2 \quad \text{für } E \geq E_0 \quad (26)$$

Um die Bedingungen Stetigkeit und gleiche Steigung an der Energie  $E_0$  zu erfüllen, muss für die Anpassungsparameter  $v_i$  gelten:

$$v_1 = w_1 \quad \text{und}$$

$$v_2 = w_2$$

Damit kann die gesamte Kurve durch Gleichung (27) beschrieben werden:

$$\ln(\varepsilon(E)) = v_1 + v_2 \cdot \ln\left(\frac{E}{E_0}\right) + v_x \cdot \left(\ln\left(\frac{E}{E_0}\right)\right)^2 \quad (27)$$

mit

$$v_x = v_3 \quad \text{für } E \leq E_0;$$

$$v_x = w_3 \quad \text{für } E \geq E_0.$$

Neben der oben beschriebenen Kombinationen zweier Funktionen bietet kommerzielle Software weitere Anpassungsfunktionen an.

Die Standardunsicherheit  $u(\varepsilon(E))$  eines beliebigen Punktes auf der angepassten Kalibrierkurve bei der Energie  $E$  wird aus den Anpassungsparametern  $v_i$  und deren Kovarianzmatrix entsprechend Gleichung (28) abgeschätzt:

$$u^2(\varepsilon(E)) = \sum_{i=1}^m \left( \frac{\partial \varepsilon(E)}{\partial v_i} \right)^2 \cdot u^2(v_i) + \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^m \left( \frac{\partial \varepsilon(E)}{\partial v_i} \right) \cdot \left( \frac{\partial \varepsilon(E)}{\partial v_j} \right) \cdot u(v_i, v_j) \quad (28)$$

mit

$m$  Anzahl der Anpassungsparameter.

### 6.3.3 Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit

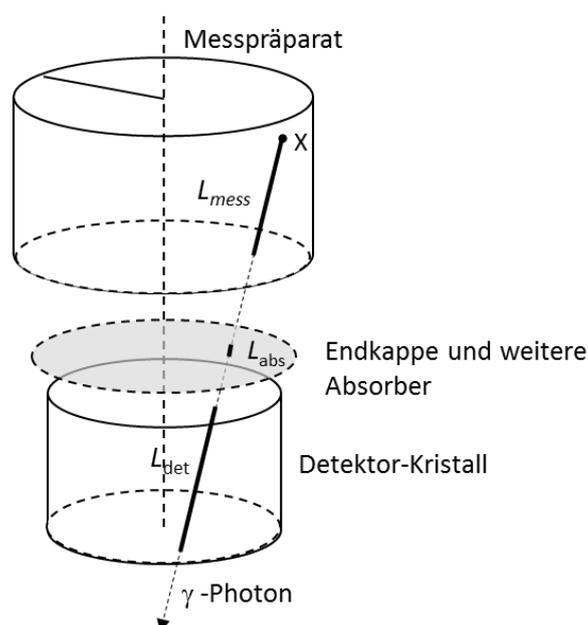
Alternativ zu den in den Abschnitten 6.3.1 und 6.3.2 beschriebenen Verfahren zur Bestimmung des Nachweisvermögens bzw. der Nachweiswahrscheinlichkeit können diese auch mathematisch bestimmt werden.

Dazu werden sogenannte Monte-Carlo (MC) Methoden zur Simulation der Wechselwirkungen der Photonen mit der Messeinrichtung eingesetzt. Dafür müssen die geometrischen Eigenschaften des Detektors inklusive der Kristalleigenschaften mit ausreichender Genauigkeit bekannt sein. Da dies nicht immer der Fall ist, erfolgt die mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit mit einer Kombination aus klassischer Kalibrierung mit einem Kalibrierpräparat und einer MC-Simulation. Die Ergebnisse einer solchen Bestimmung müssen vor ihrer Verwendung validiert werden und auf ein nationales Primärnormal rückführbar sein.

Der Vorteil einer mathematischen Bestimmung ist, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit für jede Art von Messpräparat, in fast jeder Geometrie und grundsätzlich für jedes Probenmaterial kalibriert werden kann.

#### 6.3.3.1 Grundlagen

Im Folgenden wird ein vereinfachtes Beispiel zur Berechnung der Liniennachweiswahrscheinlichkeit beschrieben, das auf einer coaxialen Anordnung von Messpräparat und Detektor (siehe Abbildung 10) basiert.



**Abb. 10:** Beispiel einer Anordnung von Messpräparat und Detektor

Ein Gammaphoton, das in einem Punkt X innerhalb des Messpräparates in Richtung des Detektors emittiert wird, verlässt mit der Wahrscheinlichkeit  $p_{\text{mes}}(L_{\text{mes}})$  ohne Energieverlust durch Absorption oder Streuung das Messpräparat. Trifft es den Detektorkristall, wird es dort mit der Wahrscheinlichkeit  $p_{\text{det}}(L_{\text{det}})$  durch eine Photoeffektwechselwirkung nachgewiesen.

$$p_{\text{mess}}(L_{\text{mess}}) = e^{-\mu_{s,\text{mess}} \cdot L_{\text{mess}}} \quad (29)$$

$$p_{\text{abs}}(L_{\text{abs}}) = \prod_j e^{-\mu_{s,\text{abs}} \cdot L_{\text{abs}}} \quad (30)$$

$$p_{\text{det}}(L_{\text{det}}) = 1 - e^{-\mu_{s,\text{det}} \cdot L_{\text{det}}} \quad (31)$$

mit

- $\mu_{s,\text{mess}}$  linearer Schwächungskoeffizient des Messpräparatmaterials, in  $\text{cm}^{-1}$ ;
- $L_{\text{mess}}$  zurückgelegte Strecke des Gammaphotons im Messpräparat, in cm;
- $\mu_{s,\text{abs}}$  linearer Schwächungskoeffizient von Absorbermaterialien, z. B. Endkappe, in  $\text{cm}^{-1}$ ;
- $L_{\text{abs}}$  zurückgelegte Strecke des Gammaphotons im Absorbermaterial, in cm;
- $\mu_{s,\text{det}}$  linearer Schwächungskoeffizient des Detektors durch Photoeffekt, in  $\text{cm}^{-1}$ ;
- $L_{\text{det}}$  zurückgelegte Strecke des Gammaphotons im Detektorkristall, in cm.

Durch Integration über alle möglichen Emissionsrichtungen, aus denen Photonen ausgehend von einem Punkt X den Detektor erreichen können, ergibt sich der Raumwinkel  $\Omega$ . Durch Wichtung mit dem Produkt der in den Gleichungen (29) bis (31) genannten Wahrscheinlichkeiten und bei Betrachtung des gesamten Volumens des Messpräparates  $V_p$  wird der sogenannte mittlere effektive Raumwinkel  $\overline{\Omega}_p$  erhalten.

Für die gesamte geometrische Messanordnung wird  $\overline{\Omega}_p$  nach Gleichung (32) berechnet:

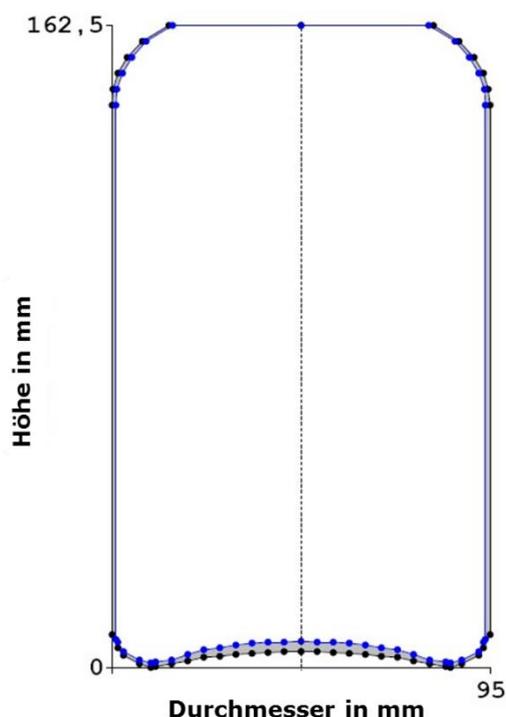
$$\overline{\Omega}_p = \frac{1}{V_p} \cdot \int_{V_p} \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega,\text{det}} \left[ p_{\text{mess}}(L_{\text{mess}}, \dots) \cdot \prod_j p_{\text{abs}}(L_{\text{abs}}, \dots) \cdot p_{\text{det}}(L_{\text{det}}, \dots) \right] d\Omega_p dV_p \quad (32)$$

Dies ist die Grundlage für die mathematische Behandlung des Effizienztransfers in Abschnitt 6.3.3.3.

### 6.3.3.2 Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit mit Vorkalibrierung des Detektors

Unter der Vorkalibrierung wird im Allgemeinen die Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit eines Detektors durch den Hersteller verstanden. Diese wird mit rückführbaren Aktivitätsnormalen in einem hinreichenden Raumbereich um den Detektor, wobei eine ausreichende Anzahl repräsentativer Kalibrierpunkte vorliegen muss, ermittelt. Diese ortsabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeiten werden als Datei zur Verfügung gestellt.

Mit Hilfe dieser Datei berechnet der Anwender die Nachweiswahrscheinlichkeiten seiner Messgeometrien mit der Software des Herstellers. Dabei stehen ihm zur Beschreibung der Geometrie des Messpräparates einige Standardgeometrien wie Boxen und Zylinder zur Verfügung (siehe Abbildung 11). Daneben können auch sehr komplexe, meist rotationssymmetrische, Geometrien definiert werden.



**Abb. 11:** Modell einer 1-Liter-Weithalskunststoffflasche; innere Kontur (blau) und äußere Kontur (schwarz).

Zur vollständigen Beschreibung des Messpräparates gehören auch dessen Art und Zusammensetzung sowie die Schüttdichte. Mögliche Absorber zwischen dem Messpräparat und dem Detektor, wie z. B. Messpräparatehalter, können ebenfalls definiert werden. Mit diesen Angaben kann schließlich die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Gammastrahlungsenergie für jede gewünschte Energie im Bereich von 10 keV bis 7000 keV berechnet werden.

Die in Tabelle 1 genannten typischen Standardunsicherheiten der Nachweiswahrscheinlichkeiten nach der Vorkalibrierung wurden aus Vergleichen zwischen messtechnisch und mathematisch ermittelten Nachweiswahrscheinlichkeiten für verschiedene Energiebereiche erhalten (9, 10).

**Tab. 1:** Typische Standardunsicherheiten der Nachweiswahrscheinlichkeiten nach der Vorkalibrierung nach (9, 10)

Energie der Gammastrahlung $E_\gamma$ in keV	$E_\gamma \leq 150$	$150 < E_\gamma \leq 400$	$400 < E_\gamma \leq 1000$	$E_\gamma > 1000$
Empfohlene Standardunsicherheit	10 %	8 %	6 %	4 %

Zu den genannten Standardunsicherheiten der Nachweiswahrscheinlichkeiten aus der Vorkalibrierung müssen weitere Unsicherheitsbeiträge aus der vollständigen Beschreibung des Messpräparates berücksichtigt werden.

Zusätzlich muss in Sonderfällen z. B. im Falle besonders kleiner, nahe am Detektor befindlicher Messpräparate, wie kleine Filterkuchen direkt auf der Detektorendkappe, ein Unsicherheitsbeitrag von 5 % bis 10 % mit eingerechnet werden. Auch für Messpräparate mit einer sehr starken Selbstabsorption kann die kombinierte Standardunsicherheit gegenüber den Werten aus Tabelle 1 wesentlich höher ausfallen.

### 6.3.3.3 Mathematische Bestimmung der Nachweiswahrscheinlichkeit nach dem Prinzip der „Übertragung der Nachweiswahrscheinlichkeit“

Das Prinzip der Übertragung der Nachweiswahrscheinlichkeit (engl. „efficiency transfer“) beruht darauf, dass von experimentell ermittelten, energieabhängigen Nachweiswahrscheinlichkeiten  $\varepsilon_{\text{Ref}}(E)$  einer Referenzgeometrie ohne weitere Messungen auf Nachweiswahrscheinlichkeiten  $\varepsilon_{\text{p}}(E)$  einer nicht kalibrierten Messgeometrie geschlossen wird. Dabei können sowohl die Kalibrierpräparate als auch die Messpräparate nicht nur bezüglich ihrer Form, z. B. Durchmesser oder Höhe und/oder Dichte, sondern auch hinsichtlich ihrer chemischen Zusammensetzung beschrieben werden.

Für die notwendigen Berechnungen sind Softwarepakete erhältlich, die mittels MC-Simulationen die mittleren effektiven Raumwinkel  $\bar{\Omega}_{\text{Ref}}(E)$  und  $\bar{\Omega}_{\text{p}}(E)$  für beide Messgeometrien liefern (siehe Abschnitt 6.3.3.1). Die gesuchte Nachweiswahrscheinlichkeit der nicht kalibrierten Messgeometrie wird nach Gleichung (33) berechnet:

$$\varepsilon_{\text{p}}(E) = \varepsilon_{\text{Ref}}(E) \cdot \frac{\bar{\Omega}_{\text{p}}(E)}{\bar{\Omega}_{\text{Ref}}(E)} \quad (33)$$

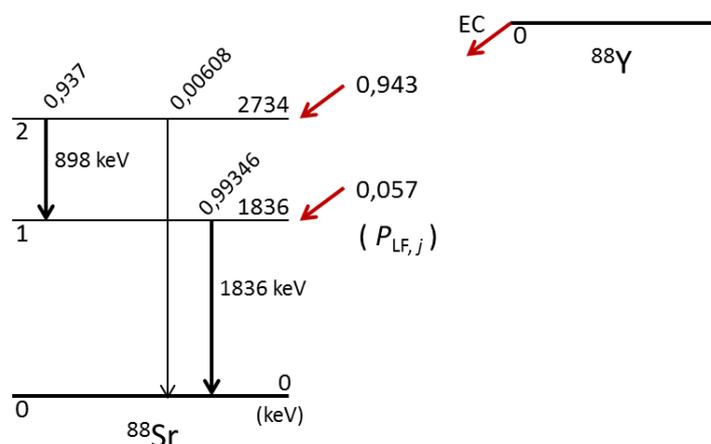
Da beiden Messgeometrien identische Detektoreigenschaften zugrunde liegen, heben sich deren Unsicherheitsbeiträge zu den Unsicherheiten der mittleren effektiven Raumwinkel weitest gehend auf. Damit wird die Standardunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit der Messgeometrie  $\varepsilon_{\text{p}}(E)$  hauptsächlich durch die experimentell bestimmte Standardunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit der Referenzmessgeometrie  $\varepsilon_{\text{Ref}}(E)$  bestimmt (11).

Im Vergleich zum Verfahren aus Abschnitt 6.3.3.2 ergeben sich kleinere Unsicherheiten für die Nachweiswahrscheinlichkeit der nicht kalibrierten Messgeometrie (12, 13).

## 7 Korrektion von Koinzidenzsummationen

### 7.1 Grundlagen

Beim radioaktiven Zerfall vieler Radionuklide werden vom Kern des Zerfallsproduktes mehr als nur ein Gammaphoton emittiert. Diese Photonen können einander so schnell folgen, dass das Gammaskopiersystem diese nur gleichzeitig, d. h. koinzident, registriert. Am Zerfallsschema von Y-88 (Abbildung 12) wird dieser Effekt näher erläutert.



**Abb. 12:** Zerfallsschema von Y-88 nach Elektroneneinfang (EC, engl. „electron capture“).

Die schräg gestellten Zahlen stellen die Werte der Gamma-Emissionsintensitäten der Niveauübergänge 1 bzw. 2 zum Grundniveau 0 dar.

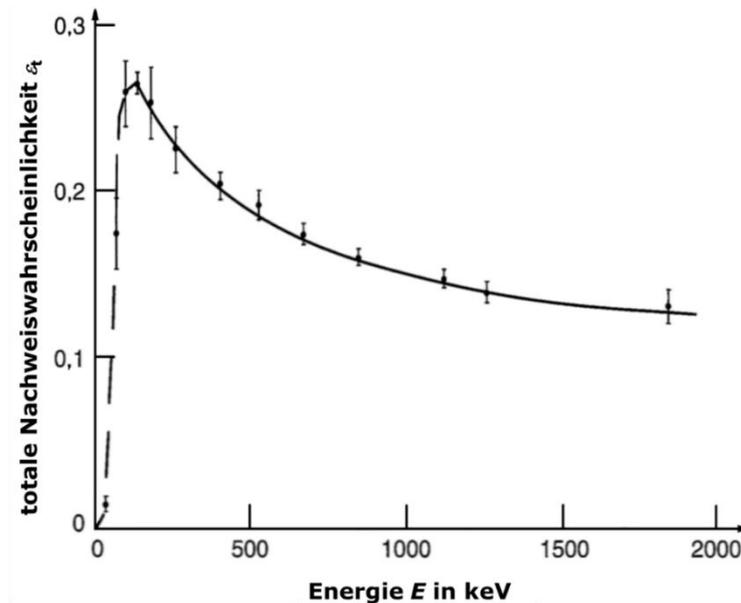
Gelangen die Photonen mit der Energie  $E_1 = 898$  keV und  $E_2 = 1836$  keV gleichzeitig in den Detektor und unterliegen dort Wechselwirkungen mit dem Detektor, kann die Messelektronik diese zeitlich nicht mehr auflösen. Die Wahrscheinlichkeit des gleichzeitigen Nachweises von Photonen steigt, je näher sich das Präparat am Detektor befindet. Daher werden diese Signale nicht an den erwarteten Energielinien  $E_1$  und  $E_2$  registriert, so dass ein Verlust der Zählrate an beiden Gammalinien entsteht (Summationsverlust bzw. engl. „summing-out“). Dieser Verlust muss korrigiert werden, falls keine nuklidspezifische Kalibrierung des Detektors vorliegt. Neben Summationsverlusten kann auch eine Erhöhung der Impulsanzahl in einer anderen Gammalinie des betrachteten Radionuklids (Summationsgewinn bzw. engl. „summing-in“) auftreten. Ein typisches Beispiel liegt beim Radionuklid Ba-133 im Fall der drei Gammalinien bei den Energien von  $E_1 = 81,0$  keV,  $E_2 = 302,9$  keV und  $E_3 = 383,9$  keV vor. Durch Summation der Photonen mit der Energie  $E_1$  und  $E_2$  werden der Gammalinie des Ba-133 bei der Energie  $E_3$  weitere Impulse zugeordnet.

Desweiteren können durch Summationseffekte Gammalinien im Impulshöhenspektrum auftreten, die keinem Übergang im Zerfallsschema des betrachteten Radionuklids entsprechen (siehe auch Abschnitt 5.2). Dieser Fall tritt beispielsweise beim Radionuklid Cs-134 auf, bei dem durch Summation der Photonen mit der Energie  $E_1 = 604,7$  keV und  $E_2 = 795,9$  keV im Impulshöhenspektrum eine Summationslinie mit der Energie bei 1400,6 keV entsteht.

Eine genauere Betrachtung der mathematischen Grundlagen findet sich in Anhang D; zusätzliche Informationen zu Summen- und Escapelinien auch im Allgemeinen Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/SUMESC dieser Messanleitungen.

## 7.2 Korrektionsfaktoren für Koinzidenzsummationen $f_{1,j}$

Voraussetzung für die Korrektion von Summationsverlusten ist die Kenntnis der totalen Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Energie  $\varepsilon_t(E)$ , die im Idealfall mit Hilfe von Radionukliden, die nur monoenergetische Gammastrahlung emittieren, ermittelt wird. Bei diesen Messungen wird die Gesamtzahl aller im Impulshöhenspektrum registrierten Impulse berücksichtigt (14, 15). Ein Beispiel einer totalen Nachweiswahrscheinlichkeit ist in Abbildung 13 dargestellt.



**Abb. 13:** Totale Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon_t$  als Funktion der Energie  $E$  für einen p-type Germaniumdetektor (relatives Ansprechvermögen 12 %) bei sehr geringem Abstand einer punktförmigen Quelle von der Detektorendkappe; nach (2).

Alternativ kann die totale Nachweiswahrscheinlichkeit durch das energieabhängige Verhältnis von Liniennachweiswahrscheinlichkeit und dem Peak/Total-Verhältnis (P/T) dargestellt werden. Das P/T-Verhältnis ist dabei das Verhältnis der Anzahl Impulse in der betrachteten Gammalinie zur Anzahl aller im Impulshöhenspektrum bis zur Energie der betrachteten Gammalinie registrierten Impulse (2, 3).

Die Ermittlung der totalen Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion der Gammaenergie sowie das P/T-Verhältnis können auch mit einem der mathematischen Verfahren aus Abschnitt 6.3.3 erfolgen, wenn die notwendigen Eingangsgrößen für die gegebene Messgeometrie bekannt sind.

Für den einfachsten Fall kann der Korrektionsfaktor  $f_{1,j}$  für eine Koinzidenzsummation bei der betrachteten Gammalinie  $j$  nach Gleichung (34) berechnet werden (siehe Anhang D):

$$f_{1,j} = \frac{1}{(1 - z \cdot \varepsilon_t)} \quad (34)$$

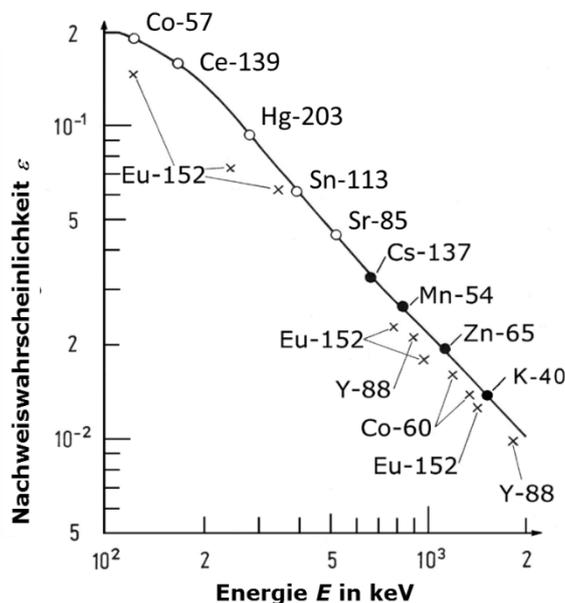
mit

$z$  vom Zerfallsschema des Radionuklids abhängiger Faktor.

### Anmerkung:

Gleichung (34) gilt nur für punktförmige Quellen. Bei Volumenquellen ist zusätzlich eine Mittelung der Korrektionsfaktoren über das Volumen des Messpräparates erforderlich (siehe Gleichung (D17) im Anhang D1).

Bei der experimentellen Ermittlung der Korrekturfaktoren werden üblicherweise Aktivitätsnormale von Radionukliden gemäß Abschnitt 6.3.2.2 verwendet. Die erhaltenen Liniennachweiswahrscheinlichkeiten werden, wie in Abbildung 14 zu sehen ist, doppelt-logarithmisch dargestellt. Dabei können die Liniennachweiswahrscheinlichkeiten von Einliniennukliden mit Energien oberhalb 500 keV in guter Näherung durch eine Ausgleichsgerade a beschrieben werden. Die Liniennachweiswahrscheinlichkeiten von Mehrliniennukliden weichen aufgrund von Summationseffekten von dieser Geraden ab.



**Abb. 14:** Liniennachweiswahrscheinlichkeiten ohne Berücksichtigung von Summationskorrekturen; nach (2)  
 ○ Einliniennuklide mit Energien unterhalb 500 keV;  
 ● Einliniennuklide mit Energien oberhalb 500 keV;  
 x Mehrliniennuklide.

Der Korrekturfaktor für eine Gammaenergie  $E$  kann nach Gleichung (35) aus den Werten der Liniennachweiswahrscheinlichkeit ermittelt werden:

$$f_{1,E} = \frac{\varepsilon_a}{\varepsilon_{\text{exp}}} \tag{35}$$

mit

$\varepsilon_a$  Liniennachweiswahrscheinlichkeit bei der Energie  $E$ , ermittelt aus der Ausgleichsgeraden  $a$ ;

$\varepsilon_{\text{exp}}$  Liniennachweiswahrscheinlichkeit des Mehrliniennuklids  $r$  bei der Energie  $E$ .

**Anmerkung:**

Der nach Gleichung (35) ermittelte Korrekturfaktor gilt auch für Volumenquellen.

Bei Radionukliden, z. B. Ba-133, die neben Gammaphotonen auch Röntgenphotonen emittieren, treten auch Koinzidenzen zwischen beiden Photonarten auf. Diese sind ebenfalls zu korrigieren, wenn mit Detektorsystemen gemessen wird, die im niederenergetischen Bereich sehr empfindlich sind.

Für Radionuklide mit einem komplexen Zerfallschema bzw. für ausgedehnte Volumenquellen stehen kommerzielle Softwarelösungen zur Verfügung.

Eine typische Vorgehensweise für die softwaregestützte Ermittlung von Korrekturfaktoren wird im Folgenden beschrieben:

- Es werden die gewünschten Radionuklide und die zugehörigen Emissionslinien ausgewählt, für die Summationskorrekturen berechnet werden sollen.
- Auf der Grundlage der in der Software enthaltenen Radionukliddatenbank werden alle möglichen Kombinationen (Kaskaden) der betrachteten Gamma-linien mit anderen Gamma- und Röntgenlinien desselben Radionuklids ermittelt, die zu Summationsverlusten und Summationsgewinnen beitragen können. Dabei werden Zweifach-, Dreifach- und Mehrfachkoinzidenzen berücksichtigt. Für jede Kombination berechnet die Software die Wahrscheinlichkeit ihres Auftretens und legt die Daten in einer Datei ab (15).
- Danach startet die MC-Simulation zur Berechnung der Nachweiswahrscheinlichkeit mit und ohne Berücksichtigung der Summationseffekte. Der Quotient aus den beiden so berechneten Nachweiswahrscheinlichkeiten ist die gesuchte Summationskorrektur.

Bei Flaschen- und Ringschalengeometrien liegen die Korrekturen zwischen 5 % und 10 % bei der Messung von Radionukliden wie Co-60, Y-88, Cs-134, Eu-152. Dagegen weisen bei direkt auf dem Detektor liegenden Punkt- und Flächenpräparaten die Korrekturen eine Größenordnung von 20 % bis 50 % auf, welche durch eine Vergrößerung des Abstands zwischen Messpräparat und Detektor reduziert werden können. Bei Bohrlochdetektoren können aufgrund ihrer hohen totalen Nachweiswahrscheinlichkeit die Summationskorrekturen bis zu 500 % betragen. In Tabelle 2 sind beispielhaft für einige Radionuklide Korrekturfaktoren  $f_{1,j}$  bei verschiedenen Messgeometrien und Detektortypen angegeben; weitere Beispiele können der Literatur (6) entnommen werden.

**Tab. 2:** Beispiele für die Größenordnung der Korrekturfaktoren  $f_{1,j}$  nach (2, 16).  
Messgeometrien:

- 1 Punktquelle in 16 cm Entfernung vom Detektor;
- 2 Punktquelle auf der Detektorkappe;
- 3 1-Liter-Flasche (90 mm Durchmesser) auf der Detektorkappe;
- 4 1-Liter-Ringschale (Dicke der Ringschicht etwa 25 mm; innerer Durchmesser 88 mm);
- 5 0,45-Liter-Ringschale (Dicke der Ringschicht etwa 15 mm; innerer Durchmesser 80 mm);

Detektortypen:

- A n-type Ge-Detektor, relatives Ansprechvermögen 12,5 %;
- B n-type Ge-Detektor, relatives Ansprechvermögen 25 %;

Radionuklid	Energie in keV	$f_{1,j}$						
		A1	A2	A3	A4	A5	B1	B2
Co-60	1173	1,003	1,163	1,033	1,039	1,053	1,003	1,169
	1332	1,003	1,171	1,034	1,041	1,054	1,004	1,175
Y-88	898	1,003	1,154	1,029	1,035	1,046	1,005	1,374
	1836	1,003	1,178	1,035	1,049	1,067	1,006	1,403
Ba-133	81	1,005	1,300	1,054	1,052	1,071	1,008	1,684
	276	1,003	1,274	1,028	1,038	1,052	1,09	2,297
	303	1,002	1,161	1,015	1,020	1,027	1,008	2,054
	356	1,001	1,128	1,012	1,017	1,023	1,006	1,693
	384	0,999	0,906	0,989	0,985	0,977	1,000	1,169
Cs-134	605	1,004	1,252	1,050	1,063	1,085	1,005	1,249
	796	1,005	1,265	1,049	1,055	1,075	1,005	1,258
	1365	0,997	0,839	0,980	0,975	0,962	0,994	0,761
Eu-152	122	1,004	1,262	1,053	1,058	1,077	1,008	1,648
	245	1,006	1,434	1,072	1,088	1,122	1,011	2,086
	344	1,003	1,146	1,031	1,037	1,050	1,003	1,145
	411	1,007	1,424	1,071	1,075	1,103	1,008	1,432
	444	1,008	1,378	1,063	1,077	1,106	1,013	2,373
	779	1,004	1,249	1,042	1,045	1,062	1,005	1,256
	964	1,003	1,249	1,034	1,045	1,064	1,006	1,438
	1085	0,999	0,940	0,994	0,992	0,987	1,001	1,177
	1112	1,002	1,182	1,025	1,035	1,050	1,006	1,709
	1408	1,003	1,208	1,027	1,038	1,054	1,007	1,740

Eine Auswahl häufig auftretender Summenlinien findet sich im Allgemeinen Kapitel γ-SPEKT/SUMESC dieser Messanleitungen.

## 8 Korrektur der Selbstschwächung

Ein wesentliches Problem bei der Aktivitätsbestimmung in großvolumigen Messpräparaten ist, dass diese oft eine andere chemische Zusammensetzung und vor allem eine andere Dichte als das Kalibrierpräparat haben. Dadurch wird die Gammastrahlung in Kalibrier- und Messpräparat unterschiedlich geschwächt, so dass Korrekturen erforderlich werden.

Zur Beschreibung der Selbstschwächung werden der lineare Schwächungskoeffizient  $\mu_s$  oder der Massenschwächungskoeffizient  $\mu_s \cdot \rho^{-1}$  verwendet (2, 17). Der lineare Schwächungskoeffizient  $\mu_s$  kennzeichnet die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Gammaphoton je Zentimeter Absorberdicke mit den Atomen des Absorbermaterials wechselwirkt; er wird in der Einheit  $m^{-1}$  oder  $cm^{-1}$  angegeben. Da der lineare Schwächungskoeffizient proportional zur Dichte eines Materials ist, wird meist der auf die Dichte  $\rho$  des Materials bezogene Massenschwächungskoeffizient  $\mu \cdot \rho^{-1}$  angegeben; er wird üblicherweise in der Einheit  $cm^2 \cdot g^{-1}$  angegeben.

Für den mittleren linearen Selbstschwächungskoeffizienten eines gegebenen Messpräparates, das aus Massenanteilen  $r_i$  verschiedener Stoffe/Elemente besteht, gilt Gleichung (36):

$$\mu_{\text{att}} = \bar{\mu} = \frac{\sum r_i \cdot \mu_i}{\sum r_i} \quad (36)$$

Wird mit einem Kalibrierpräparat des Materials A kalibriert und besteht das Messpräparat aus einem Material B, berechnet sich der Korrekturfaktor  $f_2$  zur Berücksichtigung der Unterschiede in der Selbstschwächung gemäß dem Prinzip des Effizienztransfers (Abschnitte 4 und 6.3.3.3) durch Gleichung (37)

$$f_2 = \frac{f_s(B)}{f_s(A)} = \frac{\bar{\Omega}_B}{\bar{\Omega}_A} \quad (37)$$

Kommerzielle Software berechnet die Schwächungskorrekturfaktoren nach Gleichung (37), wenn die Massenanteile der Hauptelemente oder besser die chemische Zusammensetzung des Messpräparates bekannt sind (18, 19). Als Grundlage werden Schwächungskoeffizienten aus der Literatur (17, 20) verwendet.

Bei Photonenenergien kleiner 100 keV ist dieser Effekt besonders ausgeprägt. Daher ist bei der Aktivitätsbestimmung von z. B. I-129, Pb-210 oder Am-241 eine Korrektur zwingend erforderlich. Oberhalb von 100 keV ist der Effekt von geringerer Bedeutung. In diesem Zusammenhang wird auf die Messanleitung G- $\gamma$ -SPEKT-FISCH-01 verwiesen. Die Literatur bietet Tabellenwerke wie (21, 22) an, in denen mittlere elementare Zusammensetzungen verschiedener Matrices zusammengestellt sind.

## 9 Aktivitätsbestimmung

Die Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids erfolgt bei Ein- und Mehrliniennukliden auf unterschiedliche Weise. Die Berechnung der Aktivitäten von Einliniennukliden werden in den Abschnitten 9.1 und 9.2 näher erläutert. Bei Mehrliniennukliden ist die Aktivitätsbestimmung wesentlich komplexer (siehe Abschnitte 9.8 und 9.9). Bei der Bestimmung radioaktiver Stoffe in der Umwelt wird im Allgemeinen die bezogene Aktivität ermittelt, die sich aus der Aktivität im Messpräparat ergibt. Zusätzlich muss die Messunsicherheit angegeben werden.

Im Rahmen der Aktivitätsbestimmung müssen in Abhängigkeit des Anwendungsfalls verschiedene Korrekturen wie Pile-up-, Totzeit- und Zerfallskorrekturen sowie Nulleffektbeiträge, Interferenzen oder Summations- und Escapelinien berücksichtigt werden. In den nachfolgenden Abschnitten wird hierauf näher eingegangen.

### 9.1 Aktivitätsbestimmung nach nuklidspezifischer Kalibrierung

Die Aktivität  $A$  eines Radionuklids wird nach nuklidspezifischer Kalibrierung (siehe Abschnitt 6.3.1) gemäß Gleichung (38) berechnet:

$$A = \frac{N_n \cdot f_2}{\varepsilon_r \cdot t_m} \quad (38)$$

Darin bedeuten:

$N_n$  Nettoimpulsanzahl in der betrachteten Linie des Impulshöhenspektrums;

$t_m$  Messdauer in s;

$\varepsilon_r$  Nachweisvermögen für Strahlung der betrachteten Energie in der GesamtabSORPTIONSLINIE in  $\text{Bq}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ;

$f_2$  Korrektionsfaktor für Unterschiede in der Selbstschwächung (siehe Abschnitt 8).

Als Messdauer ist die sogenannte „live time“ zu verwenden.

### 9.2 Aktivitätsbestimmung nach energiespezifischer Kalibrierung

Die Aktivität  $A$  eines Radionuklids wird nach energiespezifischer Kalibrierung (siehe Abschnitt 6.3.2) gemäß Gleichung (39) berechnet:

$$A = \frac{N_n \cdot f_1 \cdot f_2}{\varepsilon_r \cdot p_\gamma \cdot t_m} \quad (39)$$

Darin bedeuten:

$p_\gamma$  Emissionsintensität für die betrachtete Gammastrahlung;

$f_1$  Korrektionsfaktor für Summationseffekte (siehe Abschnitt 7).

### 9.3 Pile-up und Totzeitkorrektur

Die Signalverarbeitung eines Spannungsimpulses (siehe Abschnitt 2.3) in der Messelektronik erfordert eine bestimmte Mindestdauer. Läuft während dieser Zeitspanne ein weiterer Spannungsimpuls ein, so führt dies zu einer Erhöhung (engl. „pile-up“) des sich in der Verarbeitung befindlichen Spannungsimpulses. Die beiden gemeinsam registrierten Impulse fehlen im Impulshöhenspektrum in den Gammalinien ihrer Photonenenergien (engl. „pile-up losses“); stattdessen wird der Summenimpuls einer höheren Photonenenergie zugeordnet (1, 3). Pile-up-Effekte werden von moderner Elektronik in gewissem Umfang (siehe Hinweis im Abschnitt 9.4.1) automatisch korrigiert (engl. „pile-up rejection“).

Die gesamte Signalverarbeitungsdauer während einer Messung wird Totzeit genannt und steigt im Allgemeinen mit zunehmender Impulsrate an. Deshalb ist diese Totzeit zu berücksichtigen, indem diese von der realen Zeitdauer der Messung (engl. „real time“) zu subtrahieren ist (sog. Totzeitkorrektur). Die so erhaltene Messdauer wird effektive Messdauer  $t_m$  (engl. „live time“) genannt und für die Auswertung verwendet.

Bei älteren Spektrometriemesseinrichtungen, die eine Totzeitkorrektur möglicherweise nicht automatisch durchführen, können diese Verluste mit Hilfe eines bei der Messung mitlaufenden Impulsgenerators ermittelt werden (2, 23).

## 9.4 Zerfallskorrekturen

### 9.4.1 Korrektur des radioaktiven Zerfalls während der Messung

Bei der Messung kurzlebiger Radionuklide mit Halbwertszeiten  $t_r$ , die vergleichbar oder kleiner der Messdauer  $t_m$  sind, muss der Zerfall des zu bestimmenden Radionuklids während der Messung berücksichtigt werden. Dazu sind die rechten Seiten der Gleichungen (38) und (39) mit dem nach Gleichung (40) zu berechnenden Zerfallskorrekturenfaktor

$$f_3 = \frac{\frac{\ln 2}{t_r} \cdot t_m}{1 - e^{\left(-\ln 2 \cdot \frac{t_m}{t_r}\right)}} = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}} \quad (40)$$

zu multiplizieren. Damit ergibt sich die Aktivität des Radionuklids zu Beginn der Messung.  $\lambda_r$  wird dabei als Zerfallskonstante des Radionuklids  $r$  bezeichnet.

#### Anmerkung:

Liegen höhere Aktivitäten vor, die zu einer signifikanten Erhöhung der Totzeit führen, ist mit deutlichen Zählverlusten zu rechnen, die durch die automatische Totzeitkorrektur nicht mehr ausreichend korrigiert werden können. Ab einer Totzeit von etwa 30 % sind die Zählverluste so hoch, dass keine quantitativ richtigen Ergebnisse erwartet werden können. In diesen Fällen ist die Messung beispielsweise mit einer geringeren Probenmenge bzw. einem größeren Abstand zwischen Probe und Detektor durchzuführen.

### 9.4.2 Korrektur des radioaktiven Zerfalls bezogen auf einen Bezugszeitpunkt

Die Aktivität zum Bezugszeitpunkt, z. B. auf den Zeitpunkt der Probeentnahme, der um eine Zeitspanne  $t_A$  vor dem Beginn der Messung liegt, wird durch Multiplikation der rechten Seiten der Gleichungen (38) und (39) mit einem weiteren Zerfallskorrekturenfaktor gemäß Gleichung (41) berechnet.

$$f_4 = e^{\frac{\ln 2}{t_r} \cdot t_A} = e^{\lambda_r \cdot t_A} \quad (41)$$

### 9.4.3 Hinweise zu Zerfallskorrekturen bei Mutter-Tochter-Paaren

Wenn die Halbwertszeit des Tochternuklides wesentlich kürzer als die des Mutternuklids ist, und der Bezugszeitpunkt der Aktivitäten in einer Umweltprobe deutlich vor dem Beginn der Messung liegt, ist für die Zerfallskorrektur die Halbwertszeit des Mutternuklids zu verwenden (siehe Abschnitt 5.2 und Anhang E). Anderenfalls wird die Aktivität des kurzlebigen Tochternuklids deutlich überschätzt.

Zu den Mutter-Tochter-Paaren, die bei der Überwachung radioaktiver Stoffe in der Umwelt relevant sind, gehören z. B.

- Te-132 ( $t_r = 3,2$  d) / I-132 ( $t_r = 2,3$  h) und
- U-238 ( $t_r = 4,47 \cdot 10^9$  a) / Th-234 ( $t_r = 24,1$  d),
- Ra-228 ( $t_r = 5,75$  a) / Ac-228 ( $t_r = 6,15$  h) sowie
- weitere aus den natürlichen Zerfallsreihen.

## 9.5 Nulleffektanzug

Nulleffektspektren müssen regelmäßig aufgenommen werden, um Untergrundbeiträge aus der Umgebung und Kontaminationen der Gammaskpektrometriemesse-richtung durch natürliche oder künstliche Radionuklide zu erfassen. Der zeitliche Abstand zwischen Nulleffektmessungen hängt von der Art der Messaufgabe und der Messorganisation des Labors ab. Die Nulleffektzählrate  $R_0$  ist bei der Auswertung des Impulshöhenspektrums nach Abschnitt 5 zu berücksichtigen.

Die Messdauer der Nulleffektmessung sollte mindestens der zu erwartenden Messdauer der Messpräparate entsprechen. Zudem sollten Nulleffektmessungen mit Proben ähnlicher Zusammensetzung und vernachlässigbarer Eigenaktivität durchgeführt werden, z. B. bei wässrigen Proben eine Nulleffektmessung mit destilliertem Wasser.

Details zu den im Impulshöhenspektrum des Nulleffekts auftretenden Linien und zur Abhängigkeit der Nulleffektspektren vom verwendeten Detektor bzw. Spektrometertyp sind im Allgemeinen Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/NULLEF dieser Messanleitungen beschrieben.

## 9.6 Interferenzen

In Impulshöhenspektren können sich die Gammalinien von Radionukliden, die identische oder sehr ähnliche Gammastrahlungsenergien aufweisen, überlagern. Dieser Effekt wird als Interferenz bezeichnet.

Grundsätzlich können interferierende Gammalinien entweder vom zu bestimmenden Radionuklid selbst oder von anderen im Messpräparat enthaltenen Radionukliden stammen. Je besser die Energieauflösung des Germaniumdetektors ist, desto geringer ist die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von Interferenzen.

Wenn sich Gammalinien verschiedener Radionuklide überlagern, die noch weitere Linien im Impulshöhenspektrum aufweisen, dann sollten ungestörte Linien zur Berechnung der Aktivität des Radionuklides genutzt werden. Mit der Aktivität, die aus ungestörten Linien ermittelt wird, und der bekannten Emissionsintensität kann der Zählratenanteil des interessierenden Radionuklids in der Mehrfachlinie berechnet und subtrahiert werden.

Im Allgemeinen Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/INTERF dieser Messanleitungen werden verschiedene Störungen vorgestellt.

## 9.7 Summations- und Escapelinien

Neben den im Abschnitt 7 bereits diskutierten Korrekturen für Koinzidenzsummatoren können in einem Impulshöhenspektrum infolge des Paarbildungseffektes noch weitere Linien, sogenannte „Single-Escapelinien“ (SE) und „Double-Escapelinien“ (DE), auftreten.

Unter Paarbildung wird die Erzeugung eines Elektron-Positron-Paares verstanden, die durch Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung einer Energie  $E_\gamma$  größer als 1022 keV mit Materie wie dem Detektormaterial auftritt. Bei Energien von

über 4000 keV ist die Paarbildung der vorherrschende Wechselwirkungsprozess von Gammastrahlung mit Materie.

Im Detektorkristall gebildete Positronen rekombinieren mit einem Elektron unter diametraler Aussendung von zwei Gammaquanten mit einer Energie von jeweils 511 keV. Diese Gammaquanten können ihrerseits den Detektor verlassen oder im Detektor weitere Wechselwirkungen eingehen. Diese führen entweder zur teilweisen oder vollständigen Absorption eines oder beider Gammaquanten:

- Wird eines der beiden Photon im Detektor nicht absorbiert, wird eine weitere Linie bei einer Energie sichtbar, die durch Subtraktion der Energie von 511 keV von der eigentlichen Energie der Gammalinie erhalten wird ( $E_{SE} = E_{\gamma} - 511 \text{ keV}$ ). Diese wird Single-Escapelinie genannt.
- Wird keines der beiden Photonen im Detektor absorbiert, wird eine weitere Linie bei einer Energie sichtbar, die durch Subtraktion der Energie von zweimal 511 keV von der eigentlichen Energie der Gammalinie erhalten wird ( $E_{DE} = E_{\gamma} - 1022 \text{ keV}$ ). Diese wird Double-Escapelinie genannt.

Weitere Wechselwirkungen von Gammaquanten mit dem Detektormaterial führen zur Bildung von Röntgenstrahlung, die als sogenannte X-Ray-Escapelinien im Impulshöhenspektrum erscheinen können ( $E_{XE} = E_{\gamma} - E_{X\text{-Ray}}$ ).

Detaillierte Erläuterungen finden sich in der Literatur (1), eine Auswahl typischer Summations- und Escapelinien im Allgemeinen Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/SUMESC dieser Messanleitungen.

## 9.8 Aktivitätsbestimmung von Radionukliden, die Gammastrahlung mehrerer Energien emittieren

Zur Aktivitätsbestimmung von Radionukliden mit mehreren Gammalinien aus einem komplexen Impulshöhenspektrum stehen verschiedene Verfahren zur Verfügung, die angewandt werden, wenn eine Verringerung der Standardunsicherheit der Aktivität und damit der Nachweisgrenze zu erwarten ist.

Zwei davon werden nachfolgend vorgestellt: Zum einen das einfachere Verfahren des gewichteten Mittelwertes, das auf den Fall interferenzfreier Linien eines einzelnen Radionuklids beschränkt ist; zum anderen das universelle Verfahren mit einem linearen Gleichungssystem, das sowohl für ein als auch für mehrere Radionuklide mit mehreren Gammalinien, die sich gegenseitig stören können, angewendet wird.

### 9.8.1 Gewichteter Mittelwert der Aktivität

Der gewichtete Mittelwert  $A_r$  der Aktivität eines Radionuklids wird aus den Aktivitätswerten von  $m$  Einzellinien, die nach den Abschnitten 9.2 bis 9.7 ermittelt wurden, nach Gleichung (42) und dessen Standardunsicherheit nach Gleichung (43) berechnet:

$$A_r = \frac{\sum_{j=1}^m A_j \cdot w_j}{\sum_{j=1}^m w_j} \quad (42)$$

$$u(A_r) = \frac{1}{\sqrt{\sum_{j=1}^m w_j}} \quad (43)$$

Dabei wird jedem Aktivitätswert  $A_j$  jeweils ein Wichtungsfaktor  $w_j$  zugeordnet. Üblicherweise beruht der Wichtungsfaktor auf der Standardunsicherheit der aus der Einzellinie berechneten Aktivität und wird gemäß Gleichung (44) berechnet.

$$w_j = \frac{1}{u^2(A_j)} \quad (44)$$

Dadurch werden Linien mit einer kleinen Standardunsicherheit stärker gewichtet als Linien mit größerer Standardunsicherheit.

Zur Berechnung des gewichteten Mittelwertes werden im Allgemeinen Einzellinien ausgewählt, deren Standardunsicherheiten der Aktivität in vergleichbarer Größenordnung liegen. Dabei sollen folgende Randbedingungen erfüllt sein:

- keine Überlappungen mit anderen Linien, auch nicht des Nulleffekts;
- möglichst ungestörter Untergrund unter der Einzellinie;
- Korrektur von Summations- und Selbstschwächungseffekten (siehe Abschnitte 7 und 8).

Die Vorgehensweise zur Bestimmung des gewichteten Mittelwertes ist in Anhang B ausgeführt.

### 9.8.2 Auswertung mit linearem Gleichungssystem

In einem Spektrum mit vielen Radionukliden, die jeweils mehrere Gammalinien emittieren, kommt es im Allgemeinen zu Interferenzen (Linienüberlagerungen). In diesem Fall können die Aktivitäten von Radionukliden nur mehr mit komplexeren Verfahren, wie dem im Folgenden beschriebenen Verfahren mit Matrix-Algebra, berechnet werden.

In einem Impulshöhenspektrum mit insgesamt  $n_L$  Linien ist eine Anzahl von  $N$  Radionukliden mit den jeweils gesuchten Aktivitäten  $A_r$  ( $r = 1 \dots N$ ; Liste der im Impulshöhenspektrum betrachteten Radionuklide, im Folgenden als „Nuklidliste“ bezeichnet) vorhanden. Für jedes Radionuklid  $r$  werden geeignete Einzellinien ausgewählt, die zu diesem Radionuklid gehören.

#### Anmerkung:

Kriterien bei der Auswahl geeigneter Einzellinien sind zum einen eine möglichst hohe Emissionsintensität der Gammalinie und zum anderen ein möglichst geringer Beitrag an Interferenzen in der betrachteten Gammalinie.

Die Nettozählraten der Gammalinien  $R_{n,k}$  ( $k = 1 \dots n_L$ ; „Linienliste“) werden nach Gleichung (45) mit Hilfe der Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon_k$  und der Selbstschwächungskorrektur  $f_{2,k}$  in Pseudoaktivitäten  $\hat{A}_k$  konvertiert:

$$\hat{A}_k = \frac{R_{n,k} \cdot f_{2,k}}{\varepsilon_k} \quad (45)$$

Es können mehrere Radionuklide zur Pseudoaktivität der Linie  $k$  beitragen, so dass für jede Linie  $k$  aus der Gesamtanzahl  $n_L$  der Einzellinien die Gleichung (46) aufzustellen ist:

$$\hat{A}_k = \sum_{r=1}^N M_{k,r} \cdot A_r = M_{k,1} \cdot A_1 + M_{k,2} \cdot A_2 + \dots + M_{k,N} \cdot A_N \quad (46)$$

Die Koeffizienten  $M_{k,r}$  sind das Verhältnis der Emissionsintensität  $p_{\gamma,k,r}$  und des Korrektionsfaktors für Summationseffekte  $f_{1,k,r}$  der Einzellinie  $k$  des Radionuklids  $r$  der Nuklidliste und werden entsprechend Gleichung (47) berechnet:

$$M_{k,r} = \frac{p_{\gamma,k,r}}{f_{1,k,r}} \quad (47)$$

Die Koeffizienten  $M_{k,r}$ , die nicht zur Pseudo-Aktivität der betrachteten Linie  $k$  beitragen, werden Null gesetzt.

Alle nach Gleichung (46) ermittelten Gleichungen ergeben zusammengefasst ein lineares Gleichungssystem, das vereinfacht in Matrix-Schreibweise  $\hat{\mathbf{A}} = \mathbf{M} \mathbf{A}$  beschrieben werden kann. Die Matrix  $\mathbf{M}$  besteht dabei aus  $n_L$  Zeilen für die Linien  $k$  der Linienliste und  $N$  Spalten für die Radionuklide der Nuklidliste.

Aus diesem Gleichungssystem können mit „least squares“-Verfahren, die im Anhang C.5 der Literatur (24) beschrieben sind, der Vektor der Aktivitäten  $\mathbf{A}$  und seine Kovarianzmatrix  $\mathbf{U}_A$  berechnet werden. Daraus lassen sich die Aktivitäten  $A_r$  und die dazugehörigen Unsicherheiten  $u(A_r)$  ablesen. Die Standardunsicherheiten der Matrixelemente  $M_{k,r}$  der Matrix  $\mathbf{M}$  sind je nach Anwendungsfall einzubeziehen.

Dieses Verfahren ist üblicherweise in Gammaspectrometrie-Software implementiert.

**Anmerkung:**

Für ein Radionuklid  $r$  mit nur einer Gammalinie, die der Linie  $k$  im Spektrum entspricht und interferenzfrei vorliegt, kann Gleichung (46) vom linearen Gleichungssystem separiert werden, wodurch sich die Matrix vereinfacht. Damit ergibt sich die Aktivität für das betrachtete Radionuklid  $r$  zu:

$$A_r = \frac{\hat{A}_r}{M_{k,r}} = \frac{R_{n,k} \cdot f_{1,k,r} \cdot f_{2,k}}{\varepsilon_k \cdot p_{\gamma,k,r}}$$

Diese Gleichung entspricht Gleichung (39) im Abschnitt 9.2.

## 9.9 Besonderheiten bei der Aktivitätsbestimmung natürlicher Radionuklide

Das Allgemeine Kapitel  $\gamma$ -SPEKT/NATRAD dieser Messanleitungen behandelt detailliert die Messung natürlicher Radionuklide. Bei der Aktivitätsbestimmung natürlicher Radionuklide müssen in jedem Fall deren spezifische Eigenschaften berücksichtigt werden. Außerdem müssen Störungen des radioaktiven Gleichgewichtes durch physikalisch-chemische Prozesse anthropogenen und geogenen Ursprungs erkannt und entsprechend korrigiert werden.

Drei Beispiele werden im Folgenden genannt:

- Beispiel 1: *Flüchtigkeit des Radons*  
Die Flüchtigkeit des Radons stellt ein messtechnisches Problem dar, wenn Messpräparate gemessen werden müssen, in denen das radioaktive Gleichgewicht zwischen einem Mutternuklid und Tochternukliden vorausgesetzt wird. Diese Voraussetzung ist für die Tochternuklide, die aus dem Zerfall des Radons entstehen, nicht ohne weiteres zu realisieren.
- Beispiel 2: *Vielzahl an Gammalinien, auch bei niedriger Photonenenergie*  
Die vielen Linien, die von den Radionukliden der natürlichen Zerfallsreihen stammen, werden z. T. auch im niederen Energiebereich des Impulshöhenpektrums nachgewiesen. Hier ist die Berücksichtigung von Koinzidenzsum-

mationskorrekturen (siehe Abschnitt 7) und von Selbstschwächungskorrekturen (siehe Abschnitt 8) für eine korrekte Aktivitätsbestimmung von entscheidender Bedeutung.

- Beispiel 3: *Störungen des Gleichgewichtsverhältnisses von U-238 und Th-234*  
Diese Störung kann im Rahmen der Wasseraufbereitung auftreten. Durch zeitversetzte Messungen, in diesem Fall nach einer Zeitspanne von 24 Tagen (etwa einer Halbwertszeit des kurzlebigen Tochternuklids Th-234) kann die Abweichung des radioaktiven Gleichgewichts dieser beiden Isotope ermittelt werden.

### 9.10 Bezogene Aktivität

Die Aktivität  $A_r$  des Radionuklids  $r$  im Messpräparat wird dann auf die Probe bezogen. Bei einem Bezug auf ein Volumen wird von der Aktivitätskonzentration  $c_r$  gesprochen, bei einem Massen- oder Flächenbezug von spezifischer Aktivität  $a_r$ .

Neben den bereits beschriebenen Korrekturen müssen gegebenenfalls weitere Korrekturen, die unabhängig von der Messung der Aktivität sind, berücksichtigt werden. Dies sind bekannte Verluste beispielsweise bei der Probeentnahme oder Probenvorbereitung.

Die vollständigen Gleichungen zur Berechnung der bezogenen Aktivität eines Radionuklids in einer Probe sind den jeweiligen Verfahren dieser Messanleitungen zu entnehmen.

### 9.11 Messunsicherheit

Die Aktivität oder bezogene Aktivität ist mit einer beigeordneten Unsicherheit anzugeben. Je nach Anforderung ist dies entweder die Standardunsicherheit oder die erweiterte Unsicherheit. Bei der erweiterten Unsicherheit wird der Wert der Standardunsicherheit mit einem Faktor  $k$ , üblicherweise mit  $k = 2$ , multipliziert (25).

In die Berechnung der Standardunsicherheit des einzelnen Aktivitätswerts gehen im Wesentlichen folgende Einzelbeiträge ein:

- die Standardunsicherheit der Nettoimpulsanzahl, basierend auf den Standardunsicherheiten der Brutto- und der Untergrundfläche oder bei Peakfit die Standardunsicherheit der Kurvenanpassung sowie die Beiträge aus dem Nulleffektabzug;
- die Standardunsicherheiten der Radionukliddaten;
- die Standardunsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon$  unter Berücksichtigung aller Unsicherheiten der bei der Kalibrierung nach Abschnitt 6.3 verwendeten Eingangsgrößen;
- die Standardunsicherheiten jedes Korrekturfaktors  $f_1$  bis  $f_n$ ;
- verfahrensbezogene Standardunsicherheiten, wie Masse bzw. Volumen der Probe.

In kommerzieller Spektrometrie-Software können diese Beiträge optional bei der Berechnung der Aktivität bzw. bezogenen Aktivität berücksichtigt werden.

## 10 Erkennungsgrenze und Nachweisgrenze

Die Erkennungsgrenze und die Nachweisgrenze werden nach (24) ermittelt. Grundlagen dazu sind auch in den Allgemeinen Kapiteln ERK/NACHWEISGR-ISO-01 bis ERK/NACHWEISGR-ISO-03 dieser Messanleitungen zu finden.

Für Messungen radioaktiver Stoffe und der externen Dosis im Rahmen des integrierten Mess- und Informationssystems (IMIS) wurden für die Quantile der standardisierten Normalverteilung zum Fehler 1. Art und zum Fehler 2. Art die Faktoren  $k_{1-\alpha} = 3$  und  $k_{1-\beta} = 1,645$  festgelegt.

Im Gegensatz dazu sind nach den Regeln des Kerntechnischen Ausschusses (KTA) die Faktoren  $k_{1-\alpha} = k_{1-\beta} = 1,645$  zu verwenden.

Bei kommerzieller Spektrometrie-Software müssen die werksseitigen Voreinstellungen gegebenenfalls angepasst werden.

Beispiele für die Ermittlung der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze sind in Anhang C zu finden.

## Anhänge

### A Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids durch Auswertung einer Gammalinie

Im Folgenden wird das grundlegende Prinzip der Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids in Fischasche durch Auswertung nur einer Gammalinie beschrieben. Das entsprechende Rechenbeispiel findet sich im Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01.

Wurde eine Gammalinie des Radionuklids  $r$  mit der Nettozählrate  $R_{n,r}$  nachgewiesen, wird die spezifische Aktivität  $a_r$  des Radionuklids  $r$ , bezogen auf die Feuchtmasse (FM) der Fischprobe und den Zeitpunkt der Probeentnahme nach Gleichung (A1) berechnet:

$$a_r = \varphi \cdot R_{n,r} = \frac{f_1 \cdot f_3}{\varepsilon_A \cdot p_{\gamma,r} \cdot m_A \cdot q_F} \cdot e^{\lambda_r \cdot t_A} \cdot R_{n,r} \quad (\text{A1})$$

mit:

$$f_3 = \frac{\lambda_r \cdot t_m}{1 - e^{-\lambda_r \cdot t_m}}$$

Darin bedeuten:

- $R_{n,r}$  Nettozählrate der Linie des Radionuklids  $r$  in  $s^{-1}$ ;
- $\varphi$  verfahrensbezogener Kalibrierfaktor in  $Bq \cdot s \cdot kg^{-1}$ ;
- $f_1$  Korrektionsfaktor für die Koinzidenzsummation;
- $f_3$  Korrektionsfaktor für das Abklingen des Radionuklids  $r$  während der Messung;
- $\varepsilon_A$  Nachweiswahrscheinlichkeit in Asche in  $Bq^{-1} \cdot s^{-1}$ ;
- $p_{\gamma,r}$  Emissionsintensität der Gammalinie des Radionuklides  $r$ ;
- $m_A$  Masse der zur Messung eingesetzten Asche in  $kg$ ;
- $q_F$  Verhältnis Feuchtmasse zu Aschemasse;
- $t_A$  Zeitdauer zwischen Probeentnahme und Beginn der Messung in  $s$ ;
- $t_m$  Messdauer in  $s$ ;
- $\lambda_r$  Zerfallskonstante des Radionuklids  $r$  in  $s^{-1}$ .

Die Nettozählrate für die Linie des Radionuklids  $r$  ist gemäß Gleichung (A2) zusammengesetzt:

$$R_{n,r} = R_{b,r} - R_{T,r} - R_{0,r} \quad (\text{A2})$$

Darin bedeuten:

- $R_{b,r}$  Bruttozählrate der Gammalinie des Radionuklids  $r$  in  $s^{-1}$ ;
- $R_{T,r}$  Linienuntergrundzählrate an der Gammalinie des Radionuklids  $r$ , z. B. als Trapezuntergrundzählrate, in  $s^{-1}$ ;
- $R_{0,r}$  Nettozählrate an der Linie des Radionuklids  $r$  aus dem Nulleffektspektrum in  $s^{-1}$ .

Die Unsicherheit der Nettozählrate  $u(R_{n,r})$  wird gemäß Gleichung (A3) ermittelt, die zugehörigen Koeffizienten  $\mu_k$  nach Gleichung (A4):

$$u(R_{n,r}) = \sqrt{\mu_0 \cdot R_{n,r}^2 + \mu_1 \cdot R_{n,r} + \mu_2} \quad (\text{A3})$$

mit den Koeffizienten:

$$\mu_0 = 0; \quad \mu_1 = \frac{1}{t_m}; \quad \mu_2 = \frac{R_{T,r} + R_{0,r}}{t_m} + u^2(R_{T,r}) + u^2(R_{0,r}) \quad (\text{A4})$$

Bei Verwendung eines Trapezverfahrens (linearer Untergrund) lässt sich der Ausdruck für  $\mu_2$  gemäß Gleichung (A5) darstellen:

$$\mu_2 = \frac{R_{T,r}}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right) + R_{0,r} \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0}\right) + \frac{R_{T,0,r}}{t_0} \cdot \left(1 + \frac{b_0}{2 \cdot L_0}\right) \quad (\text{A5})$$

Hierin bedeuten:

- $t_0$  Messdauer des Nulleffektspektrums in s;
- $b, b_0$  Fußbreiten der Linien des Proben- und des Nulleffektspektrums, in Kanälen;
- $L, L_0$  Anzahl derjenigen Kanäle, über die der Linienuntergrund jeweils links und rechts von der Linie bestimmt wird, für Proben- und Nulleffektspektrum;
- $R_{T,0,r}$  Linienuntergrundzählrate der Linie des Radionuklids r im Nulleffektspektrum, z. B. als Trapezuntergrundzählrate, in  $s^{-1}$ .

Gleichung (A5) gilt in sehr guter Näherung auch für die empirisch berechnete Untergrundstufenfunktion.

Für die Standardunsicherheit der Nettozählrate  $u(R_{n,r})$  folgt aus den Gleichungen (A3) bis (A5):

$$u^2(R_{n,r}) = \frac{R_r}{t_m} + \mu_2 = \frac{R_{n,r}}{t_m} + \frac{R_{T,r}}{t_m} \cdot \left(1 + \frac{b}{2 \cdot L}\right) + R_{0,r} \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0}\right) + \frac{R_{T,0,r}}{t_0} \cdot \left(1 + \frac{b_0}{2 \cdot L_0}\right) \quad (\text{A6})$$

Falls keine entsprechende Linie im Nulleffektspektrum vorhanden ist, entfallen in Gleichung (A6) die beiden letzten Terme.

Die relative Standardunsicherheit des verfahrensbezogenen Kalibrierfaktors ist nach Gleichung (A7) zu ermitteln, wobei die Unsicherheiten der Zerfallskorrekturen vernachlässigbar sind:

$$u_{\text{rel}}(\varphi) = \sqrt{u_{\text{rel}}^2(f_1) + u_{\text{rel}}^2(f_3) + u_{\text{rel}}^2(\varepsilon_A) + u_{\text{rel}}^2(p_\gamma) + u_{\text{rel}}^2(m_A) + u_{\text{rel}}^2(q_F)} \quad (\text{A7})$$

Die kombinierte Standardunsicherheit der spezifischen Aktivität  $a_r$  wird unter Verwendung von Gleichung (A8) berechnet:

$$u(a_r) = \varphi \cdot R_{n,r} \cdot \sqrt{u_{\text{rel}}^2(\varphi) + u_{\text{rel}}^2(R_{n,r})} \quad (\text{A8})$$

## B Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids durch Auswertung mehrerer Gammalinien

Im Folgenden wird das grundlegende Prinzip der Aktivitätsbestimmung eines Radionuklids in Fischasche durch Auswertung mehrerer Gammalinien beschrieben. Es beruht auf der Berechnung des gewichteten Mittelwertes der Aktivität nach Abschnitt 9.8.1. Das zugehörige Rechenbeispiel findet sich im Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01. Wurde eine Anzahl von  $m$  Gammalinien des Radionuklids  $r$  nach den Kriterien im Abschnitt 9.8.1 ausgewählt, wird die spezifische Aktivität  $a_r$  des Radionuklids  $r$ , bezogen auf die Feuchtmasse (FM) der Fischprobe und den Zeitpunkt der Probeentnahme, nach der Gleichung (B1) berechnet:

$$a_r = \varphi_M \cdot A_r = \frac{e^{\lambda_r \cdot t_A} \cdot f_3}{m_A \cdot q_F} \cdot A_r \quad (\text{B1})$$

Darin bedeuten:

- $\varphi_M$  verfahrensbezogener Kalibrierfaktor in  $\text{kg}^{-1}$ ;
- $f_3$  Korrektionsfaktor für das Abklingen des Radionuklids  $r$  während der Messung;
- $m_A$  Masse der zur Messung eingesetzten Asche in  $\text{kg}$ ;
- $q_F$  Verhältnis Feuchtmasse zu Aschemasse;
- $t_A$  Zeitdauer zwischen Probeentnahme und Beginn der Messung in  $\text{s}$ ;
- $\lambda_r$  Zerfallskonstante des Radionuklids  $r$  in  $\text{s}^{-1}$ .

Hierin ist  $A_r$  die aus  $m$  Gammalinien als gewichteter Mittelwert berechnete Aktivität zum Zeitpunkt der Messung,

$$A_r = \frac{\sum_{j=1}^m A_j \cdot w_j}{\sum_{j=1}^m w_j} = u^2(A_r) \cdot \sum_{j=1}^m \frac{A_j}{u^2(A_j)} \quad (\text{B2})$$

wobei die Standardunsicherheit  $u(A_r)$  durch Gleichung (B3) gegeben ist:

$$u(A_r) = \sqrt{\frac{1}{m \sum_{j=1}^m w_j}} = \sqrt{\frac{1}{m \sum_{j=1}^m \frac{1}{u^2(A_j)}}} \quad (\text{B3})$$

Hierin zählt der Index  $j$  die Linien ab. Die Aktivitäten  $A_j$  der einzelnen Linien werden analog zu Gleichung (A1) berechnet:

$$A_j = \frac{R_{n,j} \cdot f_{1,j}}{\varepsilon_{A,j} \cdot p_{\gamma,j}} = R_{n,j} \cdot \varphi_j \quad (\text{B4})$$

Darin bedeuten:

- $\varphi_j$  verfahrensbezogene Kalibrierfaktoren in  $\text{Bq} \cdot \text{s}$ ;
- $R_{n,j}$  Nettozählrate der Linie  $j$  in  $\text{s}^{-1}$ ;

- $\varepsilon_{A,j}$  Nachweiswahrscheinlichkeit der Linie  $j$  in Asche in  $\text{Bq}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$   
(siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 4.2.3);
- $p_{\gamma,j}$  Emissionswahrscheinlichkeit der Linie  $j$ ;
- $f_{1,j}$  Korrektionsfaktor für Koinzidenzsummation der Linie  $j$ .

Die Varianzen der  $A_j$  werden nach folgender Gleichung berechnet:

$$u^2(A_j) = u^2(R_{n,j}) \cdot \varphi_j^2 + R_{n,j}^2 \cdot u^2(\varphi_j) \quad (\text{B5})$$

Werden die Nettozählraten nach dem Trapezverfahren ermittelt, können ihre Standardunsicherheiten nach Gleichung (A6) berechnet werden. Wird dagegen ein Linienanpassungsverfahren („Fitten“) dafür verwendet, ändert sich in Gleichung (A6) der das Trapezverfahren kennzeichnende Faktor  $(1 + b/(2 \cdot L))$  in einen vom Anpassungsverfahren abhängigen Faktor  $f_B$ , so dass gilt:

$$u^2(R_{n,j}) = \frac{R_{n,j}}{t_m} + \mu_{2,j} \quad (\text{B6})$$

$$\mu_{2,j} = \frac{R_{T,j}}{t_m} \cdot f_B + R_{0,r} \cdot \left( \frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_0} \right) + \frac{R_{T,0,r}}{t_0} \cdot \left( 1 + \frac{b_0}{2 \cdot L_0} \right) \quad (\text{B7})$$

Der Faktor  $f_B$  ist im Prinzip von der mittleren Höhe des Untergrunds je Kanal unter der Linie und vom Verhältnis

$$\frac{R_{n,j} \cdot t_m}{\sqrt{R_{T,j} \cdot t_m}}$$

abhängig. Sind die Nettozählraten nahe der Nachweis- oder der Erkennungsgrenze, kann  $f_B$  durch einen festen Wert approximiert werden; siehe dazu das Rechenbeispiel im Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 5.2.2.

Schließlich wird die Standardunsicherheit der spezifischen Aktivität wie folgt berechnet:

$$u(a_r) = \varphi_M \cdot A_r \cdot \sqrt{u_{\text{rel}}^2(\varphi_M) + u_{\text{rel}}^2(A_r)} \quad (\text{B8})$$

mit

$$u_{\text{rel}}(\varphi_M) = \sqrt{u_{\text{rel}}^2(m_A) + u_{\text{rel}}^2(q_F)} \quad (\text{B9})$$

**Anmerkung:**

Die in diesem Abschnitt aufgeführten Rechnungen sind für eine Nachrechnung von Hand bereits zu aufwändig; deshalb wird in dem dazugehörigen Rechenbeispiel (siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 5.2.2) auf das Programm UncertRadio zurückgegriffen. Dies ist insbesondere deswegen erforderlich, weil der hier behandelte Fall bereits eine Anwendung der linearen Entfaltung darstellt und somit die Ermittlung von Erkennungs- und Nachweisgrenze iterativ verläuft.

## C Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenzen am Beispiel der Bestimmung der spezifischen Aktivitäten von Cs-134 und Cs-137 in Fisch

Die Berechnungen der Erkennungsgrenze und der Nachweisgrenze erfolgen nach (24). Bei Einlinienstrahlern (siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 5.1.1) können explizit Gleichungen für die Berechnung der Erkennungsgrenze und Nachweisgrenze angegeben werden. Hierfür sind eine Excel-Datei sowie eine Projektdatei zum Programm UncertRadio (siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitte 7.3.1 und 7.3.2) auf der Internetseite dieser Messanleitung abrufbar.

Für Mehrlinienstrahler (siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 5.1.2) können diese Gleichungen nur mehr rechnergestützt gelöst werden. Derzeit steht für die Berechnung eine Projektdatei zum Programm UncertRadio (siehe Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01, Abschnitt 7.3.2) auf der Internetseite dieser Messanleitung zur Verfügung.

Die Rechenbeispiele zu den im Folgenden beschriebenen Gleichungen finden sich im Verfahren G-γ-SPEKT-FISCH-01.

### C.1 Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze für die spezifische Cs-137-Aktivität

Zur Berechnung der Nachweisgrenze  $a_r^\#$  wird zunächst die Erkennungsgrenze der spezifischen Aktivität des Radionuklids  $a_r^*$  nach Gleichung (C1-1) ermittelt:

$$a_r^* = \varphi \cdot k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\mu_2} = \varphi \cdot k_{1-\alpha} \cdot \sqrt{\frac{1}{t_m} \cdot (R_{T,r} + R_{0,r}) + u^2(R_{T,r}) + u^2(R_{0,r})} \quad (\text{C1-1})$$

Damit lässt sich die Nachweisgrenze  $a_r^\#$  nach Gleichung (C1-2) berechnen:

$$a_r^\# = \frac{a_r^* \cdot \psi}{\theta} \left\{ 1 + \sqrt{1 - \frac{\theta}{\psi^2} \left( 1 - \frac{k_{1-\beta}^2}{k_{1-\alpha}^2} \right)} \right\} \quad (\text{C1-2})$$

mit den Hilfsgrößen:

$$\theta = 1 - k_{1-\beta}^2 \cdot u_{\text{rel}}^2(\varphi)$$

$$\psi = 1 + \frac{k_{1-\beta}^2}{2 \cdot a_r^*} \cdot \left( \frac{\varphi}{t_m} \right)$$

Dabei bedeuten:

$k_{1-\alpha}$  Quantil der Standardnormalverteilung zum Fehler 1. Art;

$k_{1-\beta}$  Quantil der Standardnormalverteilung zum Fehler 2. Art.

## C.2 Berechnung der Erkennungs- und Nachweisgrenze für die spezifische Cs-134-Aktivität

Die Erkennungsgrenze für Mehrlinienstrahler lässt sich noch direkt berechnen, während die anschließende Berechnung der Nachweisgrenze bereits Iterationen erfordert. Einzelheiten können dem Allgemeinen Kapitel ERK/NACHWEISGR-ISO-01 dieser Messanleitungen entnommen werden.

Die Erkennungsgrenze für die spezifische Cs-134-Aktivität wird nach Gleichung (C2-1) berechnet:

$$a_r^* = k_{1-\alpha} \cdot \varphi_M \cdot u(A_r = 0) = k_{1-\alpha} \cdot \varphi_M \cdot \sqrt{\frac{1}{\sum_j \frac{1}{\varphi_j^2 \cdot \frac{R_{T,j}}{t_m} \cdot f_B}}} \quad (\text{C2-1})$$

Die Nachweisgrenze für die spezifische Cs-134-Aktivität wird nach Gleichung (C2-2) abgeschätzt.

$$a_r^\# \approx a_r^* + k_{1-\beta} \cdot u(a_r^\#) \quad (\text{C2-2})$$

mit der iterierten Standardabweichung  $u(a_r^\#)$ :

$$u(a_r^\#) = \sqrt{\left(\frac{a_r^*}{k_{1-\alpha}}\right)^2 + \left[u^2(a_r) - \left(\frac{a_r^*}{k_{1-\alpha}}\right)^2\right] \cdot \frac{a_r^\#}{a_r}} \quad (\text{C2-3})$$

## D Grundlagen zu Korrektionsfaktoren für Koinzidenzsumimation

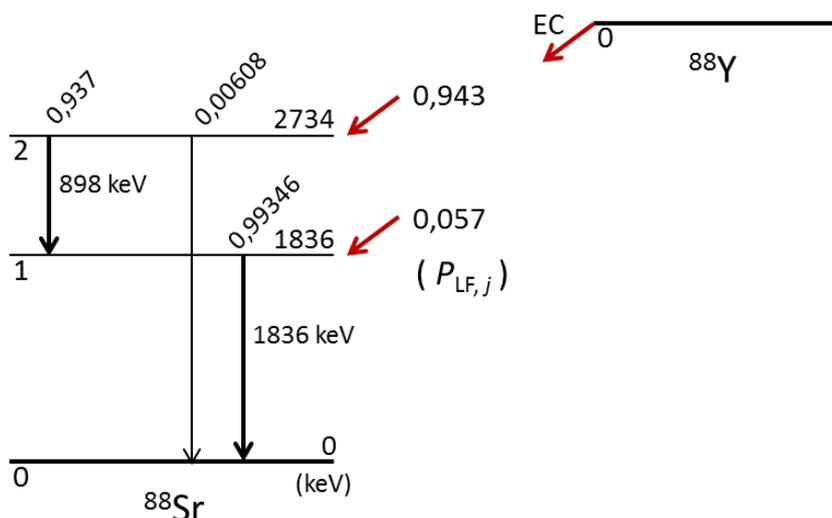
In Abschnitt 7 werden die Korrekturen zur Koinzidenzsumimation allgemein beschrieben. Für den in Abschnitt 6.3.3.1 behandelten einfachsten Fall der Bestimmung einer Liniennachweiswahrscheinlichkeit ist in Gleichung (31) ein Korrektionsfaktor zu ergänzen. Auf die Herleitung dieses Korrektionsfaktors wird in diesem Anhang am Beispiel einer Punktquelle ausführlich eingegangen.

### Hinweis:

Informationen zu den hier enthaltenen kernspezifischen Daten finden sich im Allgemeinen Kapitel KERNDATEN dieser Messanleitungen. Für weiterführende Erläuterungen zu den im Folgenden verwendeten Begriffen wird auf die Literatur (27) verwiesen.

In diesem Anhang gilt für die verwendeten Indizes folgende Nomenklatur:

- Kernniveaus des Tochternuklids – in Abbildung D-1 das Radionuklid Sr-88 – werden mit dem Buchstaben  $j$  gekennzeichnet. Der Wert  $j = 0$  beschreibt den Grundzustand. Alle weiteren Werte von  $j$  kennzeichnen die angeregten Zustände.
- Übergänge verknüpfen immer zwei Niveaus. So wird beispielsweise der Übergang vom Niveau  $j = 2$  auf das Niveau  $j = 1$  durch das Indexpaar ( $2 \rightarrow 1$ ) ausgedrückt.



**Abb. D-1:** Zerfallsschema von Y-88 nach Elektroneneinfang (engl. „electron capture“, EC).

Die schräg gestellten Zahlen stellen die Werte der Gamma-Emissionsintensitäten der Niveauübergänge 1 bzw. 2 zum Grundniveau 0 dar.  $P_{LF,j}$  ist die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung der Kernniveaus des Tochternuklids nach Elektroneneinfang des Mutternuklids Y-88.

Zum besseren Verständnis der nachfolgenden Abschnitte werden in Tabelle D-1 die wichtigsten verwendeten Symbole und ihre Bedeutung aufgelistet.

**Tab. D-1:** In Anhang D verwendete Symbole und ihre Bedeutung

Symbol	Größe	Symbol nach (27)	Quantity
$k \rightarrow l$	Niveauübergang von $k$ nach $l$	--	level transition from $k$ to $l$
$p_{\gamma,k \rightarrow l}$	Emissionsintensität für Gammastrahlung	$I_{\gamma}$	gamma emission intensity
$p_{CE,k \rightarrow l}$	Emissionsintensität des Konversionselektrons	$I_{CE}$	conversion electron emission intensity
$P_{g,k \rightarrow l}$	Gammaübergangswahrscheinlichkeit	$P_g$	total transition probability for a gamma transition including conversion electrons
$\alpha_{t,k \rightarrow l}$	totaler Gammakonversionskoeffizient	$\alpha_t$	total internal conversion coefficient
$X_{k \rightarrow l}$	Verzweungsverhältnis; definiert durch Gleichung (D4)	--	branching ratio, defined by equation (D4)
$X_{j,,k}$	Produkte von Verzweigungswahrscheinlichkeiten einer Folge von Niveauübergängen; definiert durch Gleichung (D6)	--	product of branching ratios of a transition sequence; defined by equation (D6)
$P_{LF,j}$	Wahrscheinlichkeit für den Übergang zum Kernniveau $j$ infolge einer Kernumwandlung (engl. „level feeding probability“)	$P_{\alpha}, P_{\beta}, P_{\epsilon}$	transition probability for an alpha, beta or an electron capture transition feeding the level $j$
$P_{C,j}$	Kaskadenwahrscheinlichkeit; definiert durch Gleichungen (D8), (D9)	--	probability of a transition cascade; defined by equations (D8), (D9)
$P_{D,r}(E)$	Wahrscheinlichkeit, dass pro Kernumwandlung eines Radionuklids $r$ ein Ereignis in der Gammalinie der Energie $E$ im Impulshöhenspektrum registriert wird	--	probability for detecting a count in the gamma peak at the energy $E$ per decay of a radionuclide $r$
$\epsilon_{p,k \rightarrow l}$	Liniennachweiswahrscheinlichkeit eines Gammaphotons	--	peak efficiency for a gamma photon
$\epsilon_{t,m \rightarrow n}$	totale Nachweiswahrscheinlichkeit eines Gammaphotons	--	total efficiency for a gamma photon

## D.1 Physikalische Grundlagen

Für ein Radionuklid mit komplexem Zerfallsschema werden die Grundlagen des Effekts der Koinzidenzsummutation für den einfachen Fall einer Punktquelle erläutert (26). Effekte aus der Röntgenstrahlung werden im Weiteren vernachlässigt.

Infolge der Kernumwandlung des Mutternuklids wird mit einer Wahrscheinlichkeit  $P_{LF,j}$  (engl. „level feeding probability“) ein Kernniveau  $j$  des Tochterkerns erreicht. Von diesem Kernniveau ausgehend geht der Atomkern in einer Kaskade von in extrem kurzer Zeit aufeinanderfolgenden Übergängen in das Grundniveau 0 über. Da sich die Übergänge im Allgemeinen von einem Anfangsniveau aus zu verschiedenen darunter liegenden Niveaus verzweigen können, sind viele Kaskadenwege durch das Niveauschema möglich. Sie unterscheiden sich vor allem darin, ob ein oder mehrere Gammaphotonen emittiert werden können.

Im Folgenden werden Niveauübergänge, bei denen ein Gammaphoton emittiert wird, als Übergang  $k \rightarrow l$  gekennzeichnet, solche ohne Photonemission als Übergang  $m \rightarrow n$ . Ein Gammaübergang liegt dann vor, wenn das Niveau  $j$  in ein darunter liegendes Niveau  $i$ , wobei  $i$  kleiner  $j$  ist, übergeht und dabei entweder ein Gammaphoton oder ein aus der Elektronenhülle des Tochterkerns freigesetztes Konversionselektron (engl. „conversion electron“, CE) emittiert wird. Die Summe der beiden Emissionsintensitäten wird als Gammaübergangswahrscheinlichkeit  $P_{g,k \rightarrow l}$  definiert (27):

$$P_{g,k \rightarrow l} = p_{\gamma,k \rightarrow l} + p_{CE,k \rightarrow l} \quad (D1)$$

mit

$p_{\gamma,k \rightarrow l}$  Emissionsintensität für Gammastrahlung beim Übergang  $k \rightarrow l$ ;

$p_{CE,k \rightarrow l}$  Emissionsintensität des Konversionselektrons beim Übergang  $k \rightarrow l$ .

Der totale Gammakoeffizient  $\alpha_{t,k \rightarrow l}$  für den Übergang  $k \rightarrow l$  ist in Gleichung (D2) beschrieben:

$$\alpha_{t,k \rightarrow l} = \frac{p_{CE,k \rightarrow l}}{p_{\gamma,k \rightarrow l}} \quad (D2)$$

Damit kann die Emissionsintensität für Gammastrahlung gemäß Gleichung (D3) angegeben werden:

$$p_{\gamma,k \rightarrow l} = \frac{P_{g,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \quad (D3)$$

Der Faktor  $(1 + \alpha_{t,k \rightarrow l})^{-1}$  gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass bei einem Gammaübergang ein Gammaphoton emittiert wird.

Erfolgen von einem Kernniveau  $k$  aus mehrere Übergänge zu verschiedenen darunter liegenden Niveaus  $m$  (einschliesslich  $l$ ), wird das Verzweungsverhältnis für den Übergang  $k \rightarrow l$   $x_{k \rightarrow l}$  mit Gleichung (D4) beschrieben:

$$x_{k \rightarrow l} = \frac{P_{g,k \rightarrow l}}{\sum_m P_{g,k \rightarrow m}} \quad \text{mit} \quad \sum_l x_{k \rightarrow l} = 1 \quad (D4)$$

Der im Nenner stehende Ausdruck gibt die Summe der Wahrscheinlichkeiten aller vom Niveau  $k$  abgehenden Übergänge an. Diese wird mit der Summe der Wahrscheinlichkeiten derjenigen Übergänge gleichgesetzt, mit denen das Niveau  $k$  von Niveaus  $j \geq k$  erreicht werden kann, d. h. nach Besetzung der Niveaus  $j \geq k$  durch Kernumwandlungen und anschließend kaskadenartig erfolgenden Übergängen zum Niveau  $k$ . Die Gleichsetzung lautet:

$$\sum_m P_{g,k \rightarrow m} = \sum_{j \geq k} P_{LF,j} \cdot X_{j,,,k} \quad (D5)$$

Weiterhin gibt

$$X_{j,,,k} = \sum_{J_j} X_{j,j-1} \cdot X_{j-1,j-2} \cdots X_{j-J_j,k} \quad (D6)$$

in symbolischer Schreibweise die Produkte von Verzweigungswahrscheinlichkeiten an, summiert über eine Anzahl  $J_j$  der möglichen von  $j \geq k$  nach  $k$  führenden Teilkaskaden.

Für das Grundniveau  $k = 0$  gilt dabei:  $x_{j,,,0} = 1$ .

Damit wird – bis auf eine Ausnahme – ausgedrückt, dass von einem Niveau  $j$  ausgehend durch Kaskadenübergänge immer das Grundniveau erreicht wird. Diese Ausnahme liegt vor, wenn innerhalb der Kaskade eins der Niveaus metastabil ist und die Kaskade damit bei diesem Niveau abbricht.

Aus den Gleichungen (D4) und (D5) folgt eine Beziehung (D7) zur Berechnung der Gammaübergangswahrscheinlichkeit:

$$P_{g,k \rightarrow l} = X_{k \rightarrow l} \cdot \sum_{j \geq k} P_{LF,j} \cdot X_{j,,,k} \quad (D7)$$

Dabei wird deutlich, dass der Übergang  $k \rightarrow l$  in der Gesamtheit der Übergänge  $k \rightarrow m$  enthalten ist.

Wird nach einer Kernumwandlung das Niveau  $j$  erreicht, wird die Wahrscheinlichkeit einer von diesem Niveau bis zum Grundniveau 0 verlaufenden Kaskade  $C$ , unabhängig davon, ob dabei Gammaphotonen emittiert werden oder nicht, als Kaskadenwahrscheinlichkeit  $P_{C,j}$  bezeichnet. Sie wird nach Gleichung (D8) berechnet:

$$P_{C,j} = P_{LF,j} \cdot X_{j \rightarrow j-1} \cdot X_{j-1 \rightarrow j-2} \cdots X_{1 \rightarrow 0} \quad (D8)$$

Im Falle verschiedener von demselben Niveau  $j$  ausgehender Teilkaskaden, d. h. Verzweigungen, wird darüber summiert und es gilt Gleichung (D9):

$$P_{C,j} = P_{LF,j} \cdot \sum_{\substack{m \\ (0 < m < j)}} X_{j \rightarrow m} \cdot X_{m \rightarrow m-1} \cdot X_{m-1 \rightarrow m-2} \cdots X_{1 \rightarrow 0} = P_{LF,j} \cdot X_{j,,,0} = P_{LF,j} \quad (D9)$$

Es ist dabei zu beachten, dass in Gleichung (D9) alle Verzweigungen, die jeweils von mehreren Niveaus ausgehen können, berücksichtigt werden müssen.

Im Folgenden wird die absolute Wahrscheinlichkeit  $P_{D,r}(E)$ , dass pro Kernumwandlung eines Radionuklids  $r$  ein Ereignis in der Gammalinie der Energie  $E_{k \rightarrow l}$  im Impulshöhenspektrum registriert wird, explizit hergeleitet. Das Produkt von  $P_{D,r}(E)$  und der Aktivität  $A$  des Präparats ergibt die in der Gammalinie bei der Energie  $E$  zu erwartende Zählrate.

Zu beachten ist der Unterschied zwischen dieser Wahrscheinlichkeit und dem mit der Liniennachweiswahrscheinlichkeit gebildeten Produkt  $\varepsilon_p \cdot p_\gamma$ . Bei der Definition der Liniennachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon_p$  wird nur betrachtet, dass ein Gammaphoton aus der Kernumwandlung den Detektor entweder erreicht und nachgewiesen wird oder nicht. Dafür ist vor allem die Geometrie der Messanordnung von Bedeutung. Die Wahrscheinlichkeit  $P_{D,r}(E)$  jedoch bezieht zusätzlich auch die Vorgänge ein, die nach der Kernumwandlung im Tochterkern ablaufen. Es können gleichzeitig ein Photon, oder mehrere Photonen in Koinzidenz emittiert werden. Der zweite Fall führt zu veränderten Zählraten. Das Verhältnis  $P_{D,r}(E)$  zu  $p_\gamma(E)$  stellt demnach eine Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon(E)$  dar. Deren Wert weicht von  $\varepsilon_p(E)$  ab und wird auch als beobachtete Nachweiswahrscheinlichkeit bezeichnet (engl. „apparent efficiency“).

$$\varepsilon_{p, \text{app}}(E) = \frac{P_{D,r}(E)}{p_\gamma(E)} \quad (\text{D10})$$

Ausgangspunkt der Herleitung von  $P_{D,r}(E)$  ist die Gleichung (D3). Die gemäß Gleichung (D3) ermittelte Emissionsintensität für Gammastrahlung  $p_{\gamma,k \rightarrow l}$  wird nun mit der Nachweiswahrscheinlichkeit  $\varepsilon_{p,k \rightarrow l}$  des beim Übergang  $k \rightarrow l$  emittierten Gammaphotons in der Gammalinie bei der Energie  $E_{k \rightarrow l}$  multipliziert. Das so erhaltene Produkt ist in Gleichung (D11) dargestellt.

$$p_{\gamma,k \rightarrow l} \cdot \varepsilon_{p,k \rightarrow l} = P_{g,k \rightarrow l} \cdot \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} = \frac{x_{k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \cdot \varepsilon_{p,k \rightarrow l} \cdot \sum_{j \geq k} P_{LF, j} \cdot x_{j,,,k} \quad (\text{D11})$$

Für den Nachweis dieses Gammaphotons in der Gammalinie bei der Energie  $E_{k \rightarrow l}$  muss aber die folgende Bedingung erfüllt sein: Es dürfen aus keinem der anderen Übergänge derselben Kaskade gleichzeitig weitere Gammaphotonen emittiert werden. Dies bedeutet, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit des Gammaphotons und die Wahrscheinlichkeiten, dass kein anderes Gammaphoton emittiert wird, zu multiplizieren sind. Dieser Zusammenhang wird in Gleichung (D12) beschrieben:

$$P_{D,r}(E) = \left[ \frac{x_{k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \cdot \varepsilon_{p,k \rightarrow l} \cdot \sum_{j \geq k} P_{LF, j} \cdot x_{j,,,k} \right] \cdot \left[ \prod_{\substack{m \rightarrow n \\ \neq k \rightarrow l}} x_{m \rightarrow n} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \right] \quad (\text{D12})$$

mit

$\varepsilon_{t,m \rightarrow n}$  totale Nachweiswahrscheinlichkeit eines Gammaphotons beim Übergang  $m \rightarrow n$  mit der Energie  $E_{m \rightarrow n}$ .

Der Index  $m \rightarrow n \neq k \rightarrow l$  unter dem Produktzeichen kennzeichnet diejenigen Kaskadenübergänge, bei denen kein Gammaphoton emittiert wird.

Der Ausdruck  $\varepsilon_{t,m \rightarrow n} \cdot (1 + \alpha_{t,k \rightarrow l})^{-1}$  ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Gammaphoton beim Übergang  $m \rightarrow n$  an jeder Stelle unterhalb der zu diesem Übergang gehörenden Energie im Impulshöhenspektrum registriert werden kann. Die Wahrscheinlichkeit, dass dieses Photon nicht registriert wird, ist dementsprechend gleich  $[1 - \varepsilon_{t,m \rightarrow n} \cdot (1 + \alpha_{t,k \rightarrow l})^{-1}]$ .

In Gleichung (D11) muss allerdings dahingehend korrigiert werden, dass die in  $x_{j,,,k}$  enthaltenen Produkte nur in dem Produkt der  $x_{m \rightarrow n}$  in der rechten eckigen Klammer in dieser Gleichung auftreten dürfen. Dafür wird zunächst die Wahrscheinlichkeit für eine einzelne der vielen möglichen Kaskaden  $C$ , die von einem Niveau  $j \geq k$  ausgehen, nach Umstellung von Gleichung (D12) in Gleichung (D13) dargestellt:

$$P_{D,r,C,j} = P_{LF,j} \cdot X_{j \rightarrow j-1} \cdots X_{k \rightarrow l} \cdot X_{l \rightarrow l-1} \cdots X_{1 \rightarrow 0} \cdot \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \cdot \prod_{m \rightarrow n \neq k \rightarrow l} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) = \quad (D13)$$

$$= P_{C,j} \cdot \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \cdot \prod_{m \rightarrow n \neq k \rightarrow l} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right)$$

Diese muss dann noch über die Niveaus  $j$  und die möglichen Wege  $C$  der Kaskaden von  $j$  über  $k$  und  $l$  nach 0 summiert werden, um zur Gleichung (D14) zur Berechnung der gesuchten Wahrscheinlichkeit  $P_{D,r}(E)$  zu gelangen ( $C$  ist von  $j$  abhängig):

$$P_{D,r}(E) = \sum_j \sum_C P_{C,j} \cdot \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \cdot \prod_{m \rightarrow n \neq k \rightarrow l} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \quad (D14)$$

Werden nun innerhalb einer Kaskade zwei oder mehr Photonen gleichzeitig emittiert, ist die vorstehende Gleichung zu erweitern:

$$P_{D,r}(E) = \sum_{C,j} P_{C,j} \cdot \left[ \prod_{k \rightarrow l} \left( \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \right) \right] \cdot \left[ \prod_{m \rightarrow n \neq k \rightarrow l} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \right] \quad (D15)$$

Das Produkt in der linken eckigen Klammer stellt den Beitrag koinzident emittierter Gammaphotonen zur Gammalinie bei der Energie  $E$

$$E = \sum_{k \rightarrow l} E_{k \rightarrow l} \quad (D16)$$

im Impulshöhenspektrum dar und wird dann als Summationsgewinn (engl. „summing-in“) interpretiert, wenn die Summe  $E$  gerade der Energie eines anderen Übergangs entspricht. Allerdings ist die Wahrscheinlichkeit, dass zwei gleichzeitig emittierte Gammaphotonen im Detektor nachgewiesen werden, aufgrund der Produktbildung kleiner Liniennachweiswahrscheinlichkeiten bereits relativ gering.

Die Faktoren  $[1 - \varepsilon_{t,m \rightarrow n} \cdot (1 + \alpha_{t,m \rightarrow n})^{-1}]$  in Gleichung (D15) sind kleiner als 1. Ihr Produkt verkleinert damit die Wahrscheinlichkeit des Nachweises des Photons, charakterisiert durch das Produkt in der linken eckigen Klammer. Dieser Effekt wird als Summationsverlust (engl. „summing-out“) bezeichnet. Zur Veranschaulichung nimmt man an, dass bei einem der Übergänge  $m \rightarrow n$  doch ein Photon mit der Energie  $E_{m \rightarrow n}$  emittiert würde. Dadurch würde die Impulshöhe der dem ersten Faktor zugeordneten Photonen der Energie  $E$  um einen Anteil der Energie  $E_{m \rightarrow n}$  erhöht. Das bedeutet, dass der zur erhöhten Impulshöhe gehörende Impuls oberhalb und damit außerhalb der zu  $E$  gehörenden Linie registriert und damit in der Linie fehlen würde.

Wird anstelle einer Punktquelle eine Volumenquelle betrachtet, muss Gleichung (D15) über das Volumen gemittelt werden. Damit wird Gleichung (D17) erhalten:

$$P_{D,r}(E) = \sum_{C,j} P_{C,j} \cdot \frac{1}{V} \cdot \int_V \left[ \prod_{k \rightarrow l} \left( \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \right) \right] \cdot \left[ \prod_{m \rightarrow n \neq k \rightarrow l} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \right] dV \quad (D17)$$

Die Berechnung dieser Gleichung erfordert aufwändige Monte Carlo-Verfahren.

Treten beim Zerfall auch Röntgenquanten auf, wird die Struktur der hier erläuterten Zusammenhänge deutlich komplexer.

## D.2 Korrektionsfaktoren

Der Korrektionsfaktor für Koinzidenzsummation wird im Fall einer Punktquelle für eine betrachtete Gammalinie der Energie  $E$  in Gleichung (D18) definiert:

$$f_E = \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_\gamma(E)}{P_{D,r}(E)} = \frac{\varepsilon_p(E)}{\varepsilon_{p,app}(E)} \quad (D18)$$

Diese Gleichungen werden im Folgenden angewendet, um die Korrektionsfaktoren für die Radionuklide Co-60 und Y-88 zu ermitteln, deren Tochterkerne insgesamt zwei Kernnivaus über dem Grundniveau aufweisen.

Bei Co-60 führt der Zerfall praktisch immer auf das Niveau 2, so dass das Niveau 1 nur von dort aus erreicht werden kann. Die Korrektionsfaktoren lauten in diesem Fall:

$$f_{E1} = f_{E,2 \rightarrow 1} = \frac{1}{1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}} \quad (D19)$$

$$f_{E2} = f_{E,1 \rightarrow 0} = \frac{1}{1 - \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}}}$$

Bei Y-88 führt der Zerfall mit Wahrscheinlichkeiten von 0,943 und 0,057 sowohl auf das Niveau 2 als auch auf das Niveau 1, so dass sich die Gleichung für  $f_{E2}$  ändert (siehe Abschnitt 7.1, Abbildung in Abschnitt D.3 auf der nächsten Seite):

$$f_{E1} = f_{E,2 \rightarrow 1} = \frac{1}{1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}} \quad (D20)$$

$$f_{E2} = f_{E,1 \rightarrow 0} = \frac{1}{1 - \frac{P_{g,2 \rightarrow 1}}{P_{g,1 \rightarrow 0}} \cdot \varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}$$

### D.3 Rechenbeispiel für Y-88

Am Beispiel von Y-88 wird die Ermittlung der Übergangswahrscheinlichkeiten und der sich daraus ableitenden Korrekturfaktoren bei zwei auftretenden Gammalinien gezeigt.

Die in Nukliddatenbanken hinterlegten nuklidspezifischen Daten für Y-88 sind in Tabelle D-2 zusammengestellt, die daraus abgeleiteten Daten in Tabelle D-3.

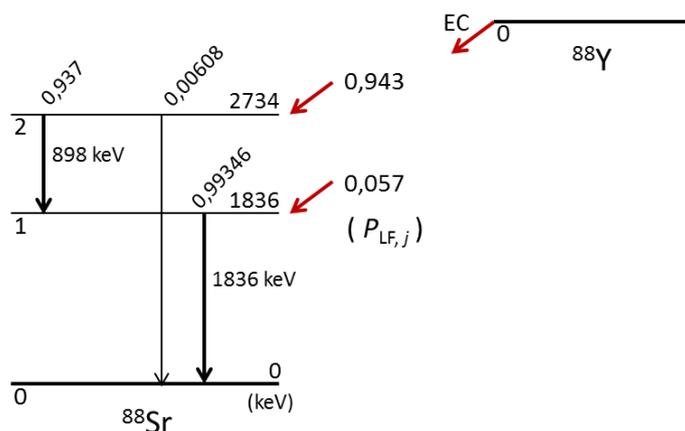
**Tab. D-2:** Gammadaten für Y-88 aus Literatur (27)

$k \rightarrow l$	$P_{LF}$	$E$ in keV	$P_g$	$\alpha_{t,k \rightarrow l}$	$(1 + \alpha_{t,k \rightarrow j})^{-1}$	$p_\gamma$
2 → 1	0,943	898,04	0,937	3,07E-04	0,99969	0,937
1 → 0	0,057	1836,07	0,9938	1,63E-04	0,99984	0,99346
2 → 0	0,943	2734,13	0,00608	1,24E-04	0,99988	0,00608

**Tab. D-3:** Abgeleitete Daten für Y-88

$k \rightarrow l$	$E$ in keV	$(1 + \alpha_{t,k \rightarrow j})^{-1}$	$x_{k \rightarrow l}$	$\varepsilon_t(E)$
2 → 1	898,04	0,99969	$0,937 / (0,937 + 0,00608) = 0,99355$	0,094644
1 → 0	1836,07	0,99984	$0,9938 / 0,9938 = 1,0$	0,075176
2 → 0	2734,13	0,99988	$0,00608 / (0,937 + 0,00608) = 0,0064470$	

Zur besseren Veranschaulichung der Beispielrechnung wird an dieser Stelle das Y-88-Zerfallsschema aus Abbildung D-1 noch einmal gezeigt:



### D.3.1 Korrektionsfaktor für die 898-keV-Linie

In einem Impulshöhenspektrum wird das Photon aus dem Übergang  $2 \rightarrow 1$  nur dann bei der Energie von 898 keV angezeigt, wenn das Photon aus dem Übergang  $1 \rightarrow 0$  nicht zeitgleich detektiert wird. Die diesen beiden Bedingungen zugeordneten Wahrscheinlichkeiten werden als Produkt in der folgenden Gleichung zur Berechnung der Detektionswahrscheinlichkeit des Photons mit der Energie von 898 keV dargestellt:

Niveau  $j = 2$ :

$$P_{D,\gamma-88}(898) = \sum_{j=2}^2 P_{C,j} \cdot \left[ \prod_{k \rightarrow l=2 \rightarrow 1} \left( \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \right) \right] \cdot \left[ \prod_{m \rightarrow n=1 \rightarrow 0} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \right] =$$

$$= P_{C,2} \cdot \frac{\varepsilon_{p,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \right) = p_{\gamma,2 \rightarrow 1} \cdot \varepsilon_{p,2 \rightarrow 1} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \right)$$

Im vorliegenden Fall kann mit Hilfe der Gleichungen (D3) und (D7) die Emissionsintensität der Gammalinie folgendermaßen beschrieben werden:

$$p_{\gamma,2 \rightarrow 1} = \frac{P_{g,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} = \frac{x_{2 \rightarrow 1} \cdot \sum_{j \geq k} P_{LF,2} \cdot x_{2,,,1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} = \frac{P_{LF,2} \cdot x_{2 \rightarrow 1} \cdot x_{1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} = \frac{P_{C,2}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}}$$

Durch Einsetzen von  $P_{D,\gamma-88}(898)$  in Gleichung (D18) wird die in Gleichung (D20) beschriebene Formel für  $f_{E1}$  erhalten:

$$f_{898} = \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_\gamma(E)}{P_{D,r}(E)} = \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_\gamma(E)}{p_{\gamma,2 \rightarrow 1} \cdot \varepsilon_{p,2 \rightarrow 1} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \right)} =$$

$$= \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_\gamma(E)}{p_\gamma(E) \cdot \varepsilon_p(E) \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \right)} = \frac{1}{1 - \frac{\varepsilon_{t,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}}$$

Mit den Werten aus den Tabellen D-2 und D-3 beträgt der Wert des Korrektionsfaktors  $f_{898}$ :

$$f_{898} = \frac{1}{1 - \frac{\varepsilon_t(1836)}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}} = \frac{1}{1 - 0,99984 \cdot \varepsilon_t(1836)} = \frac{1}{1 - 0,99984 \cdot 0,075176} = 1,0813$$

### D.3.2 Korrektionsfaktor für die 1836-keV-Linie

Bei der Berechnung des Korrektionsfaktors für die 1836-keV-Linie setzt sich die Detektionswahrscheinlichkeit der Photonen mit der Energie von 1836 keV aus zwei Termen zusammen, die beide Kaskaden, aus denen die Photonen emittiert werden, repräsentieren:

- Kaskade 1 (Term 1): Das Niveau  $j = 1$  wird direkt beim Y-88-Zerfall besetzt. Der Übergang erfolgt somit von  $1 \rightarrow 0$ .
- Kaskade 2 (Term 2): Das Niveau  $j = 2$  wird direkt beim Y-88-Zerfall besetzt. Das Photon aus dem Übergang  $1 \rightarrow 0$  bei einer Energie von 1836 keV wird nur dann angezeigt, wenn das Photon aus dem Übergang  $2 \rightarrow 1$  nicht zeitgleich detektiert wird.

Die Detektionswahrscheinlichkeit  $P_{D,Y-88}(1836)$  wird vollständig mit nachfolgender Gleichung als Summe zweier Terme beschrieben:

$$P_{D,Y-88}(1836) = \sum_{j=1}^2 P_{C,j} \cdot \left[ \prod_{k \rightarrow l=1 \rightarrow 0} \left( \frac{\varepsilon_{p,k \rightarrow l}}{1 + \alpha_{t,k \rightarrow l}} \right) \right] \cdot \left[ \prod_{m \rightarrow n} \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,m \rightarrow n}}{1 + \alpha_{t,m \rightarrow n}} \right) \right]$$

Der Term für Niveau  $j = 1$  lautet:

$$P_{D,Y-88}(1836) = P_{C,1} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}$$

**Anmerkung:**

Für  $j = 1$  entfällt der Faktor in der zweiten eckigen Klammer, da das Niveau 2 in diesem Fall nicht beteiligt ist.

Der Term für Niveau  $j = 2$  ( $m \rightarrow n = 2 \rightarrow 1$ ) lautet:

$$P_{D,Y-88}(1836) = P_{C,2} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right)$$

Die gesamte Detektionswahrscheinlichkeit  $P_{D,Y-88}(1836)$  setzt sich aus

- den Einzeltermen der beiden Besetzungsniveaus,
- der Beziehung  $P_{C,j}$  und  $P_{LF,j}$  nach Gleichung (D8),
- den Beziehungen  $P_{g,j}$  und  $P_{LF,j}$  nach Gleichung (D7)

$$P_{g,2 \rightarrow 1} = P_{LF,2} \cdot X_{2 \rightarrow 1} \cdot X_{1 \rightarrow 0}$$

$$P_{g,1 \rightarrow 0} = P_{LF,1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} + P_{LF,2} \cdot X_{2 \rightarrow 1} \cdot X_{1 \rightarrow 0}$$

zusammen.

$$\begin{aligned}
 P_{D,\gamma-88}(1836) &= P_{C,1} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} + P_{C,2} \cdot \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right) = \\
 &= \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{C,1} + P_{C,2} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right) \right) = \\
 &= \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{LF,1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} + P_{LF,2} \cdot X_{2 \rightarrow 1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} \cdot \left( 1 - \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right) \right) = \\
 &= \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{LF,1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} + P_{LF,2} \cdot X_{2 \rightarrow 1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} - \frac{P_{LF,2} \cdot X_{2 \rightarrow 1} \cdot X_{1 \rightarrow 0} \cdot \varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right) = \\
 &= \frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{g,2 \rightarrow 1} \cdot \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right)
 \end{aligned}$$

Mit

$$p_{\gamma}(E) = \frac{P_{g,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}$$

und einigen Umformungen und Ersetzungen wird der Korrektionsfaktor  $f_E$  aus Gleichung (D18) zum Korrektionsfaktor in Gleichung (D20):

$$\begin{aligned}
 f_{1836} &= \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_{\gamma}(E)}{P_{D,r}(E)} = \frac{\varepsilon_p(E) \cdot p_{\gamma}(E)}{\frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{g,2 \rightarrow 1} \cdot \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right)} = \\
 &= \frac{\varepsilon_p(E) \cdot \frac{P_{g,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}}}{\frac{\varepsilon_{p,1 \rightarrow 0}}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{g,2 \rightarrow 1} \cdot \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right)} = \\
 &= \frac{\varepsilon_p(E)}{1 + \alpha_{t,1 \rightarrow 0}} \cdot \left( P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{g,2 \rightarrow 1} \cdot \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}} \right) \\
 &= \frac{P_{g,1 \rightarrow 0}}{P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{g,2 \rightarrow 1} \cdot \frac{\varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}{1 + \alpha_{t,2 \rightarrow 1}}} = \frac{P_{g,1 \rightarrow 0}}{P_{g,1 \rightarrow 0} - P_{\gamma,2 \rightarrow 1} \cdot \varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}} = \\
 &= \frac{1}{1 - \frac{P_{\gamma,2 \rightarrow 1}}{P_{g,1 \rightarrow 0}} \cdot \varepsilon_{t,2 \rightarrow 1}}
 \end{aligned}$$

Mit den Werten aus den Tabellen D-2 und D-3 beträgt der Wert des Korrektionsfaktors  $f_{1836}$ :

$$f_{1836} = \frac{1}{1 - \frac{0,937}{0,9938} \cdot 0,094644} = 1,098$$

## **E Anwendung spezieller Radionuklidbibliotheken für natürliche Radionuklide**

In einigen Fällen können Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen, die keine Gammastrahlung emittieren, gammaspektrometrisch nur indirekt über ihre Folgenuklide bestimmt werden. Bei diesen Messungen muss sichergestellt werden, dass das radioaktive Gleichgewicht zwischen Mutternuklid und den zu messenden Tochternukliden besteht.

In Umweltproben kann das radioaktive Gleichgewicht aufgrund der unterschiedlichen chemischen bzw. biochemischen Eigenschaften der betreffenden Elemente gestört sein. Ein Beispiel hierfür ist die unterschiedliche Löslichkeit von Radium und Thorium in Wasser. Zudem kann eine Störung des radioaktiven Gleichgewichtes bei der Probeentnahme, z. B. durch Verwendung von Filtermaterialien, bewusst oder unbewusst herbeigeführt oder durch das Entweichen von Radon hervorgerufen werden.

Im Folgenden soll an zwei Beispielen die Verwendung unterschiedlicher Halbwertszeiten für ein- und dasselbe Radionuklid erläutert werden.

### **E.1 Betrachtung der Radionuklide Pb-214 und Bi-214**

Wenn zur Bestimmung eines Mutternuklids die Radionuklide Pb-214 und Bi-214 herangezogen werden, müssen je nach Anwendungsfall (siehe Tabelle E-1) unterschiedliche Halbwertszeiten zugrunde gelegt werden. Für jeden Anwendungsfall ist deshalb eine eigene Radionuklidbibliothek anzulegen:

- Bestimmung von Ra-226;
- Bestimmung von Rn-222 nach vorheriger Abtrennung von Rn-222 von seinem Mutternuklid Ra-226;
- Bestimmung von Radonfolgeprodukten ohne Vorhandensein des Mutternuklids Rn-222.

### **E.2 Betrachtung der Radionuklide Th-228 und Ra-224**

Besonders durch ihre unterschiedlichen chemischen oder biochemischen Eigenschaften, beispielsweise in Tiefenwasser, kommt es in aquatischen Systemen zu unterschiedlichen Aktivitätskonzentrationen von Radium- und Thoriumisotopen.

Soll die genaue Nuklidzusammensetzung einer wässrigen Lösung zum Zeitpunkt der Probeentnahme ermittelt werden, muss die Bestimmung der Aktivitätskonzentration in der Probe zeitnah nach deren Probeentnahme erfolgen, da sonst das Radionuklid Ra-224 mit seiner vergleichsweise kurzen Halbwertszeit von 3,66 Tagen u. U. zerfallen ist. Dieses Radionuklid wird vorzugsweise über sein Tochternuklid Pb-212 bestimmt. Für diesen Fall sollte deshalb eine spezielle Radionuklidbibliothek angelegt werden, bei der für Pb-212 die Halbwertszeit von Ra-224 von 3,66 Tagen hinterlegt ist. Da in der wässrigen Lösung auch Th-228 vorliegen kann, sollte dieselbe Probe nach einer Wartezeit von ca. vier Tagen erneut gemessen und mit derselben Radionuklidbibliothek ausgewertet werden. Ergibt sich im Rahmen der Messunsicherheiten der gleiche Messwert, bezogen auf das Probeentnahmedatum, handelt es sich um das Radionuklid Ra-224. Die Aktivitätskonzentration von Th-228 liegt in diesem Fall unterhalb der Erkennungsgrenze; in Tiefenwässern wird dies dem Regelfall entsprechen.

**Tab. E-1:** Für unterschiedliche Anwendungen verwendete Halbwertszeiten von Pb-214 und Bi-214 in der Gammaskopimetrie

Zu bestimmendes Mutter-nuklid	über Tochter-nuklide	Halbwertszeit in der Radionuklidbibliothek für die Tochter-nuklide	Zeitpunkt der Messung	Bemerkung	Typisches Messpräparat
Ra-226	Pb-214 Bi-214	1600 Jahre	Mehr als 20 Tage nach Befüllung des Messgefäßes	Messgut vorzugsweise in gasdichten Messgefäßes	Umweltprobe, direkt; z. B. Boden, Sediment, Baustoff
Rn-222	Pb-214 Bi-214	3,8 Tage	Keine Wartezeit vor der Messung erforderlich	Bezugsangabe: Datum und Uhrzeit des Endes der Beaufschlagung mit Rn-222. Unterbrechungsfreie Filterbeaufschlagung mit Rn-222 – optimal größer 20 Tage – unter vergleichbaren Bedingungen	mit Rn-222 beaufschlagte Aktivkohlefilter
Pb-214 Bi-214	keine	26,8 Minuten 19,8 Minuten	unmittelbar nach der Probeentnahme	Bezugsangabe: Datum und Uhrzeit des Endes der Beaufschlagung mit Rn-Folgeprodukten. Unterbrechungsfreie Filterbeaufschlagung – mindestens 3 Stunden – unter vergleichbaren Bedingungen	mit Rn-Folgeprodukten beaufschlagte Luftfilter

**Anmerkung:**

Wurde wider Erwarten nach vier Tagen Wartezeit eine deutliche Erhöhung, etwa eine Verdopplung des Messwertes bestimmt, steht der Messwert für das Radionuklid Th-228, das seinerseits mit Ra-224 im radioaktiven Gleichgewicht vorliegt. Zur exakten Bestimmung von Th-228 ist eine andere Radionuklidbibliothek zu verwenden, bei der für das Tochter-nuklid Pb-212 die Th-228-Halbwertszeit von 1,91 Jahren hinterlegt ist. Die ermittelte Aktivitätskonzentration gilt sowohl für Th-228 als auch für dessen Tochter-nuklid Ra-224.

Nach weiteren 20 Tagen Wartezeit hat sich das radioaktive Gleichgewicht zwischen dem Mutter-nuklid Th-228 und seinem Tochter-nuklid Ra-224 wieder eingestellt und die Probe kann erneut gemessen werden, falls die Th-228-Aktivitätskonzentration von Interesse ist. Bei der Auswertung des Impulshöhenspektrums wird die Aktivitätskonzentration von Th-228 über das Radionuklid Pb-212 bestimmt, wobei die Radionuklidbibliothek mit der Halbwertszeit vom Th-228 (1,91 Jahre) zu verwenden ist.

**Anmerkung:**

Im Allgemeinen liegen in aquatischen Systemen neben der hier diskutierten Abweichung des radioaktiven Gleichgewichts zwischen Ra-224 und Th-228 auch vom radioaktivem Gleichgewicht abweichende Aktivitätskonzentrationen von Ra-228 zu Th-228 vor.

In Feststoffproben (Boden, Sedimenten etc.) ist davon auszugehen, dass die Radionuklide Th-228 und Ra-224 im radioaktiven Gleichgewicht vorliegen. Ihre Aktivitätskonzentrationen werden deshalb über das Radionuklid Pb-212 ermittelt, so dass auch hier eine Radionuklidbibliothek mit der hinterlegten Halbwertszeit des Th-228 von 1,91 Jahren zu verwenden ist.

## Literatur

- (1) Knoll, G. F.: *Radiation detection and measurement*. 4<sup>th</sup> Edition. New York: John Wiley & Sons Inc., 2010. ISBN 978-4-470-13148-0.
- (2) Debertin, K., Helmer, R. G.: *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*. Amsterdam: North Holland.1988. ISBN 978-0444871077.
- (3) Gilmore, G.: *Practical Gamma-ray Spectrometry*. 2<sup>nd</sup> Edition. Chichester: John Wiley & Sons Ltd., 2008. ISBN 978-0-470-86196-7.
- (4) IEC 60973:1989, *Test procedures for germanium gamma-ray detectors detectors*.
- (5) IEEE 325:1996, *Test procedures for germanium gamma-ray detectors*.
- (6) Debertin, K., Schötzig, U.: *Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren*. PTB-Ra-24, Braunschweig: PTB, Mai 1990.
- (7) Helmer, R. G., Hardy, J. C., Iacob, V. E., Sanchez-Vega, M., Neilson, R. G., Nelson, J.: *The use of Monte Carlo calculations in the determination of a Ge detector efficiency curve*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A, 2003, Vol. 511, S. 360-381.
- (8) Venturini, L., Vanin, V.R.: *HPGe detector efficiency calibration for extended sources in the 50-1400 keV energy range*. Appl. Radiat. Isot., 1993, Vol. 44, Nr. 7, S. 999-1002. ISSN 0969-8043.
- (9) Venkataraman, R., Bronson, F., Atrashkevich, V., Young, B. M., Field, M.: *Validation of in-situ object counting system (ISOCS) mathematical efficiency calibration software*. Nucl. Instr. and Meth., 1999, A 422, S. 450.
- (10) Bronson, F. L., Venkataraman, R.: *Validation of the Accuracy of the LABSOCS Mathematical Efficiency Calibration for Typical Laboratory Samples*. 46th Annual Conference on Bioassay, Analytical, and Environmental Radiochemistry, November 12-17, Seattle, 2000.
- (11) Arnold, D., Sima, O.: *Transfer of the efficiency calibration of germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software*. Appl. Radiat. Isot., 2002 Vol. 56, Nr. 1-2, S. 71-75. ISSN 0969-8043.
- (12) Arnold, D., Sima, O.: *Extension of the efficiency calibration of germanium detectors using the GESPECOR software*. Appl. Radiat. Isot., 2004, Vol. 61, Nr. 2-3, S. 117-121. ISSN 0969-8043.
- (13) Sima, O., Arnold, D., Dovlete, C.: *GESPECOR: A versatile tool in gamma-ray spectrometry*. J. Radioanal. Nucl. Chem., 2001, Vol. 248, S. 359-364.  
Verfügbar unter: <http://dx.doi.org/10.1023/A:1010619806898>, [Zugriff am 04.10.2017].
- (14) Debertin, K., Schötzig, U.: *Coincidence Summing Corrections in Ge(Li)-Spectrometry at Low Source-to-Detector Distances*. Nucl. Instr. and Meth., 1979, Vol. 158, S. 471-477.
- (15) Arnold, D., Sima, O.: *Tool for processing decay data in view of coincidence summing calculations*. Appl. Radiat. Isot., 2008, Vol. 66, S. 705-710. ISSN 0969-8043.
- (16) Debertin, K.; Ren, J.: *Measurements of the Activity of Radioactive Samples in Marinelli Beakers*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A, 1989, Vol. 278, S. 541-549.
- (17) Hubbell, J. H.: *Photon Mass Attenuation and Energy-absorption Coefficient from 1 keV to 20 MeV*. Int. J. Appl. Radiat. Isot., 1982, Vol. 33, S. 1269-1290.

- (18) Arnold, D., Sima, O.: *Accurate computation of coincidence-summing corrections in low level gamma-ray spectrometry*. Appl. Radiat. Isot., 2000, Vol. 53. Nr. 1-2, S 51-56. ISSN 0969-8043.
- (19) Eckert & Ziegler Nuclitec GmbH, ed: *Calibration Standards and Instruments – Product Information*. 1. Ausgabe, 2009, S. 85. Verfügbar unter: [http://www.ezag.com/fileadmin/ezag/user-uploads/isotopes/pdf/Nuclitec\\_Isotrak\\_Catalog.pdf](http://www.ezag.com/fileadmin/ezag/user-uploads/isotopes/pdf/Nuclitec_Isotrak_Catalog.pdf), [Zugriff am 05.10.2017].
- (20) Berger, M. J., Hubbell, J. H., Seltzer, S. M., Chang, J., Coursey, J. S., Sukumar, R., Zucker, D. S., Olsen, K.: *NIST Standard Reference Database 8 (XGAM)*. In: National Institute of Standards and Technology, ed.: XCOM: Photon Cross Sections Database [online]. Version November 2010 verfügbar unter: <http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>, [Zugriff am 04.10.2017].
- (21) Souci, S. W., Fachmann, W., Kraut, H.: *Lebensmitteltabelle für die Praxis. Der kleine Souci/Fachmann/Kraut*. 5. Auflage. Stuttgart: WVG, 2011. ISBN 978-3-8047-2679-6.  
Auch verfügbar unter: <http://www.nutri-science.de/software/nutribase.php>, [Zugriff am: 04.10.2017].
- (22) Bosold, D., Pickhardt, R.: B1 – *Zemente und ihre Herstellung*. In: Informations-Zentrum Beton GmbH, ed.: Zement-Merkblätter Betontechnik [online]. Version 9.2017 verfügbar unter: <https://www.beton.org/service/zement-merkblaetter/>, [Zugriff am 16.10.2017].
- (23) Debertain, K.: *Messanleitung für die Bestimmung von Gammastrahlen-Emissionsraten mit Germaniumdetektoren*. PTB-Ra-12, Braunschweig: PTB September 1980.
- (24) DIN ISO 11929:2011, *Bestimmung der charakteristischen Grenzen (Erkennungsgrenze, Nachweisgrenze und Grenzen des Vertrauensbereichs) bei Messungen ionisierender Strahlung – Grundlagen und Anwendungen*.
- (25) JCGM-100:2008, *Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainty in measurement (GUM)*.  
Verfügbar unter: <http://www.bipm.org/en/publications/guides/gum.html>, [Zugriff am 05.10.2017]
- (26) Kanisch, G., Vidmar, T., Sima, O.: *Testing the equivalence of several algorithms for calculation of coincidence summing corrections*. Appl. Radiat. Isot., 2009, Vol. 67, Nr. 10, S. 1952–1956. ISSN 0969-8043.
- (27) Laboratoire National Henri Becquerel, ed: *Recommended Data* [online]. Version 03. März 2017 verfügbar unter: <http://www.lnhb.fr/nuclear-data/nuclear-data-table/>, [Zugriff am 16.10.2017].