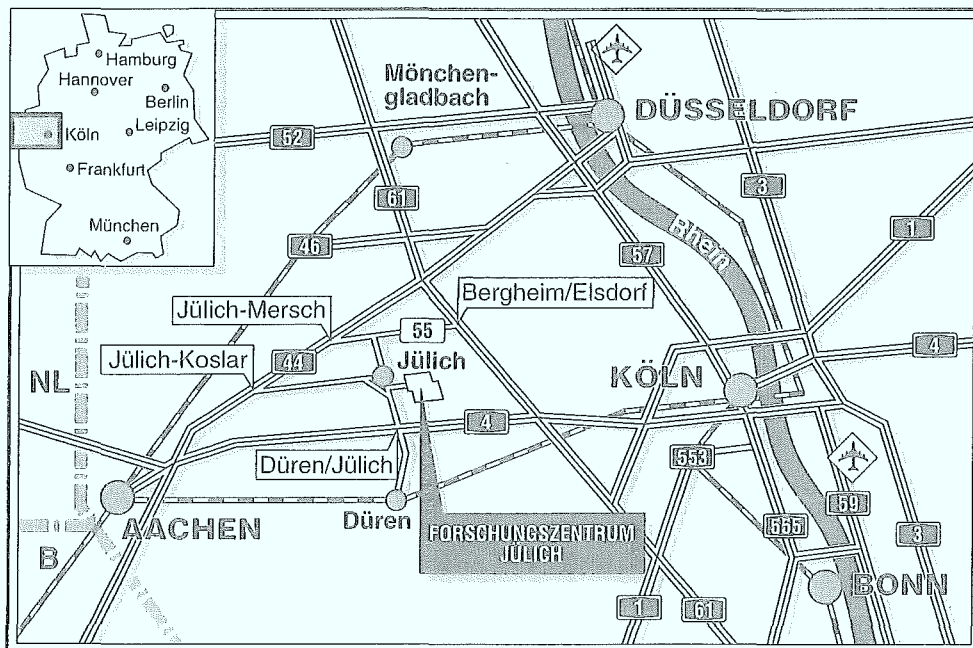


*Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik*

**Identifikation von Beta-Nukliden
und Analyse von Mehrfach-Beta-Spektren
bei Messungen mit dem Flüssig-
Szintillationsspektrometer (LSC)**

H.-J. Weise, P. Filss



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3066

ISSN 0944-2952

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jül-3066

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-61 02 · Telefax: 02461/61-61 03 · Telex: 833 556-70 kfa d

Identifikation von Beta-Nukliden und Analyse von Mehrfach-Beta-Spektren bei Messungen mit dem Flüssig- Szintillationsspektrometer (LSC)

H.-J. Weise, P. Filss

Zusammenfassung:

Es werden Tabellen und Kurven zusammengestellt, um gemischte Spektren von β -Strahlern im Flüssigszintillationsspektrometer auszuwerten. Wichtig sind insbesondere die Festlegung des Löschverhaltens über den mit dem Gerät bestimmaren tSIE-Wert und die damit zusammenhängende Verringerung δ der Maximalenergie des β -Spektrums (Anhang I). Ebenso wichtig ist die dadurch bedingte Verringerung der Nachweiswahrscheinlichkeit ε auf Werte < 1 für niederenergetische β -Spektren. Mit Hilfe der Efficiency-Tabellen (Anhang III) für Nuklide mit einer Maximalenergie bis 300 keV können die Zählraten in die Aktivität der Probe umgerechnet werden.

Zur Identifizierung unbekannter β -Spektren wird weiter in Anhang II eine nach steigender β -Energie geordnete Tabelle langlebiger Nuklide und in Anhang IV eine graphische Darstellung der wichtigsten β -Spektren auf der logarithmischen Energieskala im LSC gegeben.

Mit diesen Hilfsmitteln werden an mehreren Beispielen komplex überlagerte β -Spektren analysiert. Sofern die identifizierten Nuklide als Standardlösungen vorliegen, können Vergleichsproben hergestellt, die Spektren verglichen und subtrahiert werden. Damit ist die Auflösung eines komplexen β -Spektrums in der Regel in bis zu vier Einzelspektren möglich.

Abstract:

Tables and graphs are compiled to evaluate mixed spectra from β emitters in a liquid scintillation spectrometer. Particular importance is attached to defining quenching behavior via the tSIE value determinable with the device, and thus the associated reduction δ of the maximum energy of the β spectrum (Appendix I). Equally important is the related reduction of the detection probability ε to values < 1 for low-energy β spectra. With the aid of the efficiency tables (Appendix III), the count rates can be converted into the activity of the specimen for nuclides with a maximum energy of up to 300 keV. In order to identify unknown β spectra, a table of long-lived nuclides ordered according to increasing β energy is given in Appendix II, and in Appendix IV a graphical representation of the most important β spectra on the logarithmic energy scale in an LSC. Several examples of complexly superposed β spectra are analysed using these aids. If the identified nuclides are available in the form of standard solutions reference specimens can be produced, the spectra compared and subtracted so that it is generally possible to resolve a complex β spectrum into as many as four single spectra.

Einleitung

Radioaktive Abfallstoffe, die bei der Erzeugung von Kernenergie sowie in Forschung und Medizin anfallen, sollen in der Bundesrepublik Deutschland in tiefen, geologischen Formationen endgelagert werden, um einen langfristigen Abschluß gegenüber der Biosphäre zu gewährleisten. Für die Endlagerung zuständig ist das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS). Die im Endlager einzulagernden radioaktiven Abfälle sind so zu konditionieren oder zu verpacken, daß eine sichere, gefahrlose Handhabung und Beförderung sowie die langfristige Sicherheit garantiert sind. Diese Anforderungen sind in den Endlagerungsbedingungen /2/ festgelegt, in denen insbesondere die Aktivität der einzelnen Nuklide pro m^3 begrenzt ist. Die Werte sind vom Ablieferer einzuhalten. Mit der Überprüfung wurde die Produktkontrollstelle (PKS) im Forschungszentrum Jülich (KFA) vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) beauftragt. Die folgenden Untersuchungen sind im Rahmen dieser Arbeiten entstanden.

An bereits konditionierten Abfallgebinden erfolgt die Überprüfung auf Einhaltung der Endlagerungsbedingungen nach Sichtung der Dokumentationen durch Stichprobenprüfung. Die Aktivität der γ -Strahler und Neutronenemitter kann zerstörungsfrei am geschlossenen Gebinde mit einem Scanner oder Zähler bestimmt werden oder zerstörend durch Probenahme und -analyse, in der Regel durch Entnahme von Bohrkernen und deren Analyse. Reine α - und β -Strahler, z.B. U-234 und C-14, können nur zerstörend nach Entnahme von Bohrkernen nach deren Aufbereitung, in der Regel Auflösung, bestimmt werden. In Abfällen sind meist Gemische verschiedener Nuklide zu erwarten. Ziel der folgenden Arbeit ist es, gemischte β -Spektren, wie sie mit den heutigen Flüssigkeitsszintillationszählern gemessen und dargestellt werden, kritisch zu interpretieren und, soweit möglich, die Anteile der Einzelnuklide zu bestimmen. Dabei wird insbesondere die Verschiebung der Energieskala durch Quench(Lösch)effekte im Szintillator behandelt und die sukzessive Subtraktion von β -Spektren zur Ermittlung der Einzelspektren.

Geräte und Chemikalien

Die nachfolgenden Untersuchungen wurden mit den β -Spektrometern *TriCarb 2200 CA* und *TriCarb 1900 CA* von Packard durchgeführt. Soweit uns bekannt ist, sind die Auswertalgorithmen an anderen Geräten oft ähnlich, so daß die Ergebnisse übertragbar sein sollten. Der verwendete Szintillator *InstantGel* stammt ebenfalls von Packard. *InstantGel* erhielt deshalb den Vorzug, weil es a) sehr gut salpetersäureverträglich und b) suspensionsbildend ist. Die Suspension (5 ml H_2O + 14 ml *InstantGel*) bietet die Möglichkeit, sehr feine Feststoffpulver direkt zu messen, da sie in Schwebezustand gehalten werden. Eine Ablagerung am Boden und die damit verbundene Selbstabsorption während der Messung wird dadurch vermieden.

Viele radioaktive Abfälle liegen in zementierter Form vor, von denen Bohrproben entnommen werden und der Bohrstaub in Salpetersäure gelöst wird (maximale Aktivität). Max. 2 ml dieser Lösung mit einer Azidität < 5 M können mit *InstantGel* gemischt und als homogene Lösung im LSC gemessen werden. Verwendet man 3 oder 4 ml dieser Lösung, kommt es zu einer Mischungslücke (Bildung von 2 oder 3 Phasen). Fehlmessungen sind dann sehr wahrscheinlich. Dieser Bereich sollte vermieden werden. Bei 5 ml wässriger Lösung und 14 ml Szintillator bildet sich ein stabiles Gel, das ebenfalls gute Zähleigenschaften hat.

An dem Gerät werden die gemessenen Impulse als Impulshöhenspektrum dargestellt, wobei in der Abszisse statt der Impulshöhe die β -Energie angegeben wird. Die angezeigte Energieskala des Gerätes gilt nur für ungequenchte Proben (versiegelte Standards).

Zu Beginn der Lösungsversuche und β -Messungen fielen viele Proben mit den unterschiedlichsten Quenchwerten an. Durch das Quenching geht Energie des Szintillationsvorganges (Erzeugung von Lichtblitzen) verloren, die Szintillationsimpulse werden kleiner und bei der Impulshöhenspektroskopie kommt es zu einer scheinbaren Energieverschiebung von hohen zu niederen β -Energien. Verursacht wird dies durch Farben (bes. Gelb) und chemische Einflüsse, wie Säuren, Laugen und Sauerstoff. Die von uns benutzten Geräte von Packard erfassen das Quenching durch den tSIE-Wert. tSIE steht für Spectral Index of the External standard. Dazu wird mit einer Vorrichtung eine externe Quelle (Ba-133) an das zu messende Probenfläschchen gebracht und das dadurch erzeugte Compton-Spektrum des Szintillators in der Probenflasche analysiert (Impulse über/unter einer Diskriminatorschwelle). Dies ergibt den tSIE-Wert der Probe, der ausgedruckt werden kann.

Der tSIE-Wert des Probeninhalts (LSC-Fläschchen) wurde dabei durch Zugabe von Quenchsubstanzen z.B. starke HNO_3 verändert. Die Messpunkte ergeben die Kurve $\delta = f(\text{tSIE})$ in Fig. 1. Im Prinzip und besonders bei organischen Proben können die Kurven für verschiedene Probenotypen und Szintillatoren leicht voneinander abweichen. Bei den von uns untersuchten salpetersauren Abfallproben reicht eine Kurve aus, sofern nicht extreme Färbungen und Absorptionen (Kohle) vorliegen.

Mit der Option AEC (Automatic Efficiency Control) kann das Gerät auch während bestimmter Meßmoden eine gesetzte theoretische Grenzenergie mit Hilfe des gemessenen tSIE-Wertes in die gequenchte Energie korrigieren. Dividiert man die gesetzte Energie (Literaturwert) durch die korrigierte, so erhält man ebenfalls den Verschiebungsfaktor δ in Abhängigkeit des tSIE-Wertes.

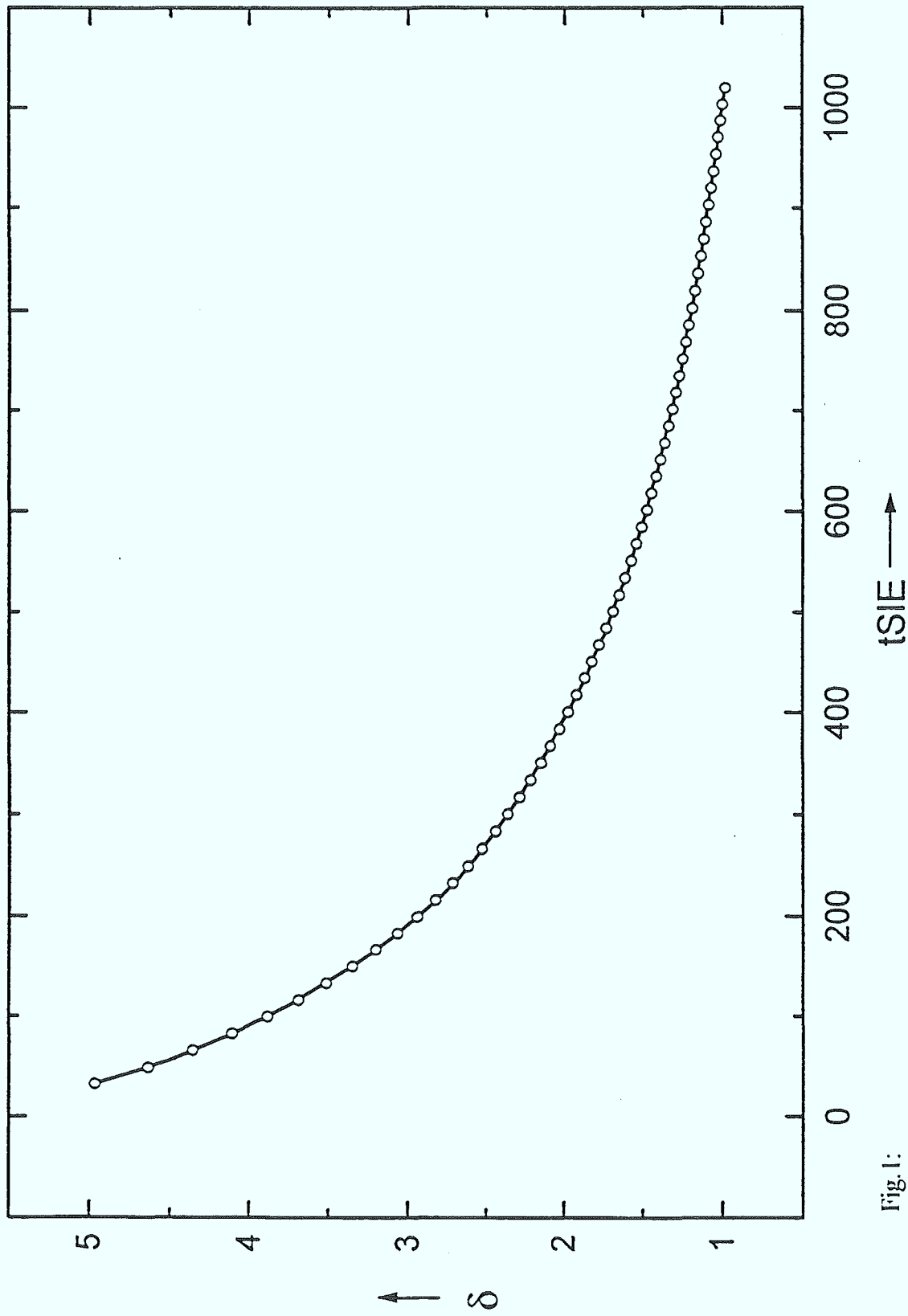


Fig. 1:
Verschiebungsfaktor δ in
Abhängigkeit vom $tSIE$ -Wert

Zum genaueren Ablesen wurde die Kurve in 6 Abschnitte unterteilt. Jedem Abschnitt wurden 10 repräsentative Punkte entnommen, in ein Interpolationspolynom (nach Lagrange) /7/ eingebunden und zweispaltig als Abhängigkeit des Verschiebungsfaktors δ vom tSIE-Wert ausgedruckt. Diese Tabelle findet sich in Anhang I.

Identifikation von Nukliden

Zunächst ist die im Gerätehandbuch (Operation Manual) /6/ beschriebene Kalibration des Spektrometers vorzunehmen.

Wesentliche Voraussetzung für die hier angegebene Bearbeitung der Spektren ist die programmtechnische Möglichkeit, die Spektren aus der linearen Energieskala in die logarithmische (Abszisse vergl. Fig. 2) zu transferieren. Während in der linearen Darstellung die β -Spektren im Meßbereich 0 - 2000 keV (full scale) sehr ähnlich aussehen, läßt die logarithmische Darstellung die hochenergetische Abbruchkante der Spektren als charakteristisches Merkmal der β -Spektren gut erkennen, sowie die nuklidspezifische Form der Spektren. Die Spektren wichtiger Abfallnuklide sind in Anhang IV dargestellt. Sie sollen die Identifikation bei einem unbekannten Spektrum erleichtern. Als Maximalenergie des β -Spektrums wird hier die Mitte der Auslaufkrümmung des Spektrums genommen. Dieser Wert auf der keV-Skala entspricht auch in etwa dem Schnittpunkt einer an den hochenergetischen Abfall des Spektrums angelegten Tangente mit der Abszisse. Beide Bestimmungsmethoden werden im Folgenden angewandt. Von der Software des Gerätes wird immer die Energieskala für ungequenchte Proben dargestellt.

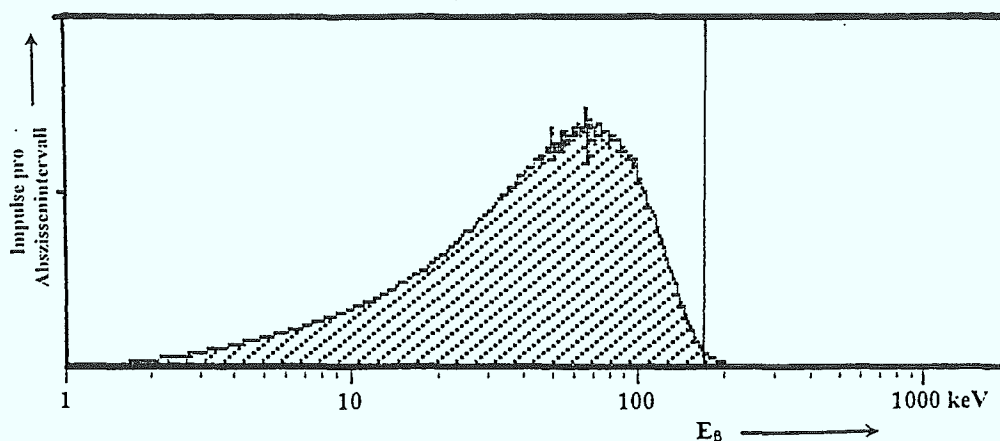


Fig. 2:
Spektrum des C-14 über der logarithmischen Energieskala

Zum Vergleich der auf der Skala bestimmten Maximalenergie mit dem Literaturwert für die Grenzenenergie des β -Spektrums (z.B. Nuklidtafel oder Anhang II) dividiert man die Grenzenenergie (Literaturwert) durch den Verschiebungsfaktor, der sich aufgrund des gemessenen tSIE-Wertes ergibt. Bei den Spektren Fig. 3 - Fig. 5 ist dies am Beispiel Sr-90/Y-90 in der logarithmischen und der linearen Darstellung demonstriert.

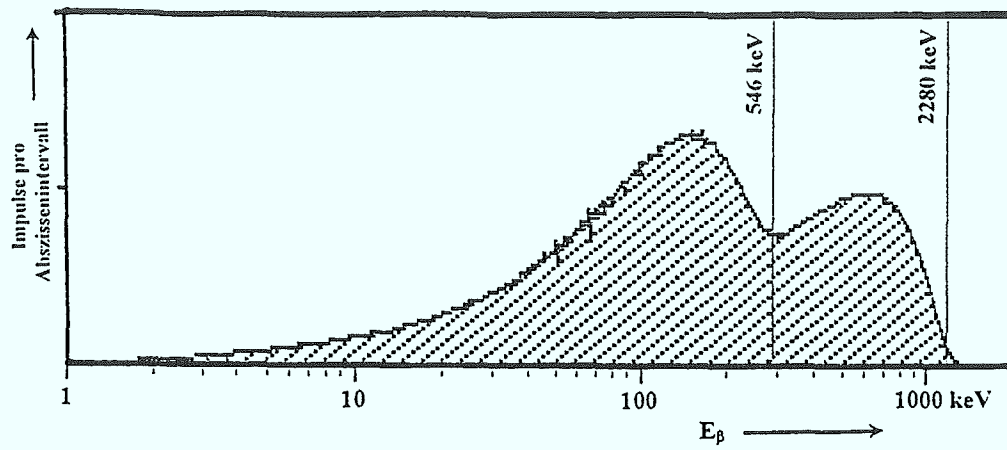


Fig. 3:
Spektrum des Sr-90/Y-90

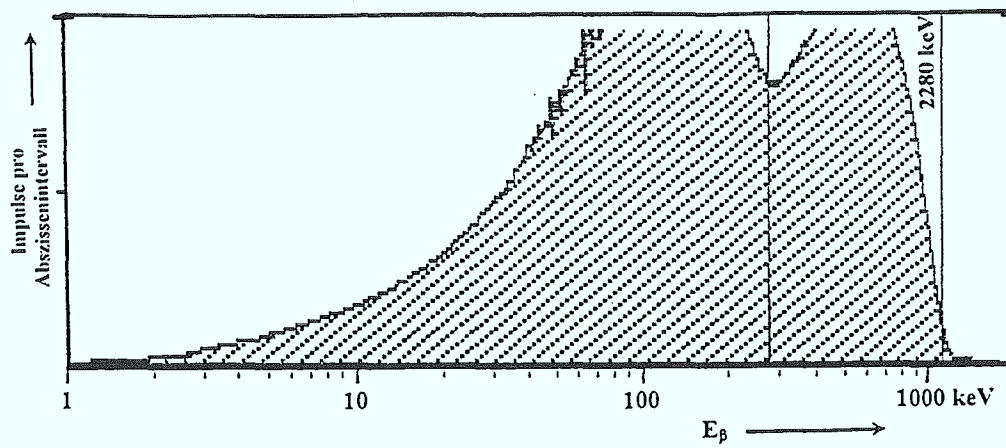


Fig. 4:
Spektrum des Sr-90/Y-90, etwas verstärkt

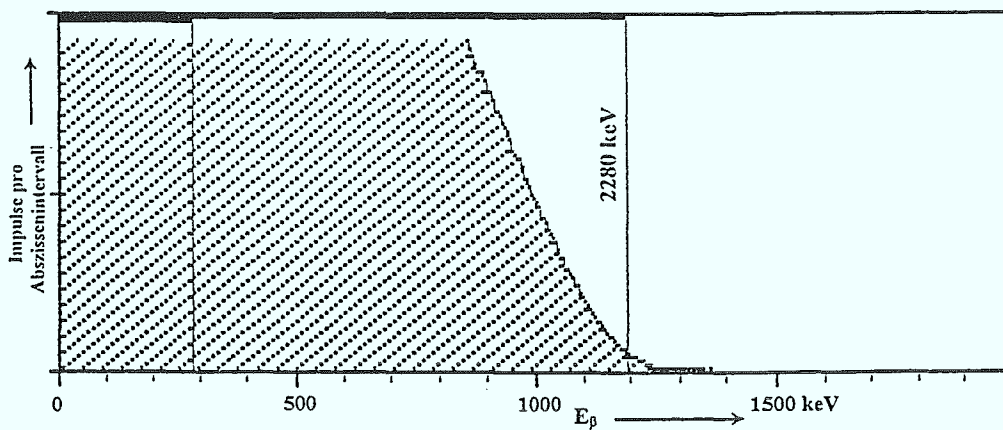


Fig. 5:
Spektrum des Sr/Y-90 in der linearen Darstellung

Die Grenzenergie des Sr-90-Spektrums (kleiner als Y-90) liegt, wie gut zu erkennen ist, im "Sattel" des Doppelspektrums. Sie ist bei den Doppelspektren der Punkt, wo das Sr-90-Spektrum auf dem Y-90-Spektrum "aufsitzt". Mit dem Setzen der beiden Grenzenergien im gemessenen Spektrum ist Sr-90/Y-90 eindeutig identifiziert, nachdem über die tSIE-Messung der Verschiebungsfaktor δ bestimmt ist.

Als Doppelspektrum stellt sich auch Cs-137 dar (Fig. 6). Hier sitzt die Grenzenergie des Cs-137 ebenfalls im "Sattel" zwischen Cs-137 und dem kleinen Peak. Dies ist aber kein β -Spektrum, sondern das Konversionselektron vom Ba-137m. Darauf deutet die Steilheit der Flanken bei dem kleinen Peak hin.

Es muß gelten: gemessene Maximal- oder Grenzenergie auf der Skala für ungequenchte Proben multipliziert mit dem Verschiebungsfaktor δ = tatsächliche β -Energie (Literaturwert). Nachdem die Grenzenergien bestimmt sind, ist eine Verwechslung mit anderen Mutter-Tochter-Nukliden fast ausgeschlossen, z. B. mit Ce-144/Pr-144, welches zwar ein ähnliches Spektrum zeigt, aber andere Energien besitzt. Zur Identifikation nach den beobachteten β -Energien sind in Tabelle II die gängigen Abfallnuklide mit Halbwertszeiten größer 100 Tage zusammengestellt, geordnet nach steigenden β -Energien. Die gefundenen β -Energien können anhand dieser Tabelle zugeordnet werden. Bei der Zuordnung sind weitere Informationen z.B. aus der γ -Spektrometrie nützlich.

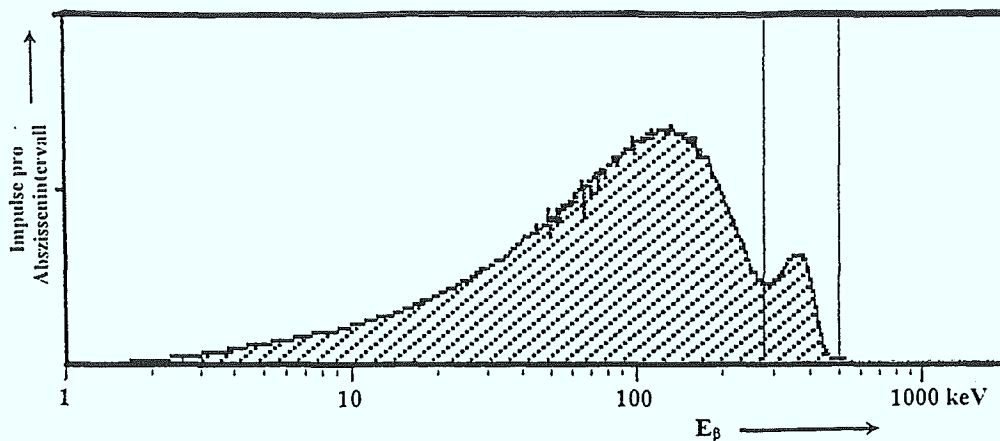


Fig. 6:
Spektrum des Cäsium-137

Beispiele von überlagerten Spektren und Identifikation der β -Spektren.

1. Beispiel:

Fig. 7 zeigt ein erstes Beispiel für ein überlagertes β -Spektrum und die Identifikation der zugrundeliegenden Nuklide.

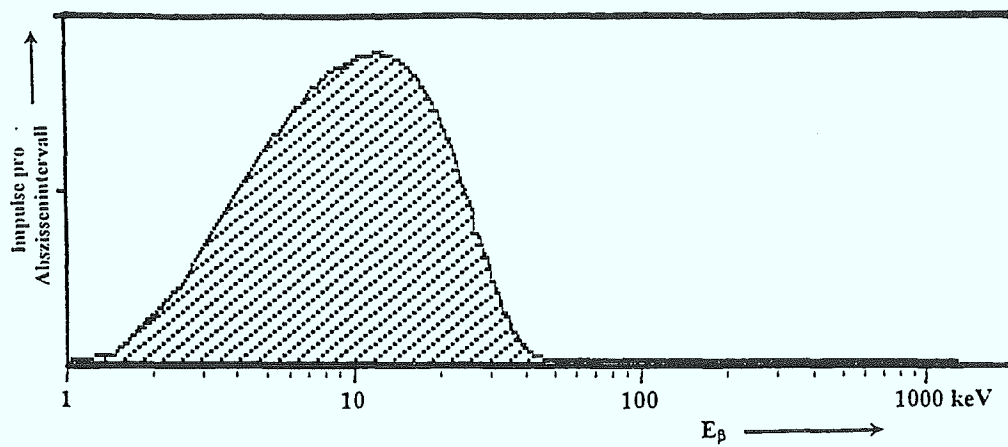


Fig. 7:
Spektrum mit unbekannten Nukliden

Man erkennt zunächst ein Hauptnuklid mit einer Grenzenergie auf der ungequenchten Skala von ca. 50 keV. Bei Verstärkung der Ordinate erscheinen weitere Nuklide im Bereich bis ca. 1500 keV und werden in Form eines Doppelspektrums sichtbar.

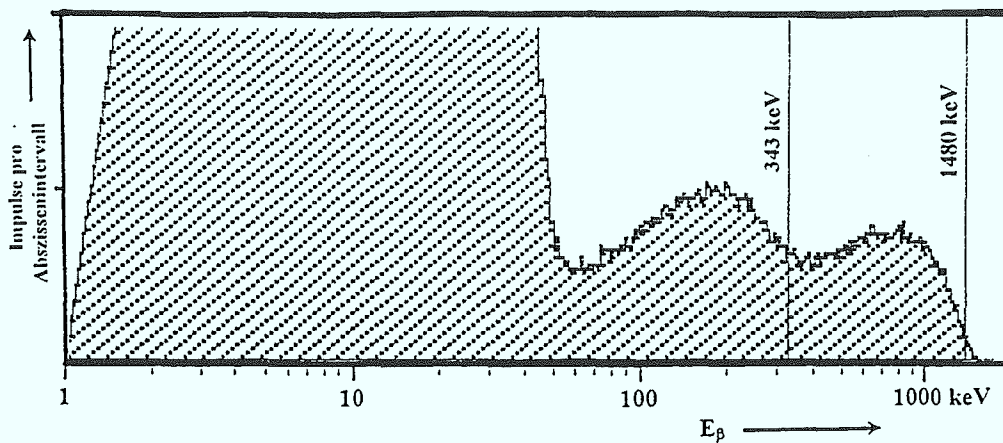


Fig. 8:
Unbekanntes Nuklidspektrum, etwas verstärkt

Die Endenergie auf der ungequenchten Skala beträgt ca. 1450 keV, der tSIE-Wert der Probe 543. Nach Tabelle I erhält man für den tSIE-Wert 543 einen Verschiebungsfaktor $\delta = 1.59$, mit dem man die Energie auf der gemessenen Skala multiplizieren muß. Dies ergibt eine ungefähre Endenergie des β -Spektrums für das Nuklid von 2306 keV.

Mit diesen Energien geht man in Tabelle II.

Anhand dieser Tabelle kämen zunächst 3 Nuklide in Frage:

- a) Bi-212
- b) Y-90 und
- c) Pa-234m.

Bi-212 scheidet aus, da der α -Peak des Tochternuklides Po-212 nicht zu erkennen ist. Danach bleiben noch Y-90 und Pa-234m. Das Mutternuklid des Y-90 ist das Sr-90 mit einer β -Energie von 546 keV. Dividiert man diese Energie durch 1.59 (aufgrund des gemessenen tSIE-Wertes), so erhält man 343 keV als zu messende Energie auf der ungequenchten Energieskala. Diese Grenzenergie sitzt im Sattel, am "Aufsetzpunkt" des vorderen Teilspektrums. Damit ist das mittlere Spektrum der Abb. 8 als Sr-90 identifiziert. Es liegt insgesamt Sr-90/Y-90 vor, (vergl. Spektrum in Anhang IV).

Für das erste Teilspektrum unter 50 keV erhält man durch Anlegen einer Tangente an den Kurvenzug gemäß Fig. 9 eine Energie von 42 keV auf der ungequenchten Energieskala.

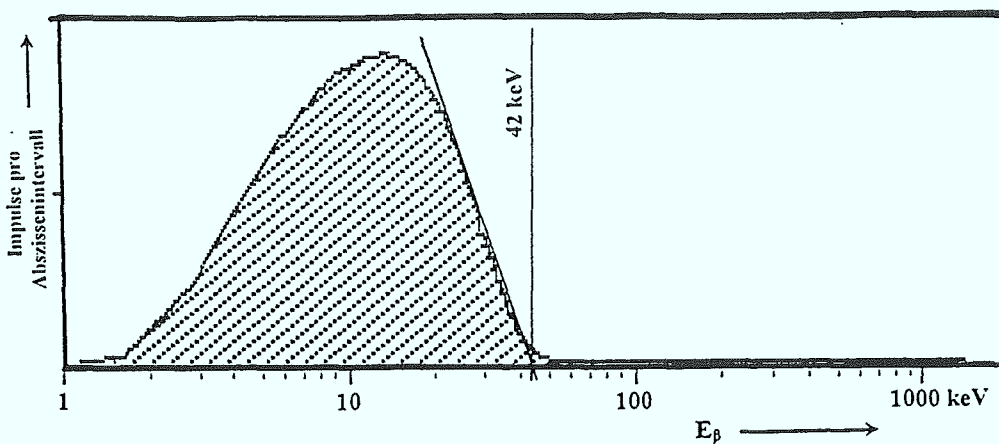


Fig. 9: Unbekanntes Nuklidspektrum mit angelegter Tangente

Die ermittelten 42 keV ergeben mit dem Verschiebungsfaktor 1.59 multipliziert 66.8 keV. Nach der Tabelle II liegt in diesem Bereich Ni-63 mit einer Energie von 65.8 keV.

Das unbekannte Spektrum ist also Ni-63 mit geringen Anteilen von Sr-90/Y-90.

2. Beispiel: Röntgenfluoreszenzspektren in LSC

Bei der Identifikation ist es wichtig, daß die Ergebnisse der β -Spektroskopie, soweit möglich, mit denen der γ -Spektroskopie verglichen und von ihr bestätigt werden. Bei der LSC-Spektroskopie sind die Nuklide Fe-55, Mn-54, Co-58 und Zn-65 nur schwer zu trennen und eindeutig zu bestimmen. Alle 4 Nuklide besitzen eine als Röntgenpeak zu bezeichnende Impulshöhenverteilung. Die K_{α} -Linien liegen bei 6 - 8.5 keV. Wegen der begrenzten Auflösung des LSC ergeben sich Spektren, die von β -Spektren der doppelten Grenzenergie kaum zu unterscheiden sind. Die Grenzenergien im LSC-Spektrum liegen danach bei ca. 12-17 keV. Mn-54, Co-58 und Zn-65 haben daneben aber auch γ -Linien, durch die eine Identifizierung möglich wird. Bei der LSC-Messung werden hingegen vorhandene e^{-} - und β^{+} -Anteile geringer Intensität bei Vorhandensein anderer, höherenergetischer Nuklide überdeckt. Die Fig. 10, 11 und 12 zeigen, wie schwer Fe-55 und Mn-54 bei Vorhandensein von anderen Nukliden ohne γ -Spektroskopie zu unterscheiden sind, da die niederenergetischen Verteilungen fast identisch sind. Nur Fe-55 besitzt keine weiteren höherenergetischen γ -Linien (die Röntgenenergie von 5.9 keV ist γ -spektrometrisch nur mit großem Aufwand nachweisbar).

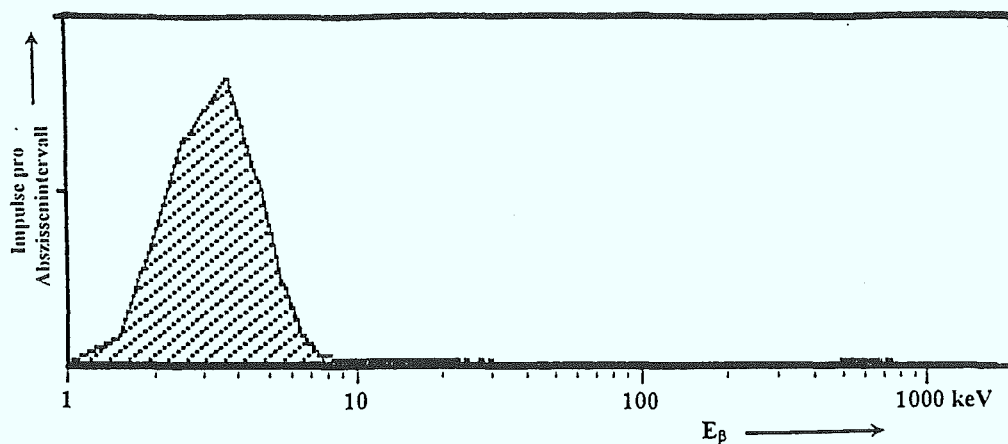


Fig. 10: Spektrum des Fe-55

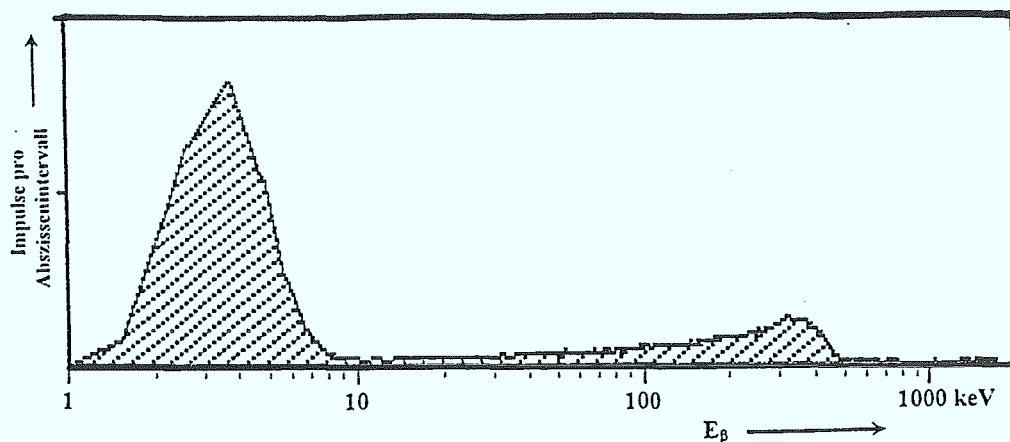


Fig. 11: Spektrum des Mn-54

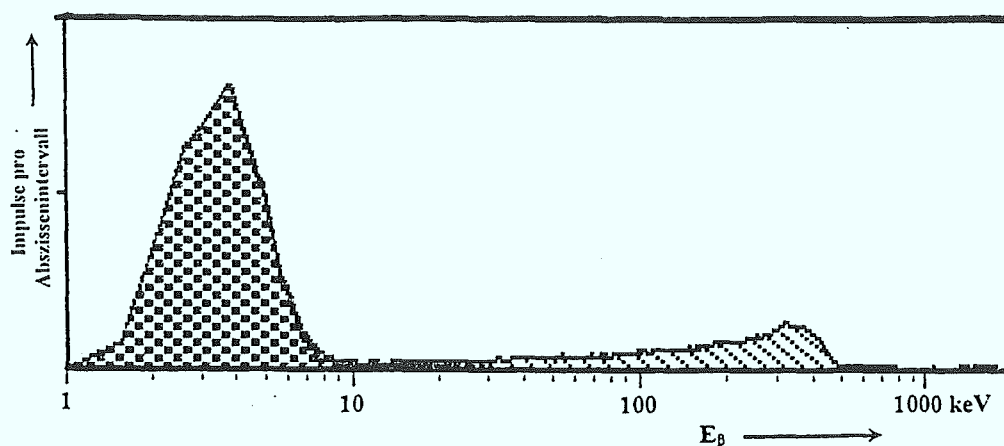


Fig. 12: Aufeinander abgestimmte und übereinandergelegte Spektren von Fe-55 und Mn-54

Der hochenergetische Teil des Mn-54- β -Spektrums ist durch weitere hochenergetische β -Strahler oft überdeckt.

Identifikation von Nukliden in überlagerten Spektren durch sukzessive Subtraktion der Spektren der identifizierten Anteile

In den meisten Abfällen aus Kernkraftwerken (LWR, DWR) dominieren Co-60 und Cs-137. Diese Nuklide sind γ -spektrometrisch z.B. beim Scannen der Abfallfässer gut zu detektieren. Die einschlägigen Verordnungen, z.B. Abfallrichtlinie /1/ und Endlagerungsbedingungen /2/, verlangen aber auch Angaben über reine β -Strahler wie Ni-63 und Sr-90. Aussagen dazu können nur aus dem β -Spektrum gewonnen werden. Die β -Spektroskopie einer gelösten oder suspendierten Bohrstaubprobe ist der einfachste Weg. Es werden ca. 50 mg Bohrstaub in 5 ml H_2O und 14 ml *InstantGel* suspendiert. Die Bohrstaubmenge sollte nicht überschritten werden, da sonst das Quenching zu hoch wird und im niederenergetischen Bereich nicht mehr viel zu erkennen ist. Bei dieser Präparationstechnik spielt die Löslichkeit keine Rolle. Wenn möglich wird man jedoch versuchen, die Probe z.B. in HNO_3 zu lösen und ein Aliquot der gegebenenfalls verdünnten Lösung ($HNO_3 < 5M$) mit der Szintillatorlösung *InstantGel* zu mischen.

Damit man in einem komplexen β -Spektrum, das durch die Überlagerung verschiedener Nuklide entstanden ist, auch die niederenergetischen Nuklide identifizieren kann, wurde von uns das Verfahren der sukzessiven Subtraktion der β -Spektren entwickelt. Dazu wird das Spektrum des jeweils höchstaktiven β -Strahlers aus einer Standardlösung aufgebaut und vom Originalspektrum subtrahiert. Diese Standardlösung wird durch Zugabe geeigneter Chemikalien auf den gleichen tSIE-Wert eingestellt, wie die Probelösung. Bei der weiteren Verarbeitung wird die bei den Packard-LSC-Spektrometern verfügbare Spectragraph-Software zur Subtraktion von Nuklidspektren benutzt. Die Verfahrensweise zeigt das folgende Beispiel.

3. Beispiel:

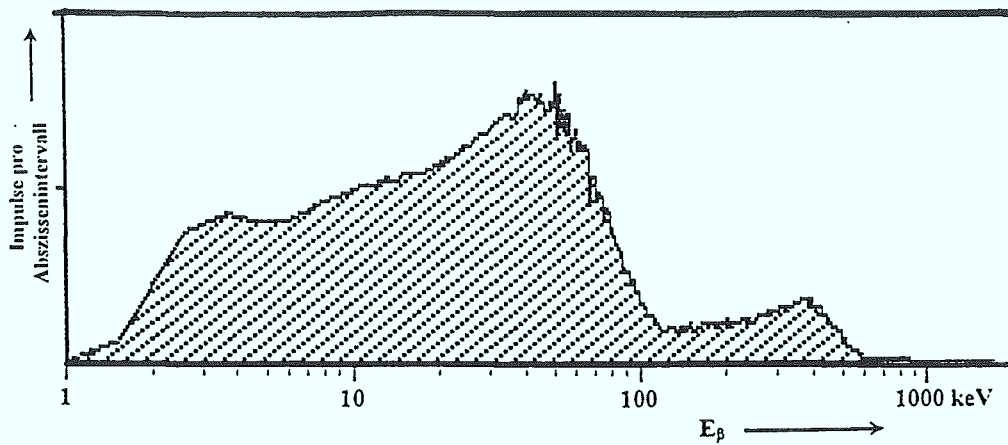


Fig. 13: Spektrum von gelöstem Bohrstaub,
entnommen aus einem zementierten Abfallfaß

Im Spektrum der Fig. 13 erkennt man deutlich Co-60 im hochenergetischen Spektralbereich. Maßgebend für diese Zuordnung ist die Grenzenenergie (Anhang II) und die Form im hochenergetischen Bereich. Aufgrund der Ausbuchtungen im Kurvenverlauf des β -Spektrums sind im niederenergetischen Bereich des Co-60- β -Spektrums weitere Nuklide zu erwarten. Durch Peak-Höhenvergleich wird die Aktivität des Co-60 ermittelt und danach mit Hilfe einer Standardlösung eine Referenzprobe hergestellt. Durch messen und pipettieren wird diese Probe in ihrer Aktivität und dem tSIE-Wert auf das Originalspektrum abgestimmt. Größere Quenchkorrekturen erfolgen durch Zugabe von HNO_3 , kleinere durch Zugabe von Wasser. Der tSIE-Wert der Standardprobe sollte nicht mehr als 4-5 Punkte vom Originalwert abweichen, damit bei der Subtraktion keine Geisterspektren entstehen. Dann wird die Referenzprobe die gleiche Zeit wie die Originalprobe gemessen, abgespeichert und beide Spektren übereinandergelegt, Fig. 14.

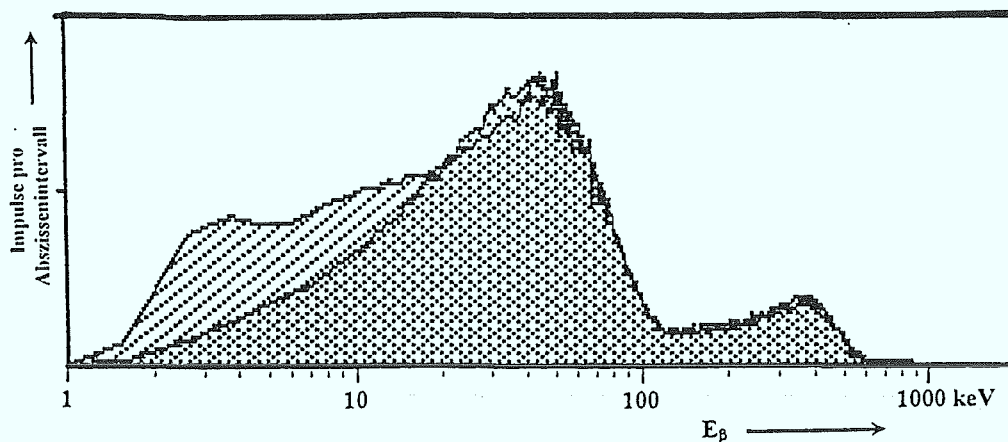


Fig. 14: Originalspektrum mit aufgelegtem Co-60-Referenzspektrum

Wenn die Spektren im hochenergetischen Bereich gut übereinstimmen (Übereinstimmung des Kurvenverlaufs), wird das Referenzspektrum vom Originalspektrum subtrahiert. Das Differenzspektrum wird dann abgespeichert, wieder aufgerufen und gemäß Fig. 15 ausgedruckt.

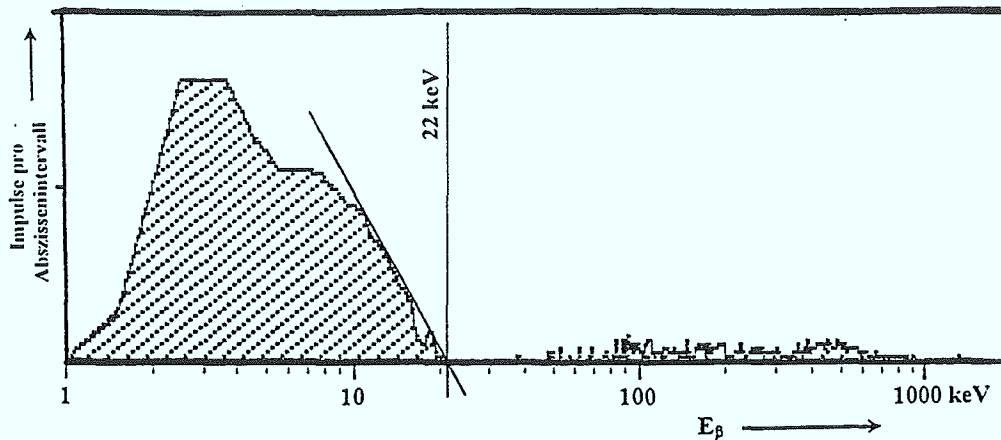


Fig. 15: Aufgerufenes Differenzspektrum

Jetzt wird an dem Differenzspektrum in gleicher Weise wie bei einem Originalspektrum die Tangente zur Ermittlung der β -Energie angelegt. In unserem Beispiel sind es 22 keV. Der tSIE-Wert beträgt 281 und ergibt nach der Tabelle I einen δ -Wert von 2.45. Multipliziert man die 22 keV der ungequenchten Skala mit 2.45, so erhält man 53.9 keV.

Nach der Nuklidtablelle II kommen in Frage:

- a) Zr-93
- b) Pb-210 und
- c) Ni-63.

Pb-210 scheidet aus, da seine γ -Linien nicht nachzuweisen sind. Zr-93 scheidet aus, weil es kein spezifischer Begleiter des Co-60 ist und das fragliche Nuklid nicht das Extraktionsverhalten des Zr (Extraktion mit TOPO) zeigt. Danach bleibt nur Ni-63. Ni-63 ist ein typischer Begleiter des Co-60. Mittels einer Ni-63-Standard-Lösung wurde wieder eine Referenzprobe hergestellt und genauso verfahren, wie vorher beim Co-60. Allerdings ist es notwendig, kurze Zwischenmessungen vorzunehmen, damit die Kurvenzüge deckungsgleich sind, wie es beim Spektrum Fig. 16 zu sehen ist. Allgemein ist die Statistik nach mehreren Subtraktionen schlechter.

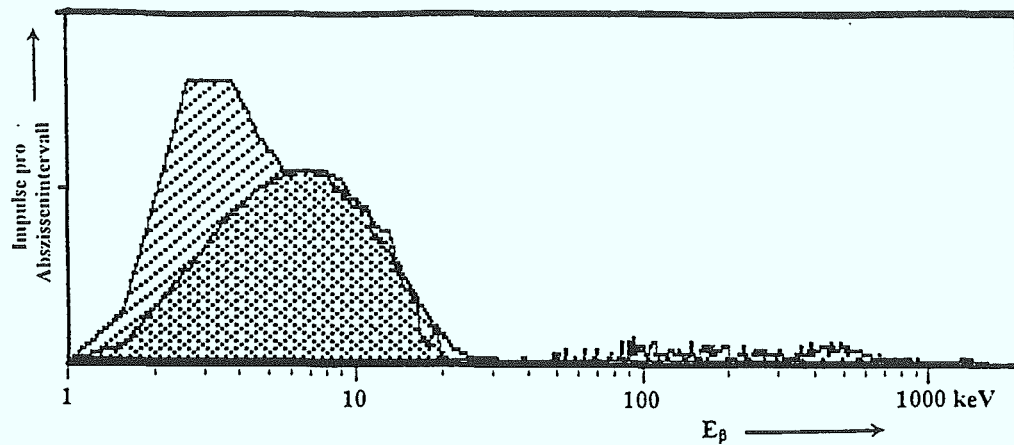


Fig. 16: Differenzspektrum mit aufgelegtem Ni-63-Spektrum

Nach der Subtraktion des Nickel-63 verbleibt ein monoenergetischer Peak als Restspektrum., Fig. 17.

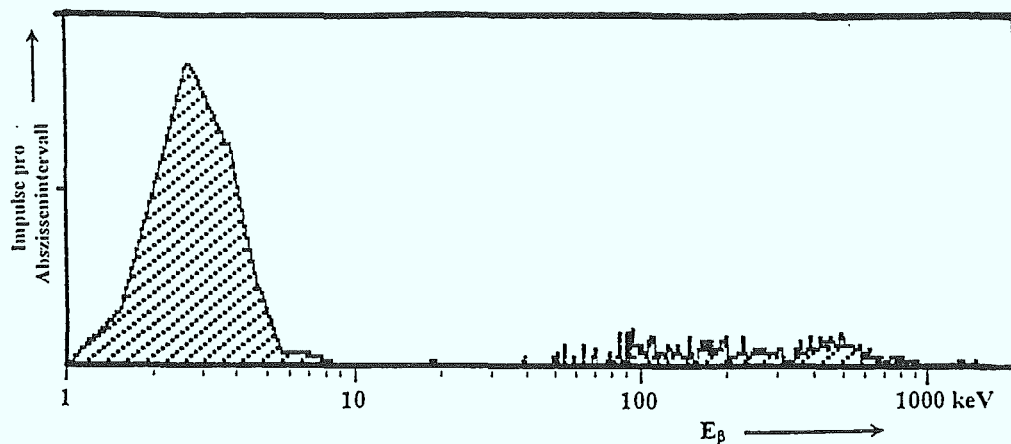


Fig. 17: Restspektrum

Aufgrund der Grenzenergie können 6 Nuklide ein derartiges Spektrum erzeugen:

- a) Fe-55 (K_{α})
- b) Mn-54 (K_{α})
- c) Zn-65 und (K_{α})
- d) Co-58. (K_{α})
- e) H-3 (β^-)
- f) Pu-241 (β^-)

Mn-54, Zn-65, Co-58 scheiden wegen des fehlenden γ -Spektrums aus; Pu-241 wegen des Extraktionsverhaltens mit TOPO und H-3 wegen der nicht vorhandenen Feuchtigkeit. Danach handelt es sich um Fe-55. Fe-55 kann ebenso wie Co-60 und Ni-63 mit einer Standardlösung abgezogen und dadurch quantitativ bestimmt werden.

Man kann dieses Restspektrum aber auch anhand der Tabellen in Anhang III direkt aus der gemessenen integralen Zählrate auswerten.

Beispiel 4:

Spektrum eines Verdampferkonzentrats

Bei dem nächsten Spektrum Fig. 18 handelt es sich um ein Dünnschichtverdampferkonzentrat aus einem Kernkraftwerk. Der gemessene tSIE-Wert betrug 422. Dies entspricht einer Energieverschiebung δ von 1.9.

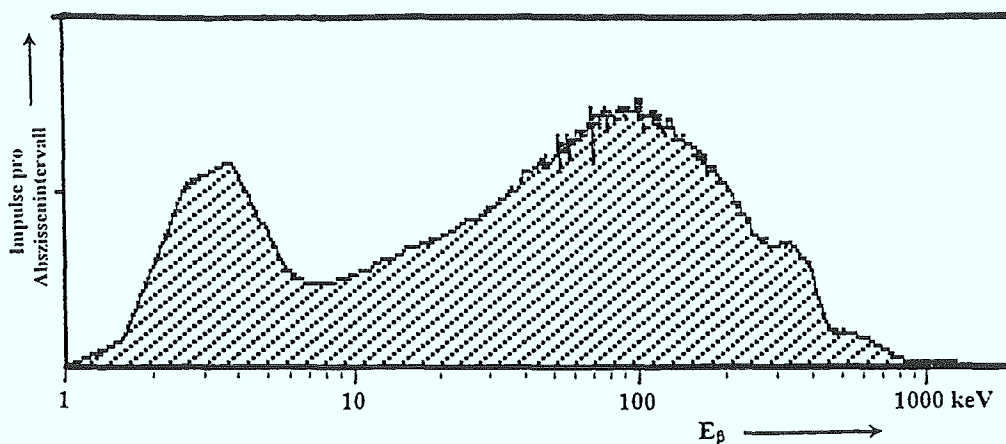


Fig. 18: Spektrum des Dünnschichtverdampferkonzentrates

Durch Veränderung der Ordinatenenteilung wurde das Spektrum verstärkt, Fig. 19.

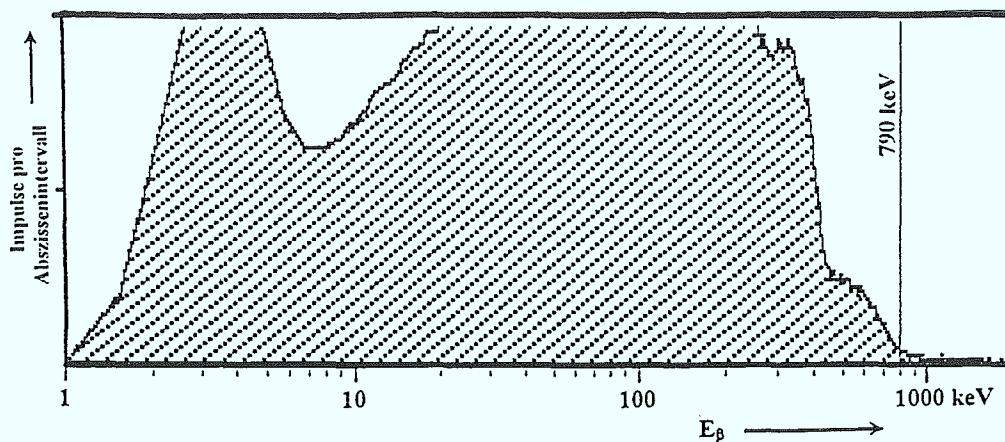


Fig. 19: Verstärktes Spektrum

Setzt man die Grenzenenergie in die Mitte des Auslaufradius, ermittelt man eine Energie von etwa 790 keV. Multipliziert mit 1.90 ergibt dies eine Endenergie von 1482 keV, die mit der Energie des Co-60 mit 1480 keV gut übereinstimmt.

Erste Spektrensubtraktion:

Zunächst wurde eine dem Spektrum entsprechende Co-60-Referenzprobe hergestellt, dem Spektrum angeglichen, gemessen und beide Spektren übereinandergelegt, Fig. 20.

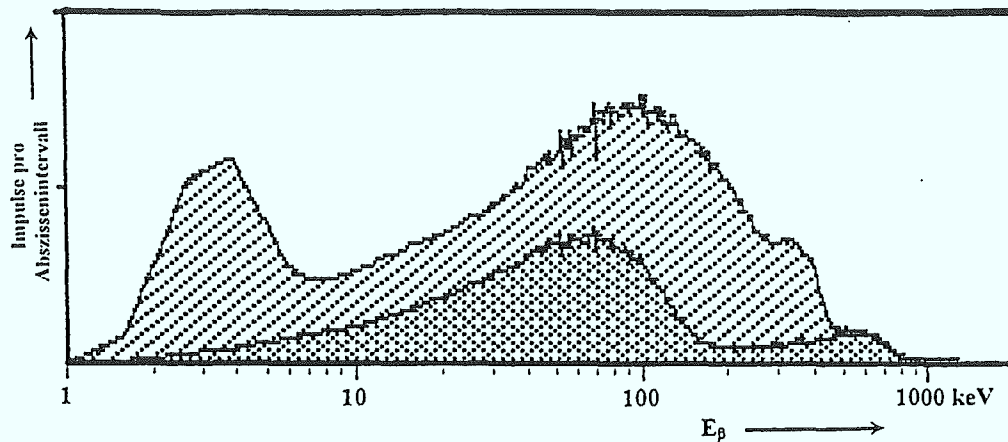


Fig. 20: Spektrum des Verdampferkonzentrates
mit aufgelegtem Co-60-Spektrum

Nach der ersten Subtraktion zeigte sich das Differenzspektrum Fig. 21.

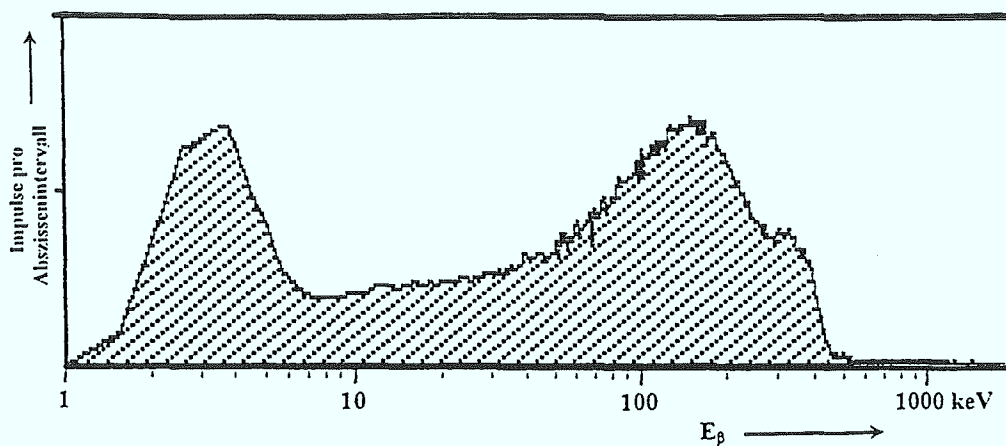


Fig. 21: Erstes Differenzspektrum

Zweite Subtraktion

Der Verlauf im hochenergetischen Spektralbereich erinnert an Cs-137 (Anhang IV). Dies wurde durch die Lage der Grenzenenergien und durch die γ -Spektroskopie bestätigt. Die Präparation einer Cs-137-Referenzprobe, Abstimmen auf das Differenzspektrum, Messen und Übereinanderlegen der Spektren, Fig. 22, waren die nächsten Arbeitsschritte.

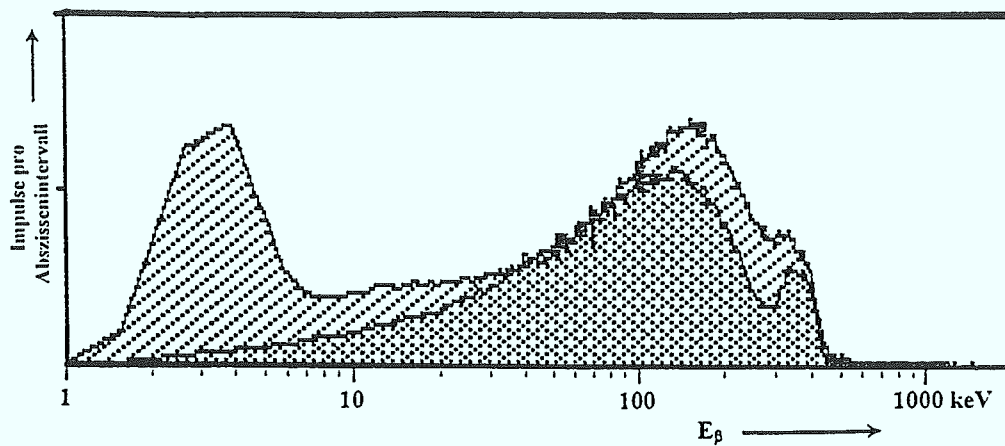


Fig. 22: Erstes Differenzspektrum mit aufgelegtem Cs-137

Nach der Subtraktion zeigte sich das Differenzspektrum Fig. 23

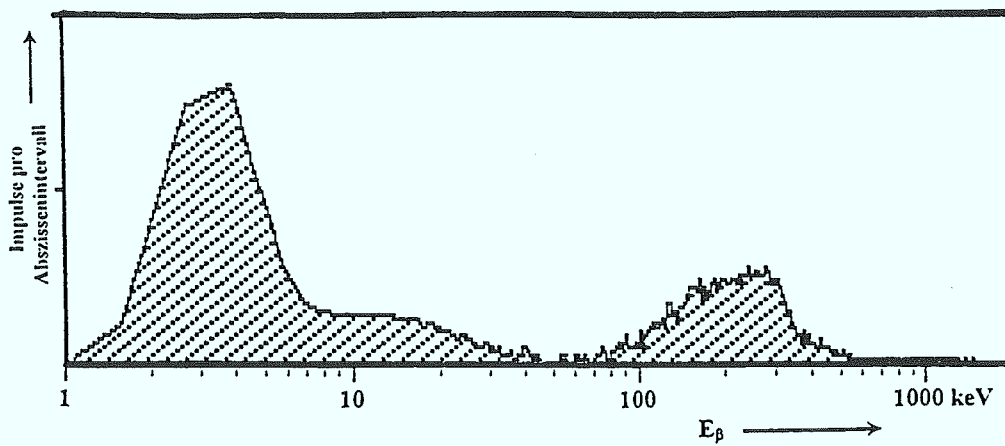


Fig. 23: Zweites Differenzspektrum

Verstärkt man das Differenzspektrum Fig. 23 etwas und setzt die Grenzenenergie an den Endpunkt des mittlereenergetischen β -Teilspektrums, so erhält man 35 keV, Fig. 24.

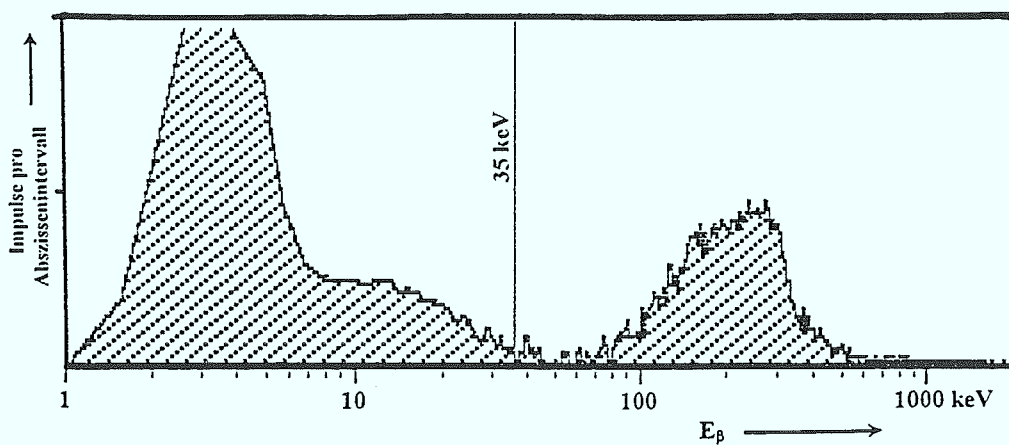


Fig. 24: Verstärktes zweites Differenzspektrum mit gesetzter Grenzenenergie

Multipliziert mit dem Verschiebungsfaktor $\delta = 1.9$ erhält man 66.5 keV. Nach der Tabelle II liegt in diesem Energiebereich Ni-63. Ni-63 ist mit Co-60 vergesellschaftet. Präparation einer Ni-63-Probe, Messen und Übereinanderlegen der Spektren sind die nächsten Schritte, die zu Fig. 25 bzw. Fig. 26 führen.

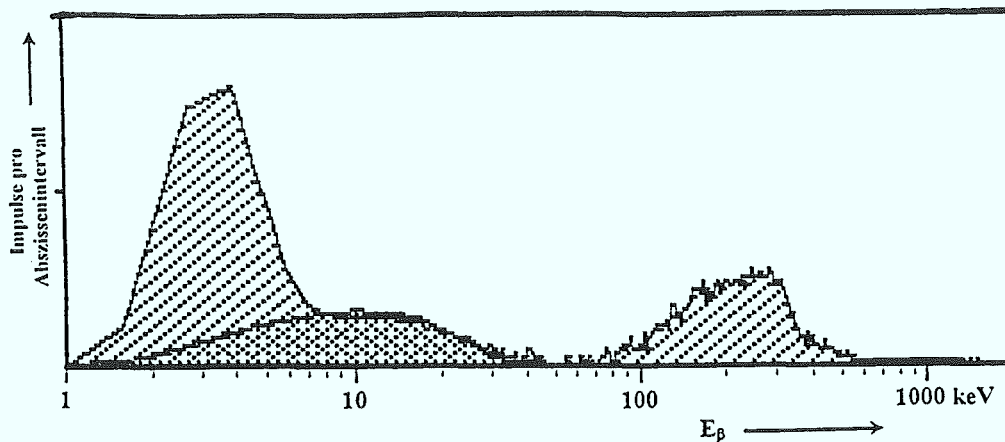


Fig. 25: Zweites Differenzspektrum Fig. 23 mit Ni-63

Nach der Subtraktion erhielt man das Spektrum Fig. 26.

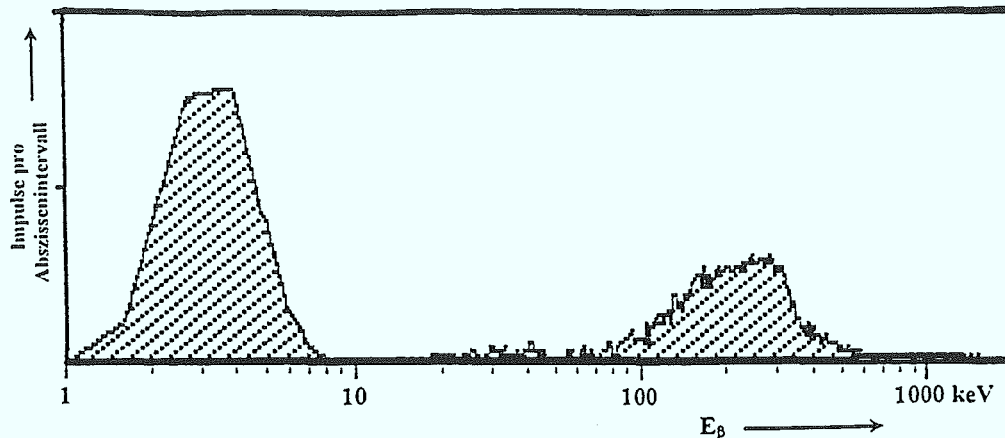


Fig. 26: Restspektrum = Drittes Differenzspektrum

Als Rest blieb ein niederenergetisches β -oder Röntgen-Spektrum mit einem hochenergetischen Rest. Der niederenergetische Teil könnte das Roentgen-K-Spektrum von Fe-55, Co-58 oder Ni-63 (Vergl. Spektren Anhang IV) sein. Aufgrund des γ -Spektrums muß Co-58 vorhanden sein, das auch einen hochenergetischen Teil im LSC-Spektrum hat. Durch die vielen Subtraktionen ist das Spektrum etwas entstellt. Als Vergleich folgt das Spektrum einer Standardlösung von Co-58, Fig. 27.

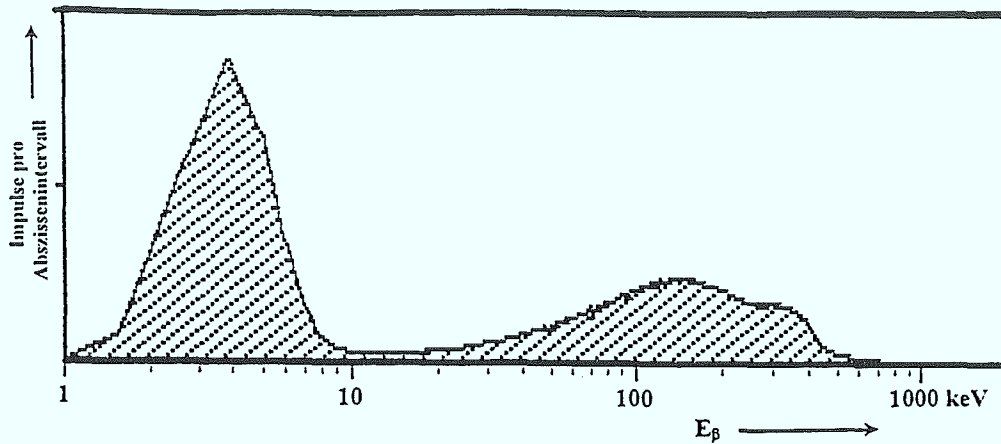


Fig. 27: Spektrum des Co-58

Durch mehrfache Subtraktionen von β -Spektren konnten also in der Probe mit hoher Wahrscheinlichkeit nachgewiesen werden:

- Co-60
- Cs-137
- Ni-63
- Co-58.

Durch die Subtraktionen verschlechtert sich die Statistik und damit zunehmend die Sicherheit der Zuordnung. Sie ist für Co-60 und Cs-137 am höchsten. Im letzten Differenzspektrum können auch weitere Anteile wie beispielsweise Fe-55 enthalten sein.

5. Beispiel:

Wischtest einer Targetkammer

Das nächste Beispiel soll nicht als Standardbestimmung angesehen werden. Es soll vielmehr zeigen, welche Fehlermöglichkeiten sich bei Subtraktionen ergeben können, wenn die bestimmten Nuklide nicht als Standardlösung vorhanden sind.

Bei der Probe handelte es sich um Papierstücke der Wischtestprobe von einer Targetkammer. Solche Papierstücke können im LSC gemessen werden, sofern das Papier nicht zu dunkel ist.

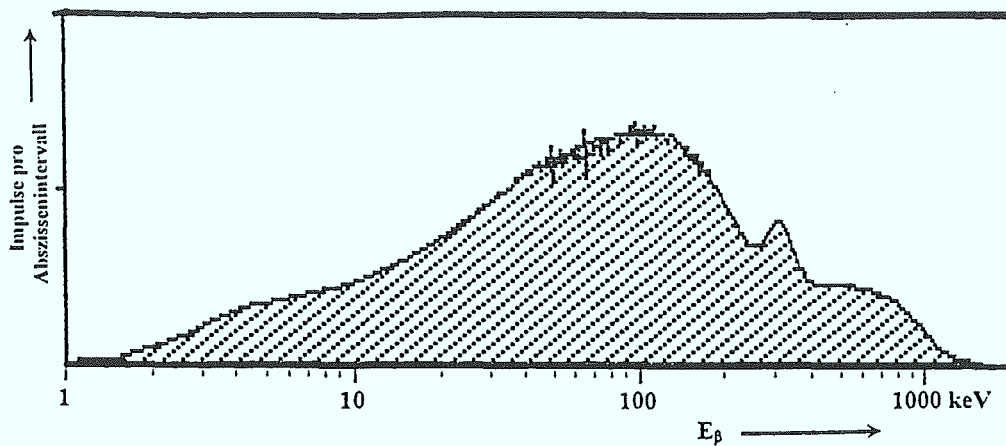


Fig. 28: Spektrum der Wischtestprobe

Um die Endenergie zu bestimmen, wurde die Ordinatenenteilung so verändert, daß der Auslaufradius gut sichtbar wurde. Durch die Mitte desselben wurde die Grenzenergie gelegt und damit die β -Energie bestimmt, Fig. 29.

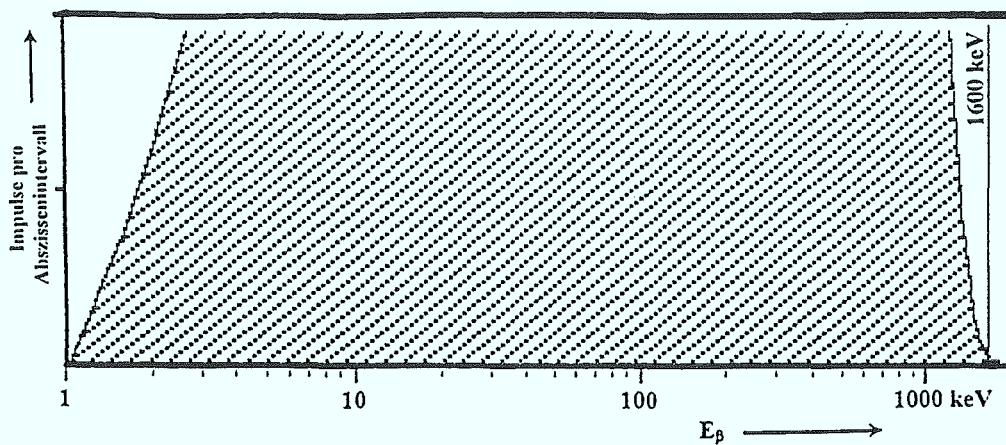


Fig. 29: Verstärktes Spektrum zur Bestimmung der Endenergie

Der tSIE-Wert betrug 419, entsprechend einer Energieverschiebung um den Faktor 1.91. Multipliziert man die ermittelten 1600 keV mit 1.91, so erhält man die wahre β -Endenergie von 3056 keV. Am nächsten liegt nach Tabelle II Pr-144 mit 2996 keV und dem Mutternuklid Ce-144. In den Experimenten war häufig mit diesen Nukliden gearbeitet worden, was die Messung bestätigte. Der weitere Gang der Interpretation des Spektrums war dadurch behindert, daß das für die Subtraktion benötigte Ce-144/Pr-144 als Standard nicht vorhanden und auch nicht schnell zu beschaffen war. Der folgende Versuch einer Subtraktion des ähnlichen Spektrums von Sr-90/Y-90 ist als Verlegenheitslösung zu werten und die Ergebnisse sind dementsprechend unsicher.

Es wurde eine Probe hergestellt mit den gleichen Peakhöhen von Pr-144 und Y-90, die mit Hilfe von HNO_3 so gequench war, daß die Endenergien scheinbar gleich waren.

Nach dem Messen der Probe wurden beide Spektren übereinandergelegt.
Das Differenzspektrum kann wegen der Subtraktion von verschiedenen Spektren
Geisterstrukturen enthalten.

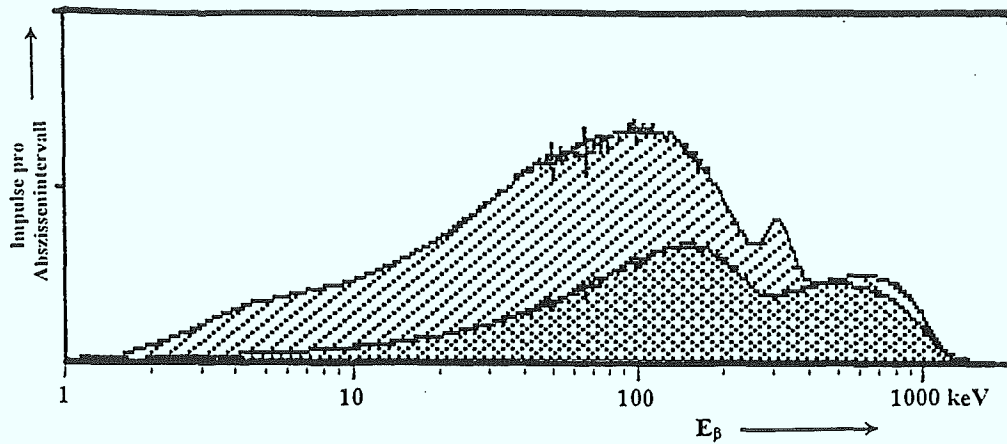


Fig. 30: Originalspektrum mit aufgelegtem Sr-90/Y-90-Spektrum

Nach erfolgter Subtraktion wurde das Differenzspektrum der Fig. 31 erhalten, das dem des Cs-137 sehr ähnlich war.

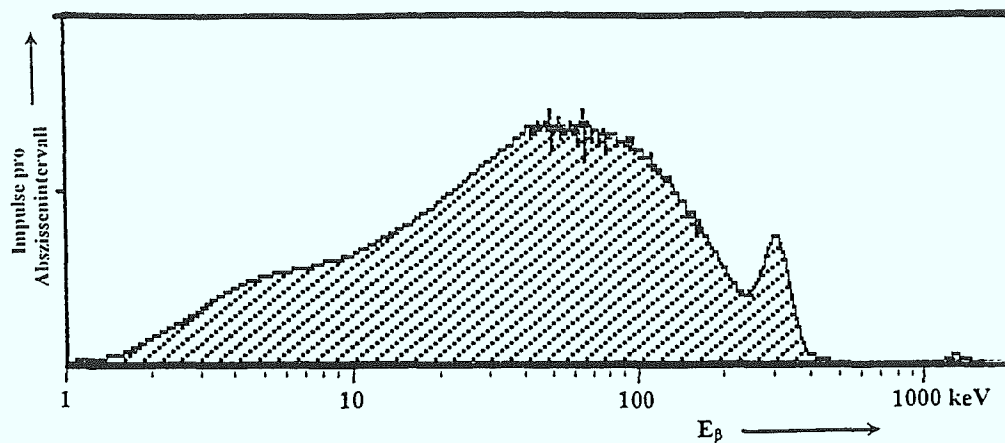


Fig. 31 Differenzspektrum

Nun wurde eine Cs-137-Referenzprobe so präpariert, daß die kleinen Peaks der Konversionselektronen deckungsgleich waren, Fig. 32 (vergl. Spektrum Anhang IV).

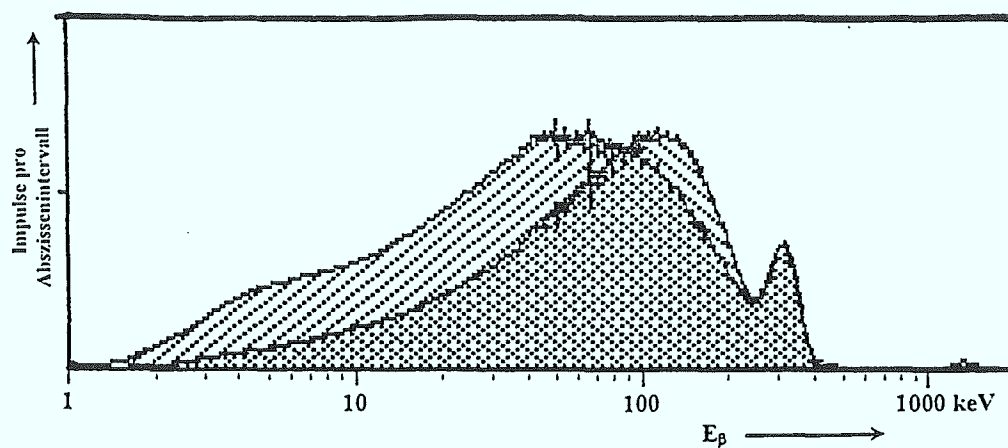


Fig. 32: Differenzspektrum mit aufgelegtem Cs-137-Spektrum

Die 514-keV-Flanken stimmen nicht überein. Die Aktivität der Referenzprobe ist damit zu hoch und wurde so verringert, bis beide Flanken deckungsgleich waren, Fig. 33.

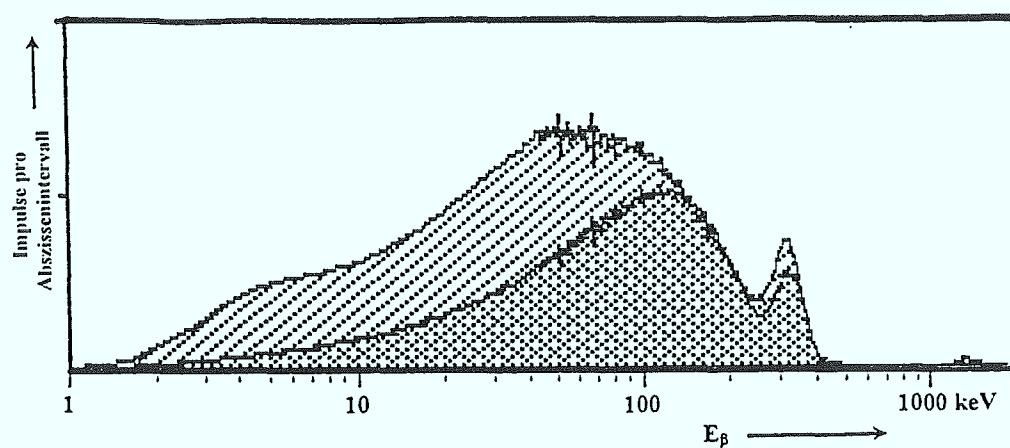


Fig. 33: Differenzspektrum mit verringerter Cs-137-Aktivität

Nach erfolgter Subtraktion wurde das abgespeicherte Differenzspektrum Fig. 34 aufgerufen.

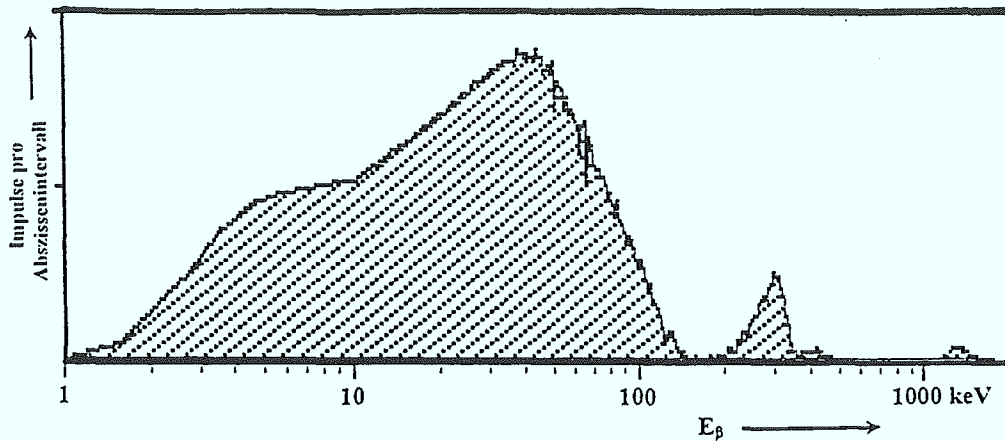


Fig. 34: Aufgerufenes Differenzspektrum

Das abgespeicherte und aufgerufene Differenzspektrum zeigte nun einen Peak, der dem eines verzogenen α -Peak ähnlich war aber auch eine durch die Subtraktion bedingte Geisterstruktur sein kann. Damit war die Frage nach dem Vorhandensein von α -Strahlern nicht mehr auszuschließen.

Zur Identifikation des Hauptnuklides im Differenzspektrum wurde die Tangente an die Flanke des Hauptnuklides gelegt, diese zum Schnittpunkt mit der keV-Skala gebracht und durch diesen die Grenzenergie gesetzt, Fig. 35.

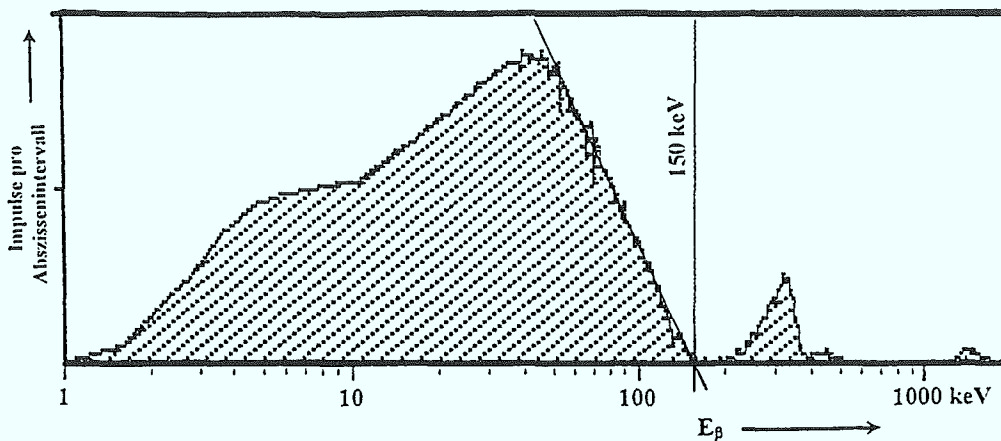


Fig. 35 Differenzspektrum mit angelegter Tangente

Multipliziert man die ermittelten 150 keV mit dem Verschiebungsfaktor 1.91, ergibt sich eine Endenergie von 286.5 keV. Nach unserer Nuklidtablelle kam Tc-99 mit einer Energie von 292 keV in Frage. Diese Möglichkeit wurde vom Experimentator bestätigt.

Diese Spektrenanalyse enthält viele Unsicherheiten, die hauptsächlich daraus resultieren, daß schon bei der ersten Subtraktion nicht das richtige Nuklid abgezogen wurde und in den Differenzspektren Strukturen entstehen, die im Originalspektrum nicht zu erkennen sind. Insbesondere die Frage nach dem Vorhandensein von α -Strahlern wäre mit neueren LSC-Geräten mit Pulsformdiskriminierung zur Unterscheidung von α - und β -Teilchen einfacher zu entscheiden gewesen.

Die Efficiency bei der Messung verschiedener Nuklide im LSC

Die Efficiency ε = Zählrate/ β -Zerfallsrate ist bei der Messung von Zerfällen mit dem LSC abhängig vom Zerfallsschema des Nuklides, von der Grenzenenergie des β -Spektrums und vom Quenchgrad (gekennzeichnet durch den tSIE-Wert). Es zeigt sich, daß Nuklide mit reinem β -Zerfall und einer Energie > 450 keV, die nicht ungewöhnlich stark gequenchet sind, mit einer Efficiency von 100 % gemessen werden (4π Geometrie im LSC-Fläschchen). Bei Nukliden mit niedriger Energie ist die Efficiency geringer, weil die im Bereich der Energie 0 unterdrückten Impulse einen größeren Anteil ausmachen. Man kann ε mit der klassischen Methode der internen Standardisierung bestimmen. Dazu gibt man eine definierte Aktivität (Standardlösung) des zu bestimmenden Nuklides in die Probe und mißt die Zunahme der Zählrate der Probe. Der Quotient aus Zählratenzunahme und Zerfallsrate des zugegebenen Standards ist die Efficiency ε der Probe für das zugegebene Nuklid beim gegebenen Quenchgrad.

Es ist zu beachten, daß wichtige Nuklide Zerfallsketten angehören, insbesondere Sr-90/Y-90 mit $\varepsilon \approx 2$, wenn nur das Sr-90 angegeben ist und Cs-137/Ba-137m mit $\varepsilon = 1.14$ (teilweise Absorption des Ba-137m γ -Quants in der Lösung). Deshalb können auch ε -Werte > 1 vorkommen.

Aus der Zählrate einer LSC-Messung kann die Aktivität nur dann genau bestimmt werden, nachdem die Nuklide bestimmt sind, die das Spektrum aufbauen. Die möglichen ε -Werte liegen jedoch in einem engen Band um $\varepsilon = 1$. Das gilt auch für Sr-90/Y-90, wenn beide Nuklide deklariert sind, was aber weitgehend nicht üblich ist. Sofern nicht Sr-90/Y-90 oder Fe-55 im Spektrum dominieren, ist es oft ausreichend, aus der Zählrate Z des Spektrums mit $\varepsilon = 1$ die Aktivität zu berechnen.

Bei den *Tri-Carb*-Spektrometern von Packard besteht die Möglichkeit, für ein einziges Nuklid eine Quenchkurve aufzunehmen, die im Spektrometer abgespeichert wird und die Efficiency zur Verfügung stellt. Während der Messung kann das Gerät auf diese Kurve zurückgreifen und korrigiert damit die gemessene Aktivität. Bei einer Vielzahl von Nukliden im unteren Energiebereich ist dieses Verfahren nicht anwendbar. Daher wurde von den in Abfallproben wichtigen Nukliden mit β -Energien bis 300 keV Quenchkurven einzeln aufgenommen und in Efficiency-Tabellen in Abhängigkeit vom tSIE-Wert umgesetzt. Diese Tabellen finden sich im Anhang III. Sie geben in Abhängigkeit von tSIE-Wert an, durch welchem ε -Wert die gemessene Zählrate zu teilen ist, um die Aktivität der Probe zu erhalten.

Literaturhinweise:

- /1/ Richtlinie zur Kontrolle radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung, die nicht an eine Landessammelstelle abgeliefert werden.
BMU, 16.01.1989,
ergänzt 26.06.1989
Bundesanzeiger Jahrgang 41 (1989)

- /2/ Kugel, K., Noack, W., Bard, C., Giller, H., Martens, B.-R., Brennecke, P.
Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle und Maßnahmen zur Produktkontrolle radioaktiver Abfälle
Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM)
BfS-ET-14/92-REV-2
Salzgitter, September 1993

- /3/ Seelmann-Eggebert, W., Pfennig, G., Münzel, H., Klewe-Nebenius, H.,
Karlsruher Nuklidkarte
Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
5. Auflage 1981

- /4/ Lederer, C.M., Hollander, J.M., Perlman I.,
Table of Isotopes
University of California, Berkeley
Sixth Edition

- /5/ Lederer, C.M., Shirley, V.S., Browne, E., Diariiki, J.M., Doebler, R.E.
Table of Isotopes
University of California, Berkeley
Seventh Edition

- /6/ Packard Instrument Co.
Liquid Scintillation Analyzers
Models 2200 CA and 2250 CA
Operation Manual
Publication No. 169-3094, Rev.A

- /7/ Weise, H.-J.
Massenenergieabsorptionskoeffizienten im Bereich von 15 keV bis 3.5 MeV
und Dosisleistungsaufbaukoeffizienten A1, -a1 und a2 im Bereich von
0.28 keV bis 3.5 MeV für Beton.
Jül-Spez-436, März 1988

Anhang I

**Energieverschiebungsfaktor δ
in Abhängigkeit vom tSIE - Wert**

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
34	4.97
35	4.97
36	4.95
37	4.94
38	4.92
39	4.90
40	4.87
41	4.85
42	4.82
43	4.80
44	4.77
45	4.74
46	4.72
47	4.69
48	4.67
49	4.65
50	4.63
51	4.60
52	4.58
53	4.56
54	4.54
55	4.53
56	4.51
57	4.49
58	4.47
59	4.46
60	4.44
61	4.43
62	4.41
63	4.40
64	4.38
65	4.37
66	4.35
67	4.34
68	4.32
69	4.31
70	4.29

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
71	4.28
72	4.26
73	4.25
74	4.23
75	4.22
76	4.20
77	4.19
78	4.17
79	4.16
80	4.14
81	4.13
82	4.11
83	4.10
84	4.08
85	4.07
86	4.05
87	4.04
88	4.02
89	4.01
90	4.00
91	3.98
92	3.97
93	3.95
94	3.94
95	3.93
96	3.92
97	3.90
98	3.89
99	3.88
100	3.87
101	3.86
102	3.84
103	3.83
104	3.82
105	3.81
106	3.80
107	3.79
108	3.78
109	3.77
110	3.76
111	3.75
112	3.74
113	3.73
114	3.72
115	3.71

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
116	3.70
117	3.69
118	3.68
119	3.67
120	3.66
121	3.65
122	3.64
123	3.63
124	3.62
125	3.61
126	3.60
127	3.59
128	3.58
129	3.57
130	3.56
131	3.55
132	3.53
133	3.52
134	3.51
135	3.50
136	3.49
137	3.48
138	3.47
139	3.46
140	3.45
141	3.44
142	3.43
143	3.42
144	3.41
145	3.40
146	3.39
147	3.38
148	3.37
149	3.36
150	3.35
151	3.34
152	3.33
153	3.32
154	3.31
155	3.30
156	3.30
157	3.29
158	3.28
159	3.27
160	3.26

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
161	3.25
162	3.24
163	3.23
164	3.22
165	3.22
166	3.21
167	3.20
168	3.19
169	3.18
170	3.17
171	3.16
172	3.16
173	3.15
174	3.14
175	3.13
176	3.12
177	3.11
178	3.11
179	3.10
180	3.09
181	3.08
182	3.07
183	3.07
184	3.06
185	3.05
186	3.04
187	3.04
188	3.03
189	3.02
190	3.01
191	3.01
192	3.00
193	2.99
194	2.98
195	2.98
196	2.97
197	2.96
198	2.95
199	2.95
200	2.94
201	2.93
202	2.93
203	2.92
204	2.91
205	2.90

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
206	2.90
207	2.89
208	2.88
209	2.88
210	2.87
211	2.86
212	2.86
213	2.85
214	2.84
215	2,83
216	2.83
217	2.82
218	2.81
219	2.81
220	2.80
221	2.79
222	2.79
223	2.78
224	2.77
225	2.77
226	2.76
227	2.75
228	2.75
229	2.74
230	2.73
231	2.73
232	2.72
233	2.71
234	2.71
235	2.70
236	2.69
237	2.69
238	2.68
239	2.68
240	2.67
241	2.66
242	2.66
243	2.65
244	2.65
245	2.64
246	2.63
247	2.63
248	2.62
249	2.62
250	2.61

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
251	2.61
252	2.60
253	2.60
254	2.59
255	2.59
256	2.58
257	2.58
258	2.57
259	2.57
260	2.56
261	2.55
262	2.55
263	2.54
264	2.54
265	2.53
266	2.53
267	2.52
268	2.52
269	2.51
270	2.51
271	2.50
272	2.50
273	2.50
274	2.49
275	2.49
276	2.48
277	2.48
278	2.47
279	2.47
280	2.46
281	2.45
282	2.45
283	2.44
284	2.44
285	2.43
286	2.43
287	2.42
288	2.42
289	2.41
290	2.41
291	2.40
292	2.40
293	2.40
294	2.39
295	2.39

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
296	2.38
297	2.38
298	2.37
299	2.37
300	2.36
301	2.36
302	2.35
303	2.35
304	2.34
305	2.34
306	2.34
307	2.33
308	2.33
309	2.32
310	2.32
311	2.31
312	2.31
313	2.30
314	2.30
315	2.30
316	2.29
317	2.29
318	2.29
319	2.28
320	2.28
321	2.28
322	2.27
323	2.27
324	2.27
325	2.26
326	2.26
327	2.26
328	2.25
329	2.25
330	2.24
331	2.24
332	2.23
333	2.23
334	2.23
335	2.22
336	2.22
337	2.21
338	2.21
339	2.20
340	2.20

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
341	2.20
342	2.19
343	2.19
344	2.18
345	2.18
346	2.17
347	2.17
348	2.17
349	2.16
350	2.16
351	2.15
352	2.15
353	2.15
354	2.14
355	2.14
356	2.13
357	2.13
358	2.13
359	2.12
360	2.12
361	2.12
362	2.11
363	2.11
364	2.11
365	2.10
366	2.10
367	2.09
368	2.09
369	2.09
370	2.08
371	2.08
372	2.08
373	2.07
374	2.07
375	2.07
376	2.06
377	2.06
378	2.06
379	2.05
380	2.05
381	2.05
382	2.04
383	2.04
384	2.04
385	2.04

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
386	2.03
387	2.03
388	2.02
389	2.02
390	2.02
391	2.01
392	2.01
393	2.00
394	2.00
395	2.00
396	1.99
397	1.99
398	1.99
399	1.98
400	1.98
401	1.98
402	1.97
403	1.97
404	1.97
405	1.96
406	1.96
407	1.96
408	1.95
409	1.95
410	1.94
411	1.94
412	1.94
413	1.93
414	1.93
415	1.93
416	1.92
417	1.92
418	1.92
419	1.91
420	1.91
421	1.91
422	1.90
423	1.90
424	1.90
425	1.89
426	1.89
427	1.89
428	1.88
429	1.88
430	1.88

tSIE- Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
431	1.88
432	1.87
433	1.87
434	1.87
435	1.86
436	1.86
437	1.86
438	1.86
439	1.85
440	1.85
441	1.85
442	1.84
443	1.84
444	1.84
445	1.84
446	1.83
447	1.83
448	1.83
449	1.83
450	1.82
451	1.82
452	1.82
453	1.82
454	1.81
455	1.81
456	1.81
457	1.81
458	1.81
459	1.80
460	1.80
461	1.80
462	1.79
463	1.79
464	1.79
465	1.79
466	1.78
467	1.78
468	1.78
469	1.78
470	1.77
471	1.77
472	1.77
473	1.76
474	1.76
475	1.76

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
476	1.75
477	1.75
478	1.75
479	1.74
480	1.74
481	1.74
482	1.73
483	1.73
484	1.73
485	1.72
486	1.72
487	1.72
488	1.71
489	1.71
490	1.71
491	1.71
492	1.70
493	1.70
494	1.70
495	1.70
496	1.70
497	1.70
498	1.70
499	1.70
500	1.70
501	1.69
502	1.69
503	1.68
504	1.68
505	1.68
506	1.68
507	1.67
508	1.67
509	1.67
510	1.67
511	1.67
512	1.66
513	1.66
514	1.66
515	1.66
516	1.66
517	1.66
518	1.65
519	1.65
520	1.65

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
521	1.65
522	1.65
523	1.64
524	1.64
525	1.64
526	1.64
527	1.63
528	1.63
529	1.63
530	1.63
531	1.62
532	1.62
533	1.62
534	1.61
535	1.61
536	1.61
537	1.61
538	1.60
539	1.60
540	1.60
541	1.60
542	1.60
543	1.59
544	1.59
545	1.59
546	1.59
547	1.58
548	1.58
549	1.58
550	1.58
551	1.58
552	1.57
553	1.57
554	1.57
555	1.57
556	1.57
557	1.57
558	1.56
559	1.56
560	1.56
561	1.56
562	1.56
563	1.55
564	1.55
565	1.55

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
566	1.55
567	1.55
568	1.54
569	1.54
570	1.54
571	1.54
572	1.54
573	1.53
574	1.53
575	1.53
576	1.53
577	1.53
578	1.52
579	1.52
580	1.52
581	1.52
582	1.52
583	1.51
584	1.51
585	1.51
586	1.51
587	1.51
588	1.50
589	1.50
590	1.50
591	1.50
592	1.49
593	1.49
594	1.49
595	1.49
596	1.49
597	1.49
598	1.48
599	1.48
600	1.48
601	1.48
602	1.48
603	1.48
604	1.47
605	1.47
606	1.47
607	1.47
608	1.47
609	1.47
610	1.46

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
611	1.46
612	1.46
613	1.46
614	1.46
615	1.46
616	1.46
617	1.45
618	1.45
619	1.45
620	1.45
621	1.45
622	1.45
623	1.45
624	1.44
625	1.44
626	1.44
627	1.44
628	1.44
629	1.43
630	1.43
631	1.43
632	1.43
633	1.43
634	1.42
635	1.42
636	1.42
637	1.42
638	1.41
639	1.41
640	1.41
641	1.41
642	1.41
643	1.40
644	1.40
645	1.40
646	1.40
647	1.39
648	1.39
649	1.39
650	1.39
651	1.39
652	1.39
653	1.38
654	1.38
655	1.38

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
656	1.38
657	1.38
658	1.38
659	1.38
660	1.37
661	1.37
662	1.37
663	1.37
664	1.37
665	1.37
666	1.37
667	1.36
668	1.36
669	1.36
670	1.36
671	1.36
672	1.36
673	1.36
674	1.36
675	1.35
676	1.35
677	1.35
678	1.35
679	1.35
680	1.35
681	1.35
682	1.35
683	1.35
684	1.34
685	1.34
686	1.34
687	1.34
688	1.34
689	1.34
690	1.34
691	1.33
692	1.33
693	1.33
694	1.33
695	1.33
696	1.33
697	1.32
698	1.32
699	1.32
700	1.32

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
701	1.32
702	1.32
703	1.32
704	1.31
705	1.31
706	1.31
707	1.31
708	1.31
709	1.31
710	1.31
711	1.30
712	1.30
713	1.30
714	1.30
715	1.30
716	1.30
717	1.29
718	1.29
719	1.29
720	1.29
721	1.29
722	1.29
723	1.29
724	1.28
725	1.28
726	1.28
727	1.28
728	1.28
729	1.28
730	1.27
731	1.27
732	1.27
733	1.27
734	1.27
735	1.27
736	1.27
737	1.26
738	1.26
739	1.26
740	1.26
741	1.26
742	1.26
743	1.26
744	1.26
745	1.25

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
746	1.25
747	1.25
748	1.25
749	1.25
750	1.25
751	1.25
752	1.25
753	1.25
754	1.25
755	1.24
756	1.24
757	1.24
758	1.24
759	1.24
760	1.24
761	1.24
762	1.24
763	1.24
764	1.24
765	1.24
766	1.23
767	1.23
768	1.23
769	1.23
770	1.23
771	1.23
772	1.23
773	1.23
774	1.23
775	1.23
776	1.22
777	1.22
778	1.22
779	1.22
780	1.22
781	1.22
782	1.22
783	1.22
784	1.21
785	1.21
786	1.21
787	1.21
788	1.21
789	1.21
790	1.21

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
791	1.20
792	1.20
793	1.20
794	1.20
795	1.20
796	1.20
797	1.19
798	1.19
799	1.19
800	1.19
801	1.19
802	1.19
803	1.19
804	1.18
805	1.18
806	1.18
807	1.18
808	1.18
809	1.18
810	1.18
811	1.18
812	1.18
813	1.17
814	1.17
815	1.17
816	1.17
817	1.17
818	1.17
819	1.17
820	1.17
821	1.17
822	1.17
823	1.17
824	1.17
825	1.17
826	1.17
827	1.17
828	1.17
829	1.16
830	1.16
831	1.16
832	1.16
833	1.16
834	1.16
835	1.16

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
836	1.16
837	1.16
838	1.15
839	1.15
840	1.15
841	1.15
842	1.15
843	1.14
844	1.14
845	1.14
846	1.14
847	1.13
848	1.13
849	1.13
850	1.13
851	1.12
852	1.12
853	1.12
854	1.12
855	1.12
856	1.12
857	1.12
858	1.12
859	1.12
860	1.12
861	1.12
862	1.12
863	1.11
864	1.11
865	1.11
866	1.11
867	1.11
868	1.11
869	1.11
870	1.11
871	1.11
872	1.11
873	1.11
874	1.11
875	1.11
876	1.11
877	1.11
878	1.11
879	1.11
880	1.11

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
881	1.11
882	1.10
883	1.10
884	1.10
885	1.10
886	1.10
887	1.10
888	1.10
889	1.10
890	1.10
891	1.10
892	1.10
893	1.10
894	1.10
895	1.10
896	1.10
897	1.09
898	1.09
899	1.09
900	1.09
901	1.09
902	1.09
903	1.09
904	1.09
905	1.08
906	1.08
907	1.08
908	1.08
909	1.08
910	1.08
911	1.08
912	1.08
913	1.08
914	1.08
915	1.07
916	1.07
917	1.07
918	1.07
919	1.07
920	1.07
921	1.07
922	1.07
923	1.07
924	1.07
925	1.07

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
926	1.06
927	1.06
928	1.06
929	1.06
930	1.06
931	1.06
932	1.06
933	1.06
934	1.06
935	1.05
936	1.05
937	1.05
938	1.05
939	1.05
940	1.05
941	1.05
942	1.05
943	1.05
944	1.05
945	1.04
946	1.04
947	1.04
948	1.04
949	1.04
950	1.04
951	1.04
952	1.04
953	1.04
954	1.03
955	1.03
956	1.03
957	1.03
958	1.03
959	1.03
960	1.03
961	1.03
962	1.03
963	1.03
964	1.03
965	1.03
966	1.03
967	1.03
968	1.03
969	1.03
970	1.02

tSIE - Wert	Energie- Verschiebungsfaktor δ
971	1.02
972	1.02
973	1.02
974	1.02
975	1.02
976	1.02
977	1.02
978	1.02
979	1.02
980	1.02
981	1.02
982	1.02
983	1.02
984	1.01
985	1.01
986	1.01
987	1.01
988	1.01
989	1.01
990	1.01
991	1.01
992	1.01
993	1.01
994	1.01
995	1.01
996	1.00
997	1.00
998	1.00
999	1.00
1000	1.00

Anhang II

Nuklidtabelle geordnet nach E_β aus /3/, /4/, /5/

**Tabelle zur Identifizierung von Nukliden
bei der LSC - Spektroskopie**

Maximalenergie des β -Spektrums, ausnahmsweise (γ) Energie des γ -Quants

Energie in keV =====	mögliches Nuklid =====	$T_{1/2}$ =====	Bemerkungen =====
12.2 (γ)	Fe-55	2.6 a	Mn X-rays
12.2 (γ)	Mn-54	303 d	Cr X-rays e^- bei 829 keV γ bei 834.8 keV
12.2 (γ)	Zn-65	245 d	β^+ bei 327 keV e^- bei 1106 keV γ bei 1115.5 keV
14.6 (γ)	Co-58	71.3 d	β^+ bei 474 keV γ bei 810.8 keV

18.6	H-3	12.34 a	β^-
21.0	Pu-241	13.2a	β^-
40	Pd-107	6.5*E6 a	β^-
40	Ra-228	5.77 a	β^- Mutternuklid von Ac-228 mit 2180 keV Thorium-Reihe
45.5	Ac-227	21.77 a	β^- Uran-235-Reihe

60.0	Zr-93	1.53*E6 a	β^-
63.0	Pb-210	22.3 a	β^- , erste Energie bei 15 keV Mutternuklid von Bi-210 mit 1161 keV Uran-Radium-Reihe
65.8	Ni-63	100 a	β^-
76.0	Sm-151	88 a	β^-
87.0	Ag-110 m	255 d	β^- weitere Energien bei 529 u. 1500 keV Mutternuklid von Ag-110 mit 2870keV
89.0	Cs-134	2.062 a	β^- weitere Energien bei 658 u. 1454 keV
96.7	Tm-171	1.92 a	β^- e^- bei 57 u. 65 keV Yb X-rays bei 67 keV
150	I-129	1.57*E7 a	β^-
156	C-14	5730 a	β^-
160	Se-79	6.5*E4 a	β^-

195	Th-234	24.1 d	β^- Uran-Radium- Reihe Mutternuklid von Pa-234m mit 2290 keV
205	Cs-135	$2.95 \cdot 10^6$ a	β^-
205	La-138	$1.1 \cdot 10^{11}$ a	β^-
213	Si-32	650 a	β^- Mutternuklid von P-32 mit 1710 keV
214	Hg-203	46.6 d	β^- e^- bei 194, 264 und 275 keV
224	Pm-147	2.62 a	β^-
250	Eu-155	4.96 a	β^-
274	Rb-87	$4.8 \cdot 10^{10}$ a	β^-
292	Tc-99	$2.13 \cdot 10^5$ a	β^-
300	Th-231	25.52 h	β^- Uran-Radium- Reihe
314	Co-60	5.27 a	β^- zweite Energie bei 1480 keV

327	Ce-144	284.5 d	β^- Mutternuklid von Pr-144 mit 2996 keV
354	Sn-121m	55 a	β^-
386	Sn-121	27.1 h	β^-
470	Nb-94	$2 \cdot 10^4$ a	β^-
495	In-115	$5.1 \cdot 10^{14}$ a	β^- natürliches Nuklid
514	Cs-137	30.25 a	β^- zweite Energie bei 1176 keV Mutternuklid von Ba-137m (sichtbares Kon- versionselektron) mit e^- bei 624 u. 656 keV
522	Ta-182	115 d	β^- zweite Energie bei 1708 keV Tochternuklid von Hf-182 mit 540 keV
540	Hf-182	$9 \cdot 10^{10}$ a	β^- Mutternuklid von Ta-182 mit 522 u. 1708 keV
546	Sr-90	28.6 a	β^- Mutternuklid von Y-90 mit 2280 keV

555	Be-10	1.6*E6 a	β^-
565	Ar-39	269 a	β^-
565	Lu-176	3.6*E10 a	β^- natürliches Nuklid
580	Pb-212	10.64 h	β^- e^- bei 148 keV und 222 keV Mutternuklid von Bi-212
585	Cd-113m	14.6 a	β^-
612	Sb-125	2.71 a	β^- weitere Energien bei 125,300, und 444 keV
624	Ba-137m	2.60 m	e^- , zweites e^- bei 656 keV
646	Am-242	16.01 h	β^- Tochternuklid von Pu-242
658	Cs-134	2.062 a	β^- weitere Energien bei 89 u. 1454 keV
672	Kr-85	10.7 a	β^-
714	Cl-36	3.08*E5 a	β^-

763	Tl-204	3.77 a	β^- Hg X-rays bei 12.2 keV
779	Pm-146	5.53 a	β^-
810	I-131	8.021 d	β^- weitere Energien bei 339 u. 606 keV
853	Tb-158	150 a	β^-
1161	Bi-210	5.013 d	β^- Tochternuklid von Pb-210 mit 63 keV Uran-Radium- Reihe
1340	K-40	1.277*E9	β^- β^+ bei 483 keV Ar X-rays bei 6.3 keV
1454	Cs-134	2.062 a	β^- weitere Energien bei 89 u. 658 keV
1463	Sr-89	50.55 d	β^-
1480	Co-60	5.27 a	β^- erste Energie bei 314 keV
1483	Eu-152	13.3 a	β^- β^+ bei 715 keV Gd X-rays und Sm X-rays bei 13 keV

1500	Ag-110m	255 d	β^- erste Energie bei 87 keV Mutternuklid von Ag-110 mit 2870 keV
1708	Ta-182	115 d	β^- erste Energie bei 522 keV Tochternuklid von Hf-182 mit 540 keV
1710	P-32	14.28 d	β^- Tochternuklid von Si-32 mit 213 keV
1830	Na-22	2.602 a	β^+ erste Energie bei 544 keV Ne X-rays bei 4.7 keV
1860	Eu-154	8.5 a	β^- weitere Energie bei 590 keV
2180	Ac-228	6.13 h	β^- Tochternuklid von Ra-228 mit 40 keV Thorium-Reihe
2250	Bi-212	60.6 m	β^- e^- bei 25 und 36 keV Mutternuklid von Po-212

2280	Y-90	64.1 h	β^- Tochternuklid von Sr-90 mit 546 keV
2290	Pa-234m	1.175 m	β^- Tochternuklid von Th-234 mit 195 keV Uran-Radium- Reihe
2870	Ag-110	24.42 s	β^- Tochternuklid von Ag-110m mit 87 u. 1500 keV
2996	Pr-144	17.3 m	β^- Tochternuklid von Ce-144 mit 327 keV
3260	Bi-214	19.7 m	β^- Tochternuklid von Pb-214 mit 730 keV Uran-Radium- Reihe

Anhang III

**Efficiency niederenergetischer Strahler (vgl. Anhang II) in
Abhängigkeit vom Quenching der Proben
bis zu einer Maximalenergie von 300 keV**

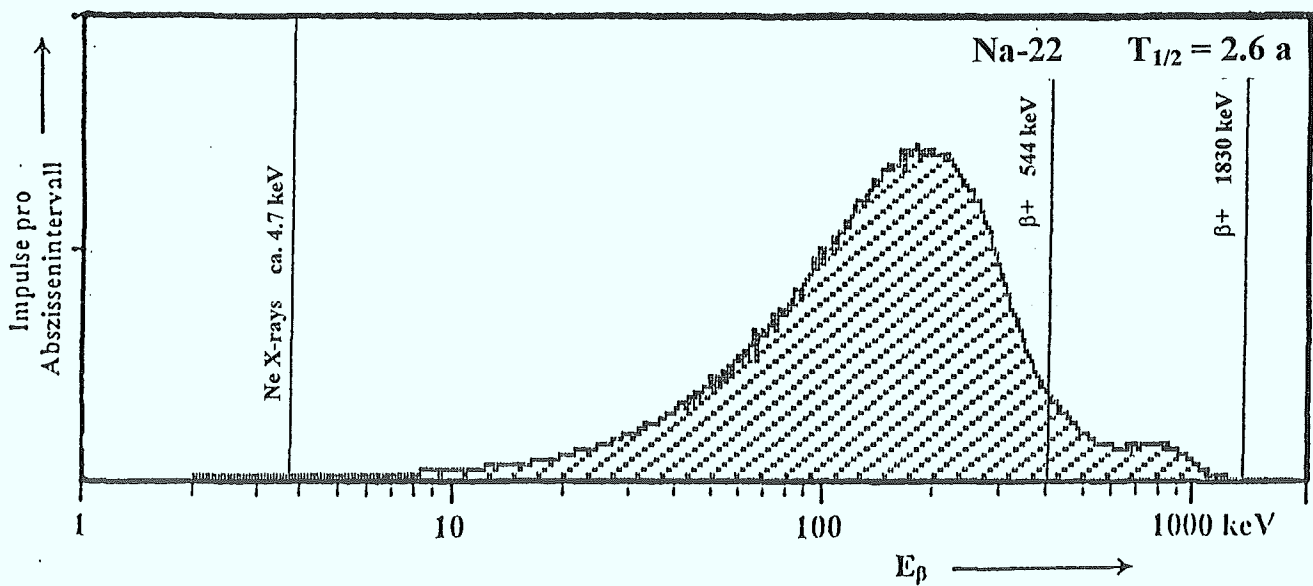
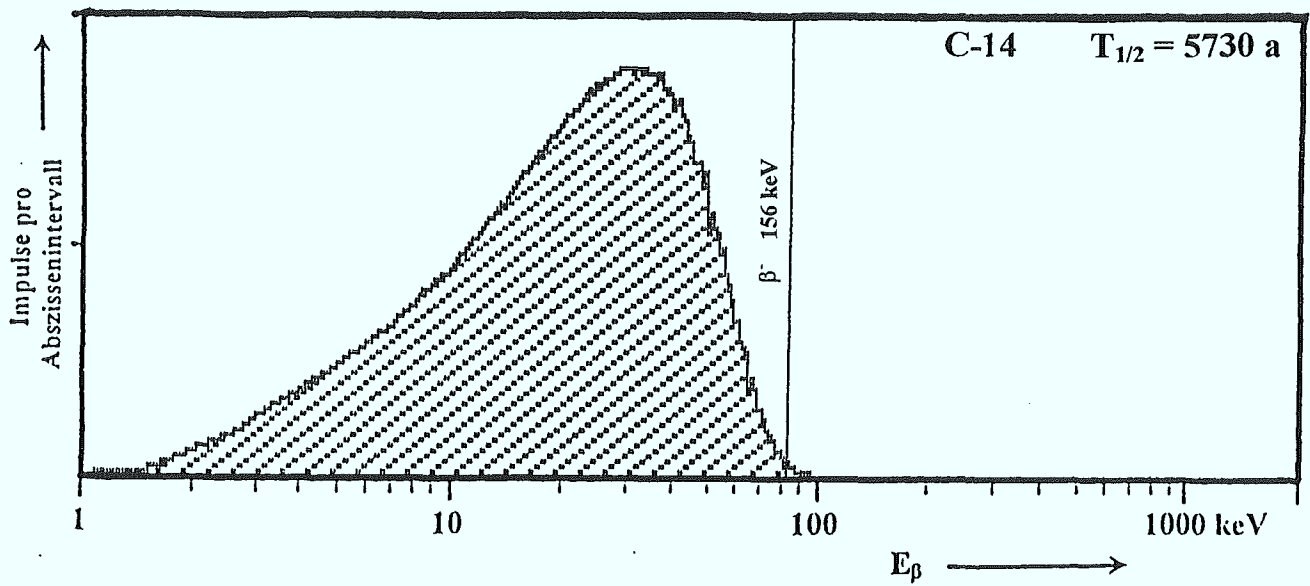
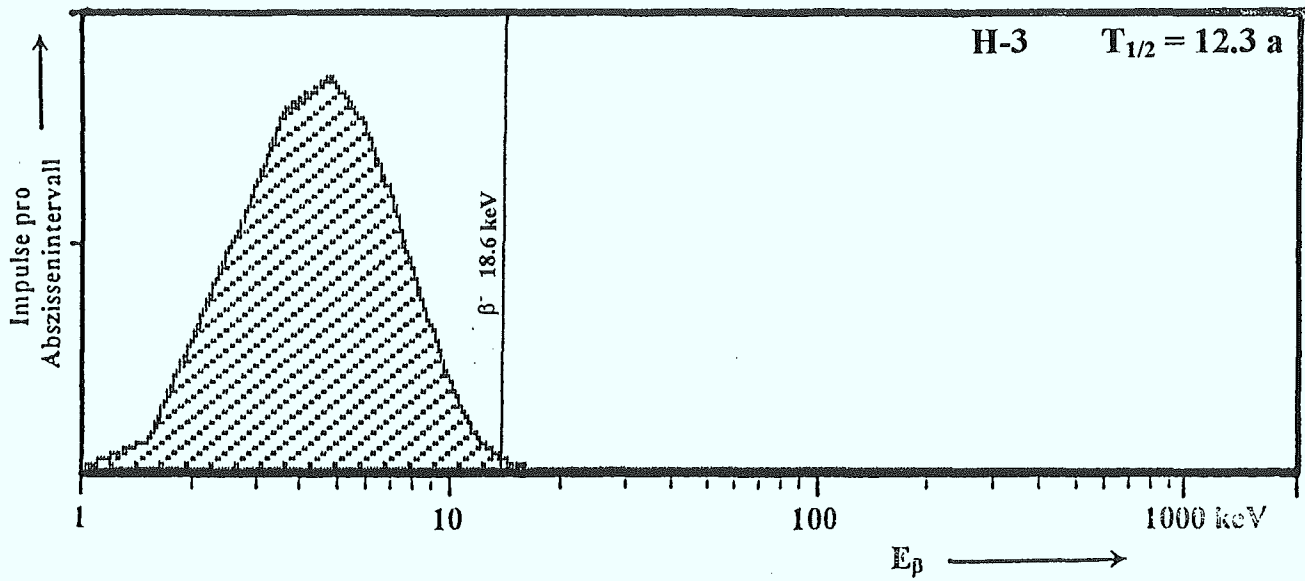
Die Efficiency verschiedener Nuklide in Abhängigkeit vom tSIE-Wert (Quenchgrad)

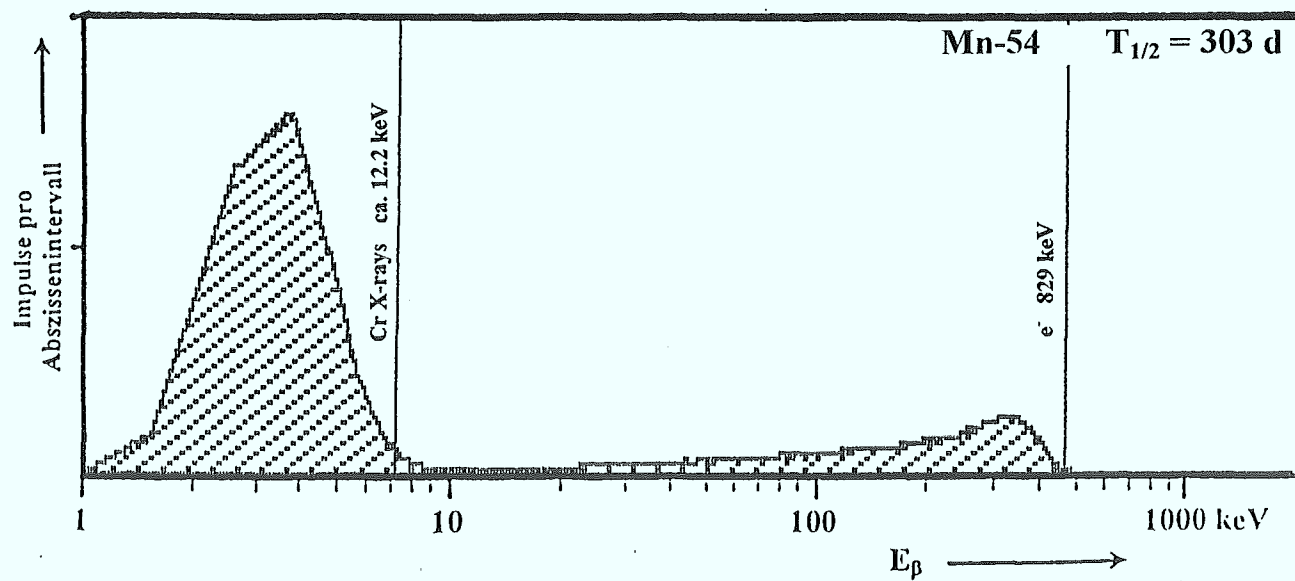
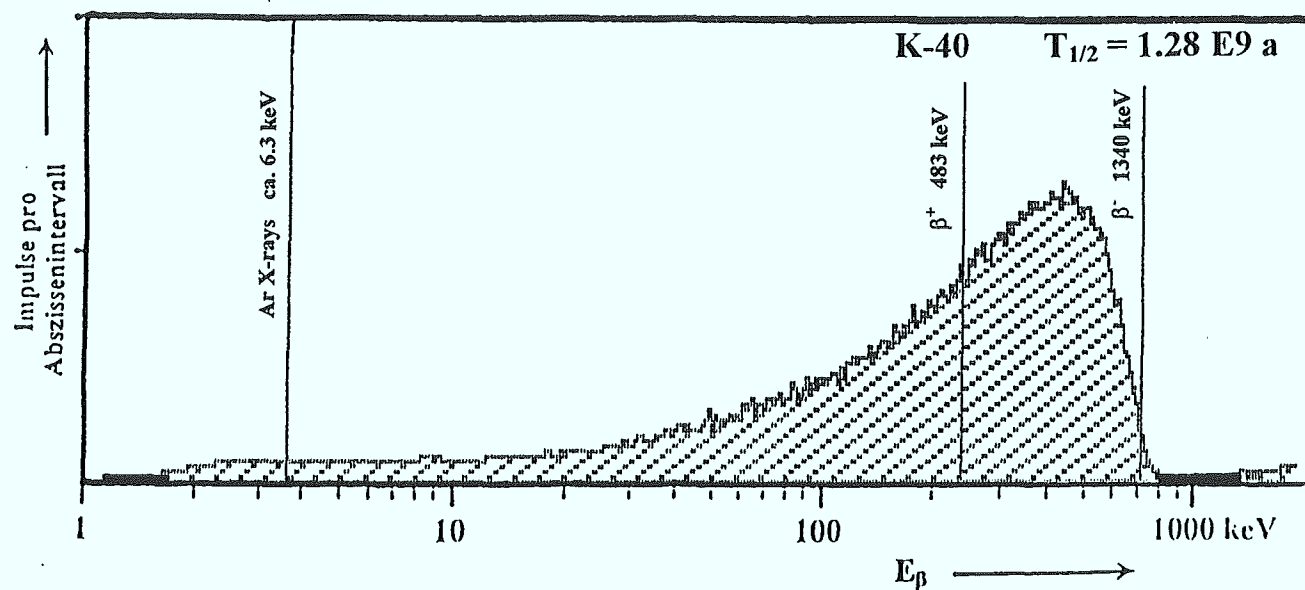
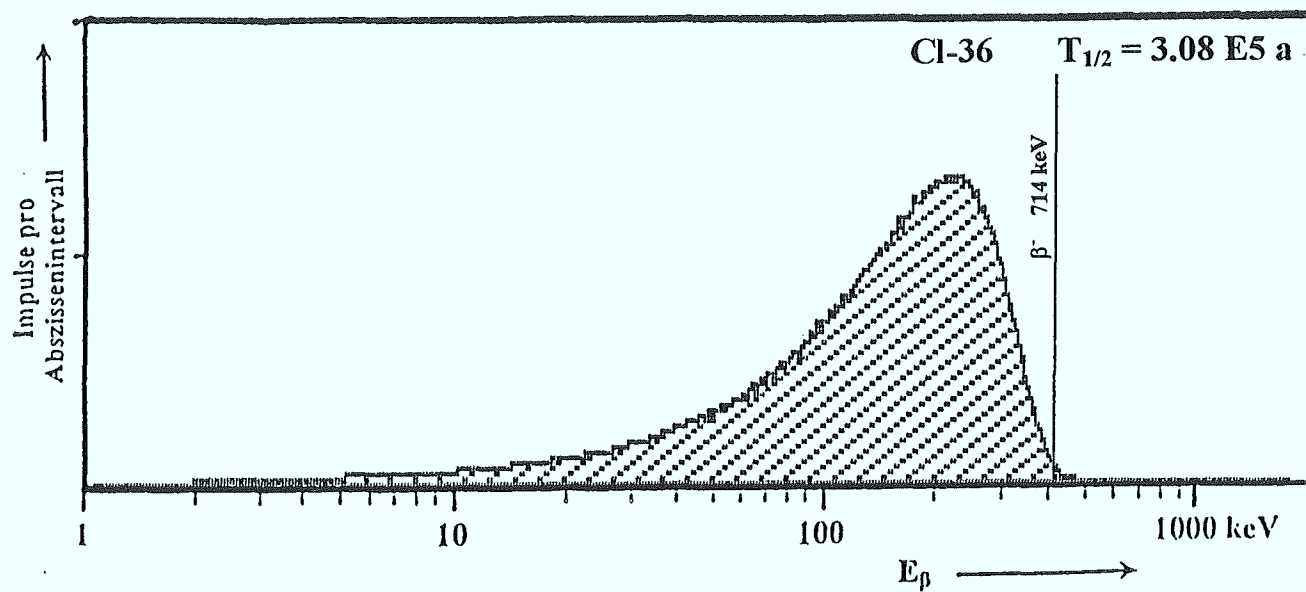
tSIE-Wert	Efficiency in Prozent für									
	Fe-55	Mn-54	Co-58	H-3	Pu-241	Ni-63	I-129	C-14	Hg-203	Te-99
E β (keV)	6 (γ)	5 (γ) +	6 (γ) +	18.6	21	65.8	150	156	214	292
180	17.8	19.9	36.6	18.8	18.8	59.3	88.5	83.5	84.5	90.7
190	19.3	21.3	38.0	20.6	19.7	60.8	88.5	84.2	85.1	90.8
200	20.9	22.4	39.2	22.3	20.6	62.1	88.8	85.0	85.8	91.0
210	22.4	23.4	40.3	23.8	21.5	63.4	89.2	85.6	86.3	91.2
220	23.9	24.4	41.4	25.1	22.5	64.7	89.8	86.6	86.9	91.5
230	25.3	25.3	42.4	26.2	23.5	65.8	90.5	87.3	87.4	91.8
240	26.8	26.1	43.4	27.2	24.5	67.0	91.3	88.0	87.8	92.0
250	28.2	27.1	44.4	28.2	25.4	68.1	92.1	88.6	88.2	92.3
260	29.6	28.0	45.4	29.2	26.4	69.1	92.8	89.0	88.6	92.5
270	31.0	29.0	46.4	30.2	27.3	70.1	93.5	89.4	88.9	92.7
280	32.3	30.0	47.5	31.1	28.2	71.1	94.1	89.7	89.1	92.9
290	33.6	31.0	48.5	32.1	29.0	71.9	94.7	89.9	89.4	93.1
300	34.9	32.1	49.5	33.0	29.8	72.8	95.2	90.1	89.6	93.2
310	36.2	33.1	50.5	33.9	30.6	73.5	95.6	90.2	89.8	93.4

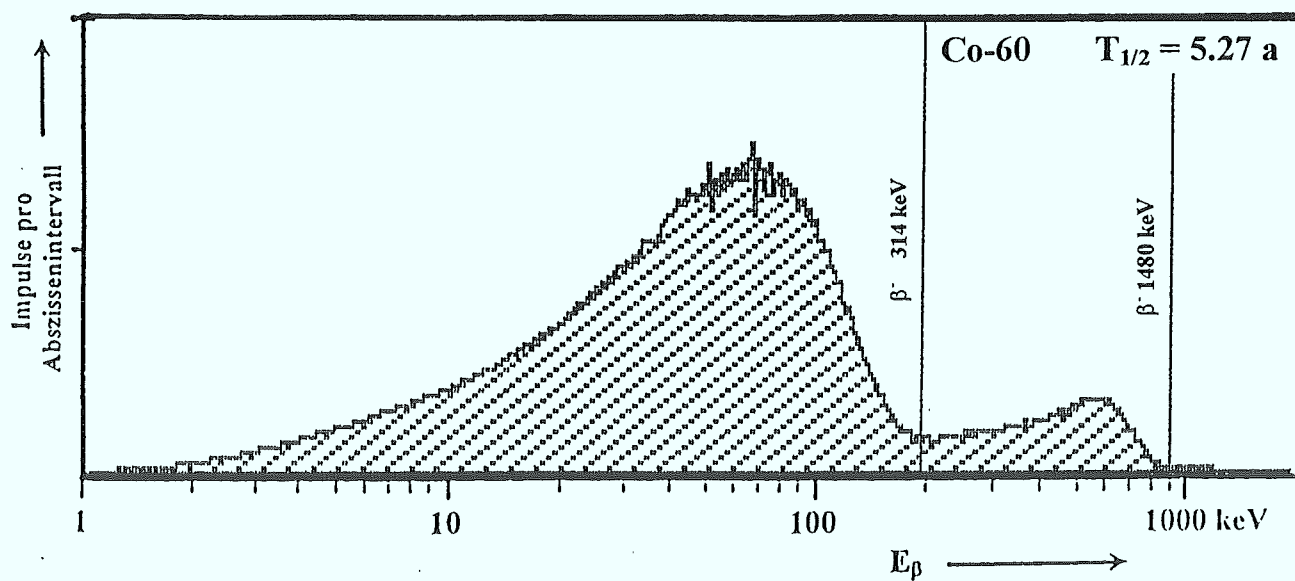
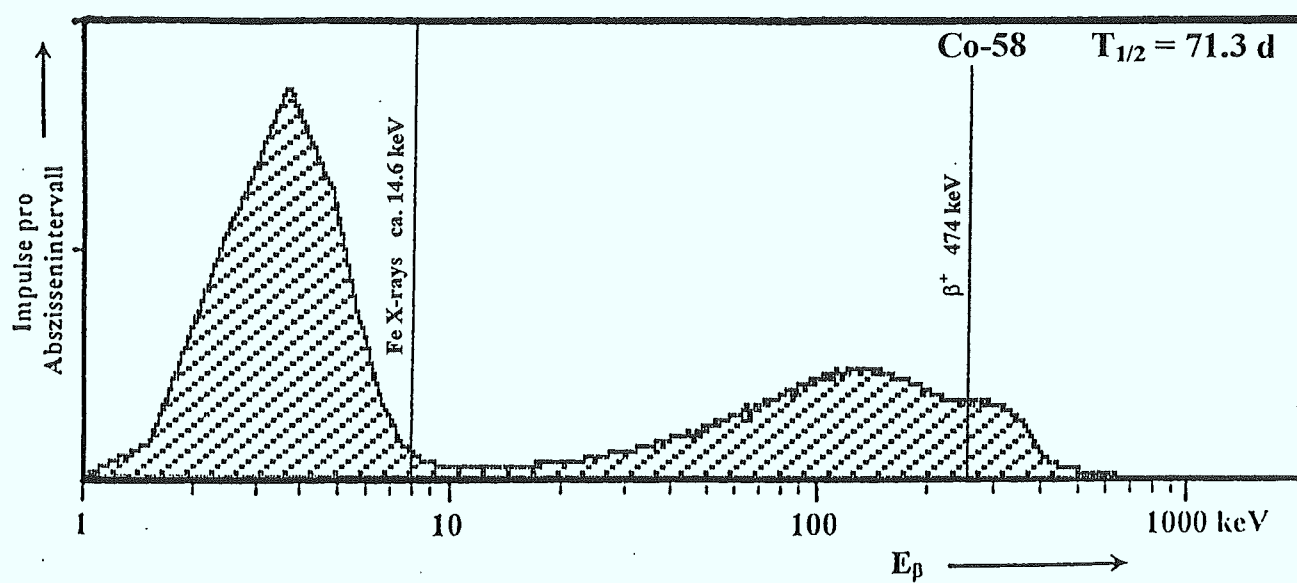
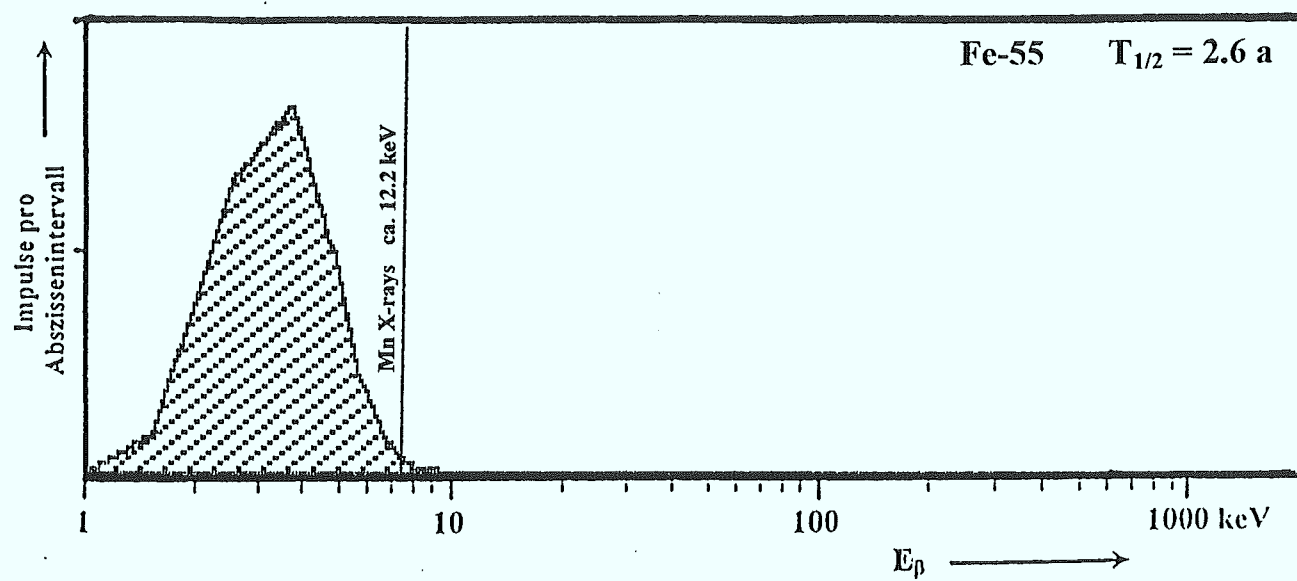
	Fe-55	Mn-54	Co-58	H-3	Pu-241	Ni-63	I-129	C-14	Hg-203	Tc-99
E β (keV)	6 (γ)	5 (γ) +	6 (γ) +	18.6	21	65.8	150	156	214	292
320	37.5	34.1	51.4	34.8	31.3	74.2	96.0	90.4	89.9	93.6
330	38.8	35.0	52.3	35.6	32.0	74.8	96.3	90.6	90.1	93.8
340	40.0	35.9	53.2	36.5	32.6	75.3	96.6	90.8	90.3	94.0
350	41.2	36.7	54.0	37.3	33.2	75.8	96.9	91.0	90.4	94.2
360	42.4	37.5	54.8	38.1	33.8	76.3	97.1	91.3	90.6	94.4
370	43.5	38.2	55.6	38.8	34.3	76.8	97.3	91.5	90.8	94.6
380	44.6	38.9	56.3	39.6	34.9	77.3	97.5	91.8	90.9	94.8
390	45.6	39.6	57.1	40.4	35.4	77.8	97.7	92.1	91.1	95.0
400	46.6	40.2	57.9	41.2	35.8	78.2	97.8	92.3	91.3	95.1
410	47.5	40.8	58.7	42.0	36.3	78.6	98.0	92.5	91.4	95.2
420	48.4	41.3	59.5	42.7	36.7	79.1	98.1	92.7	91.5	95.3
430	49.3	41.7	60.3	43.4	37.1	79.5	98.2	92.8	91.7	95.4
440	50.1	42.1	61.1	44.0	37.5	79.8	98.2	92.9	91.8	95.5
450	50.9	42.4	61.8	44.6	37.8	80.1	98.3	93.0	91.9	95.6
460	51.7	42.6	62.5	45.1	38.1	80.3	98.4	93.0	91.9	95.7
470	52.4	42.8	63.1	45.6	38.4	80.5	98.4	93.0	92.0	95.9
480	53.1	42.9	63.7	46.1	38.6	80.6	98.4	93.1	92.1	96.1
490	53.7	43.0	64.2	46.7	38.9	80.6	98.5	93.1	92.1	96.3
500	54.2	43.1	64.8	47.4	39.2	80.7	98.5	93.1	92.2	96.5
510	54.6	43.5	65.4	48.0	39.5	80.7	98.6	93.1	92.2	96.7
520	54.8	44.1	66.2	48.2	39.8	80.8	98.6	93.2	92.3	96.9

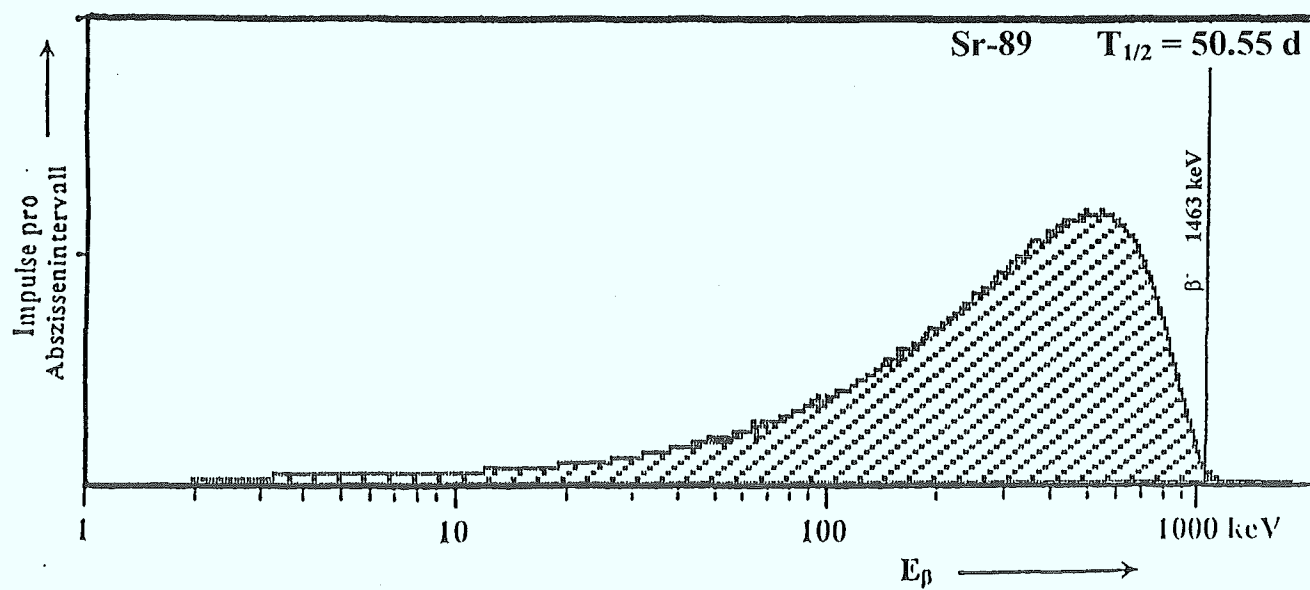
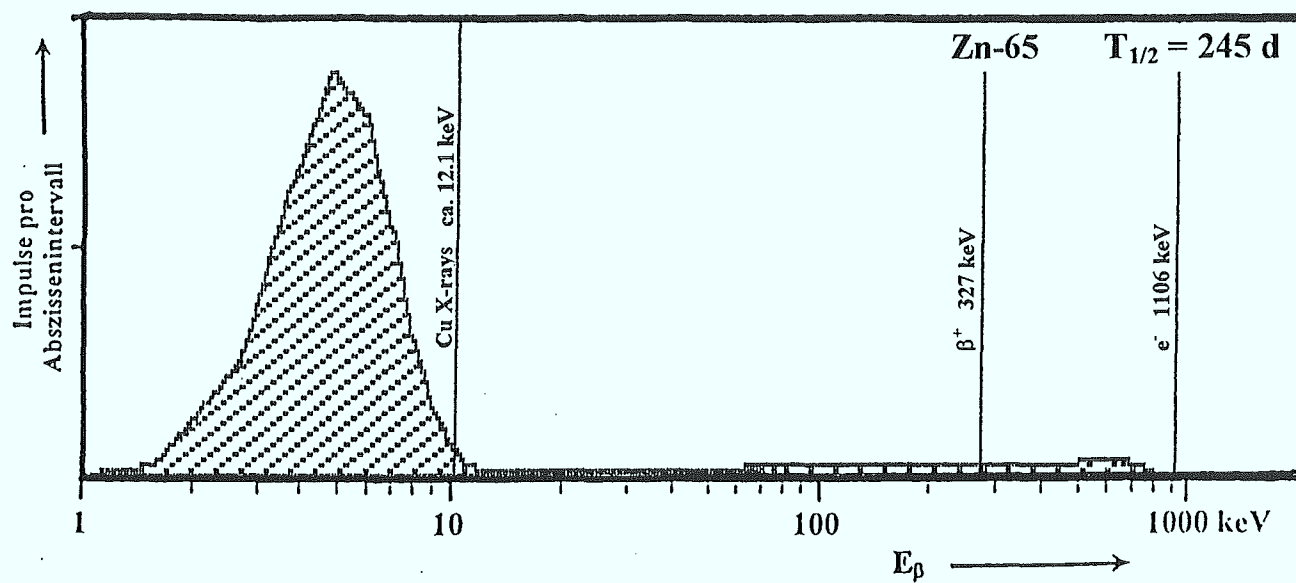
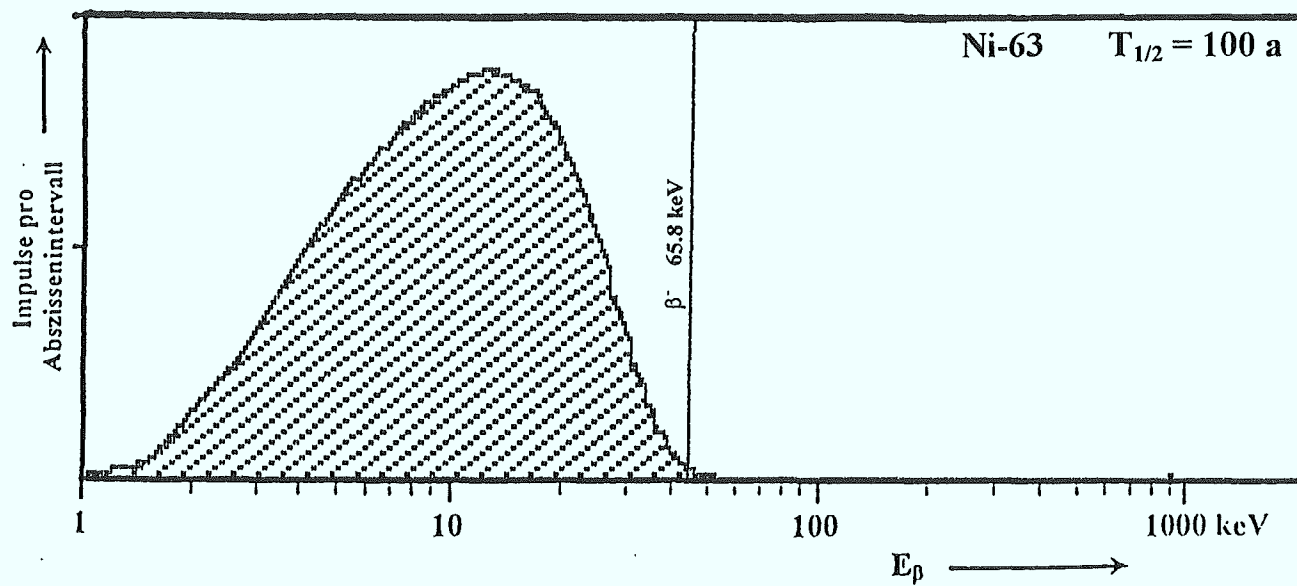
Anhang IV

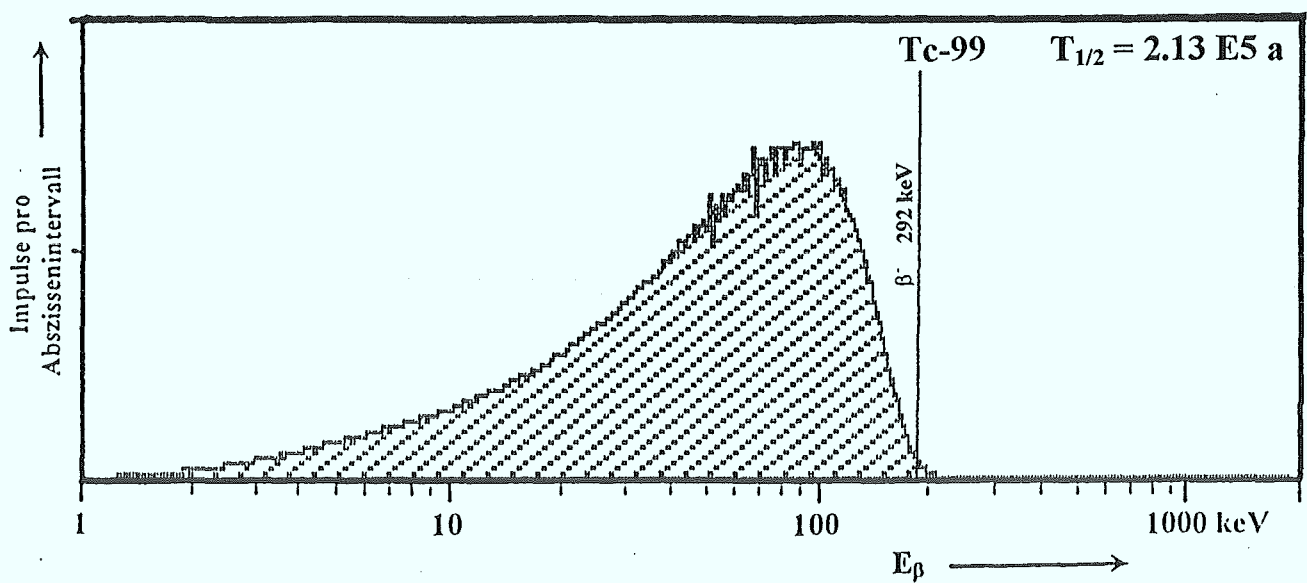
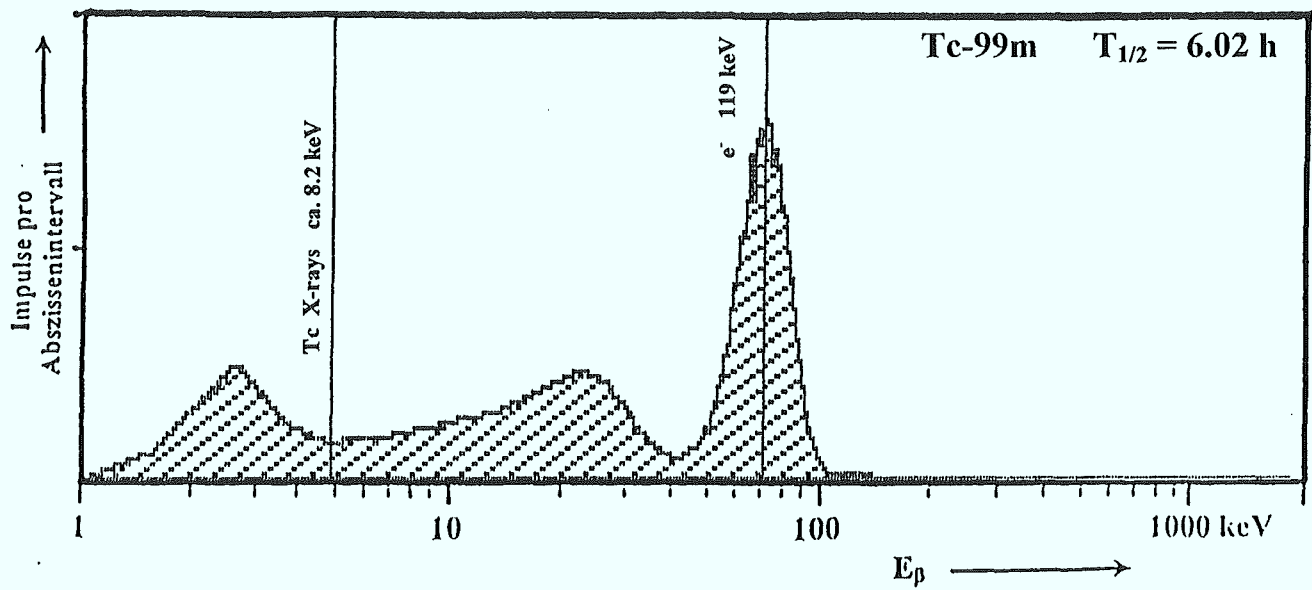
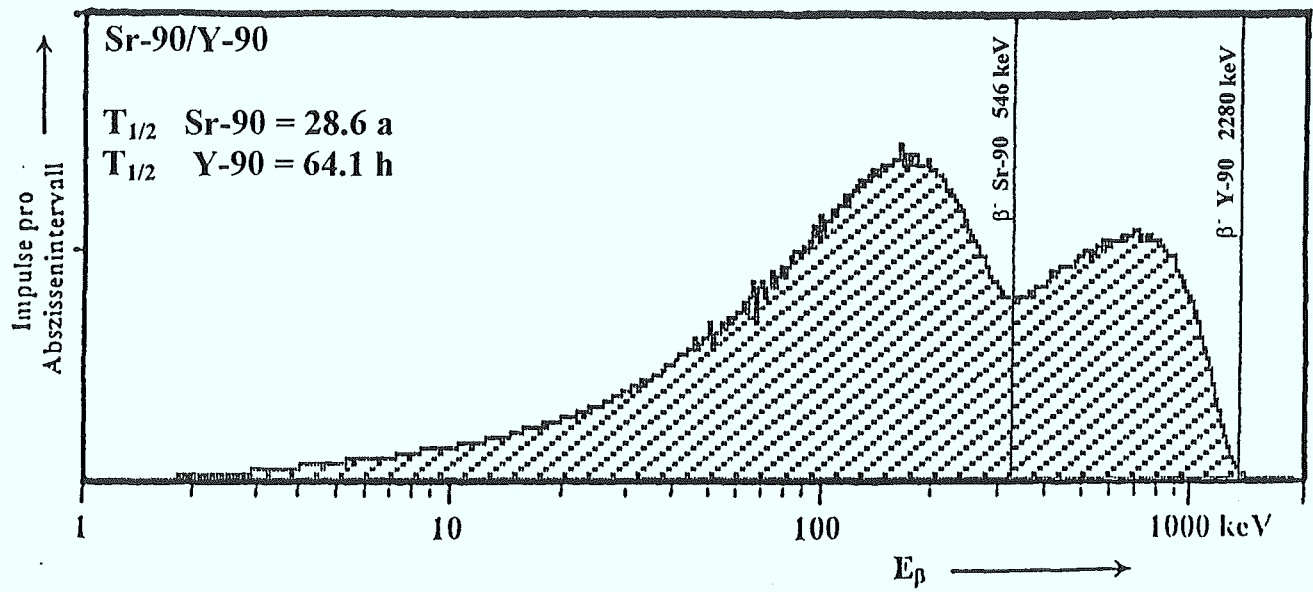
LSC - Spektren wichtiger Nuklide des Abfallbereiches

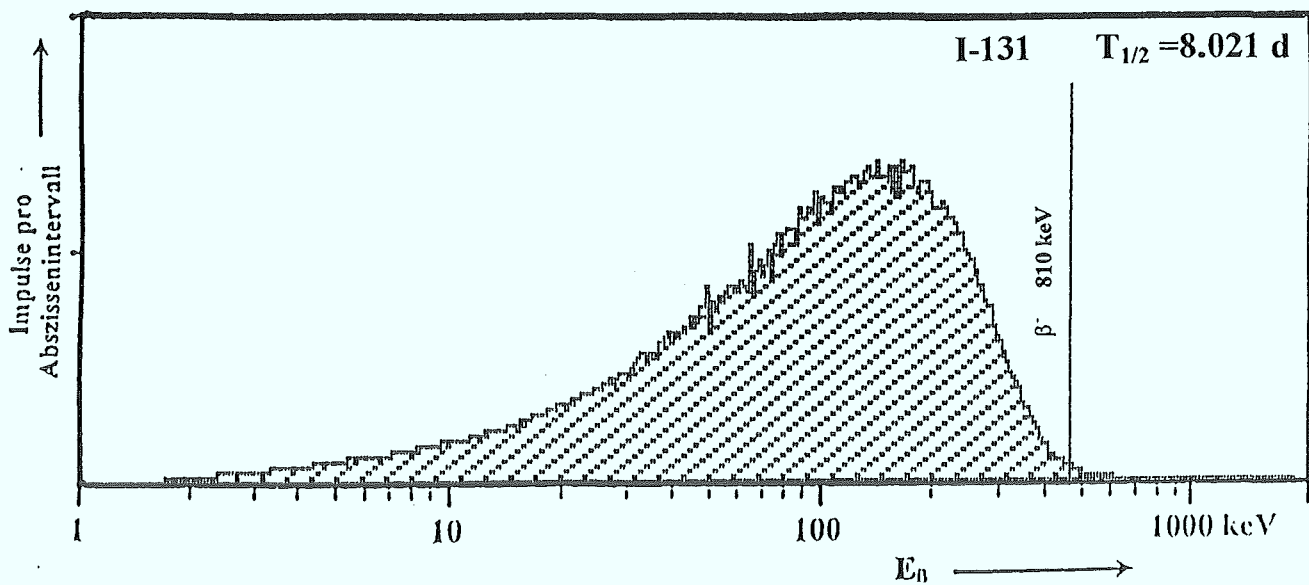
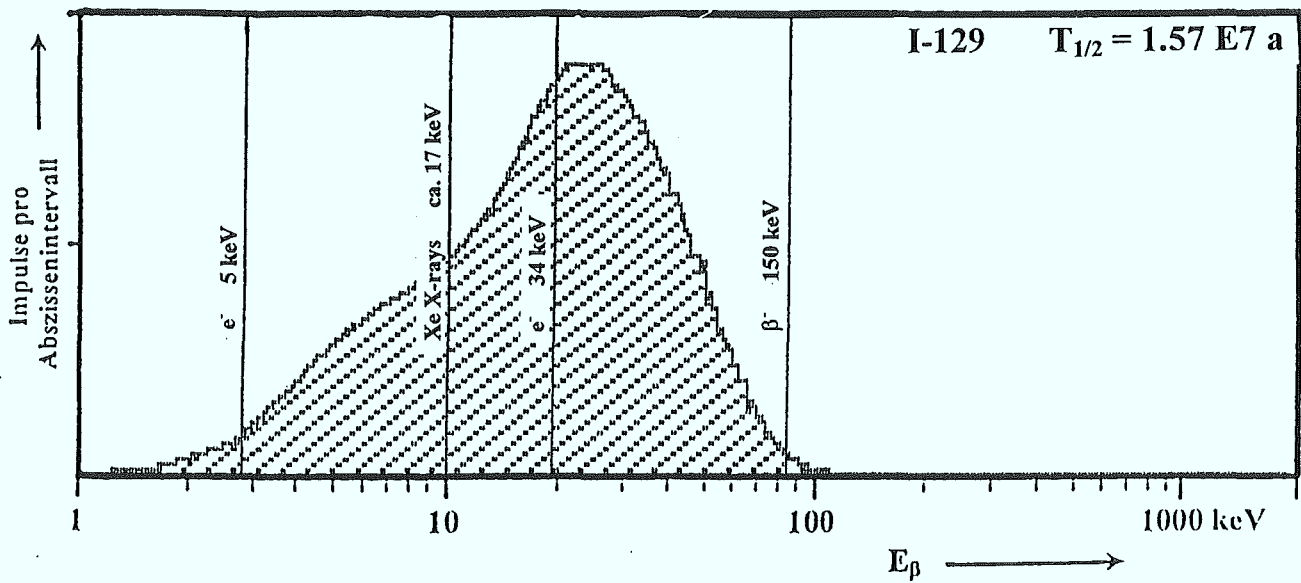
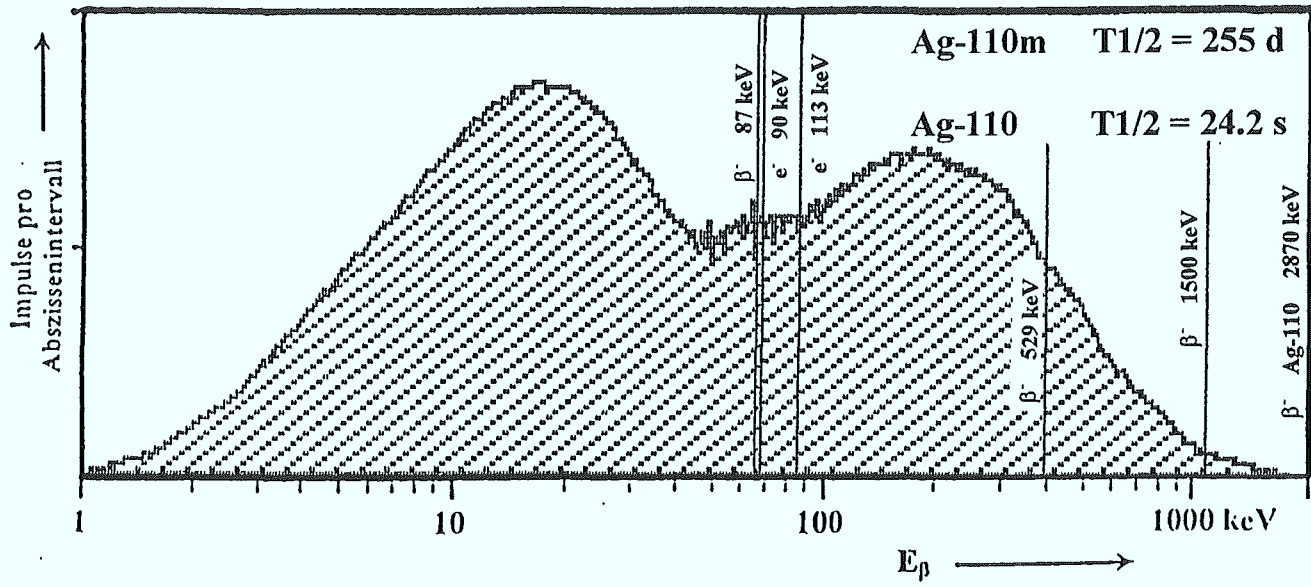


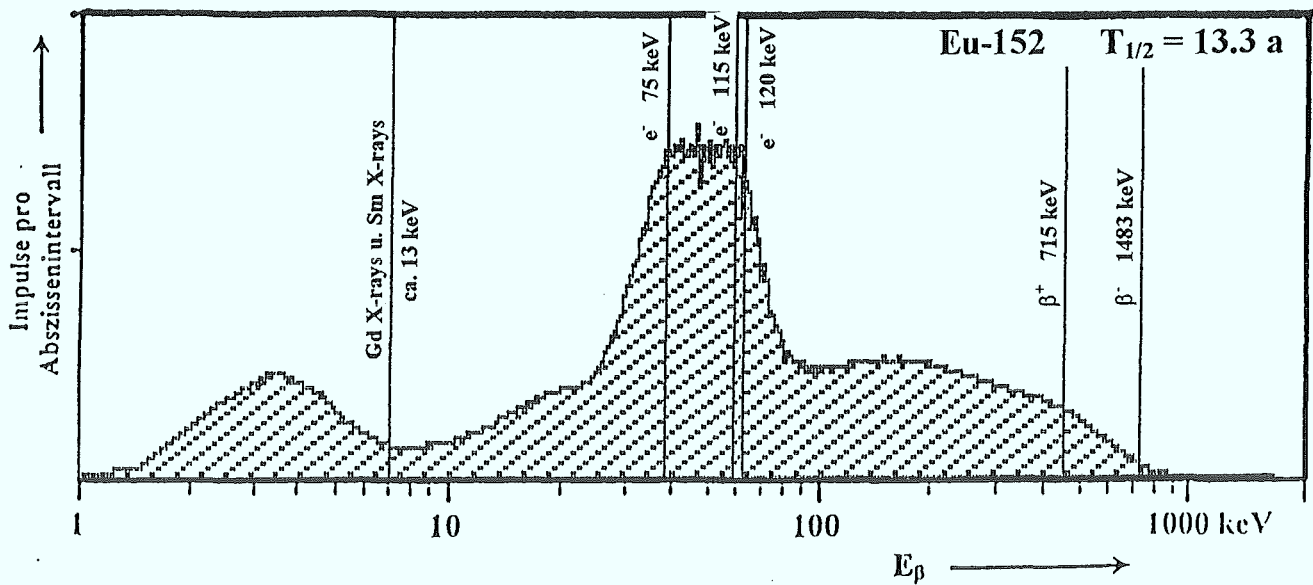
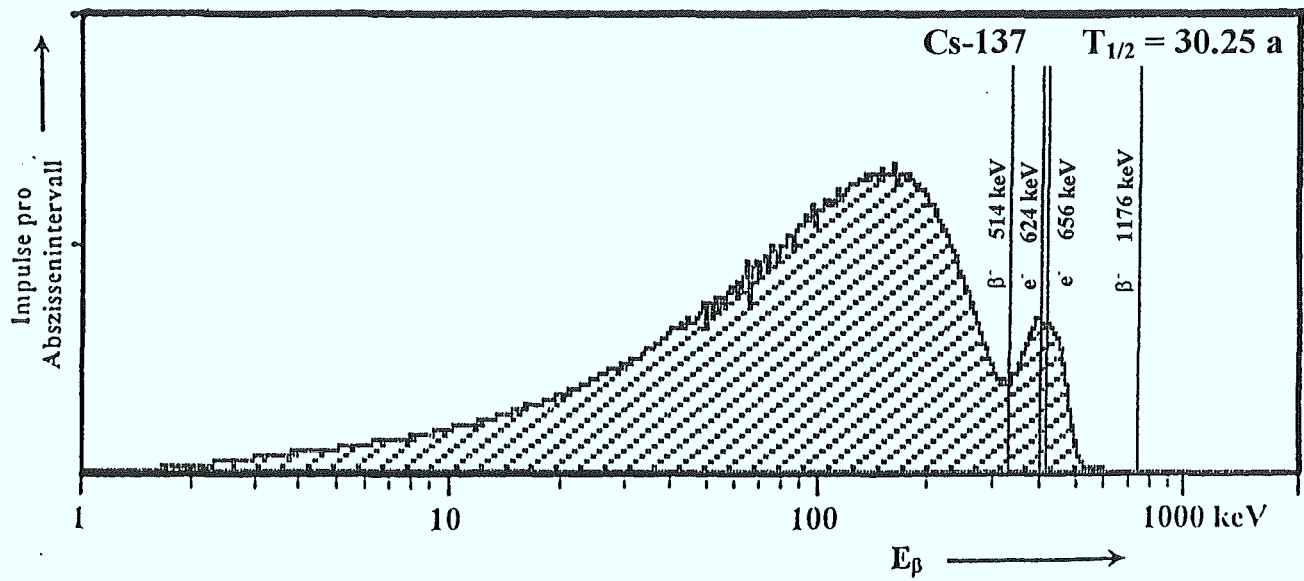
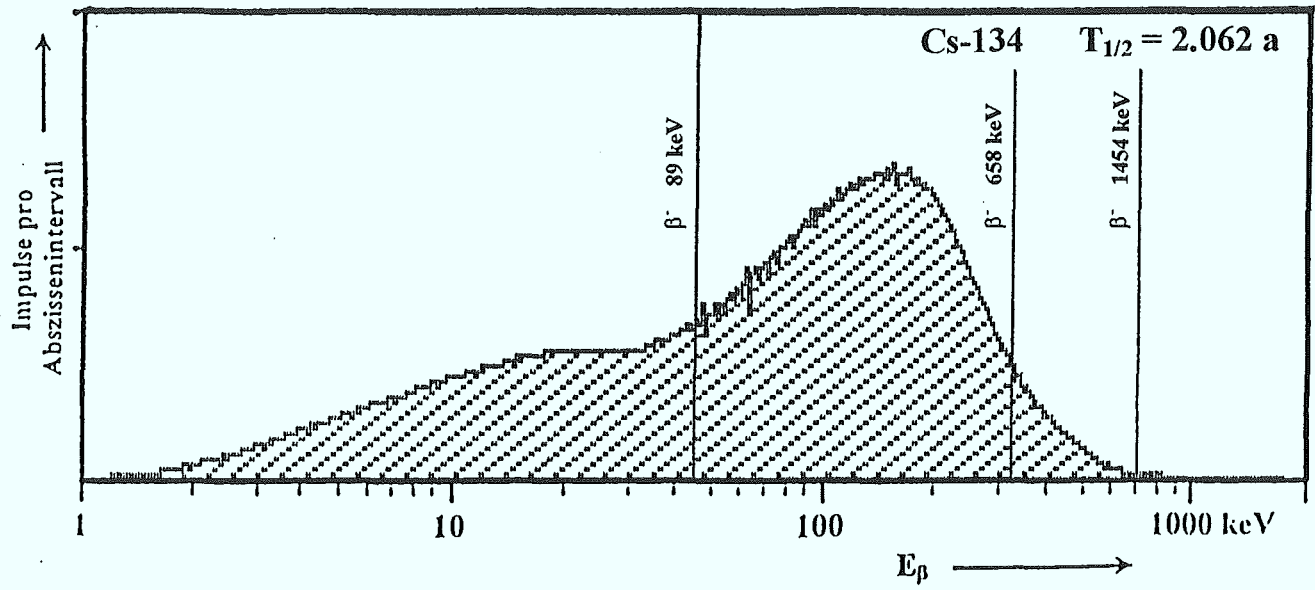


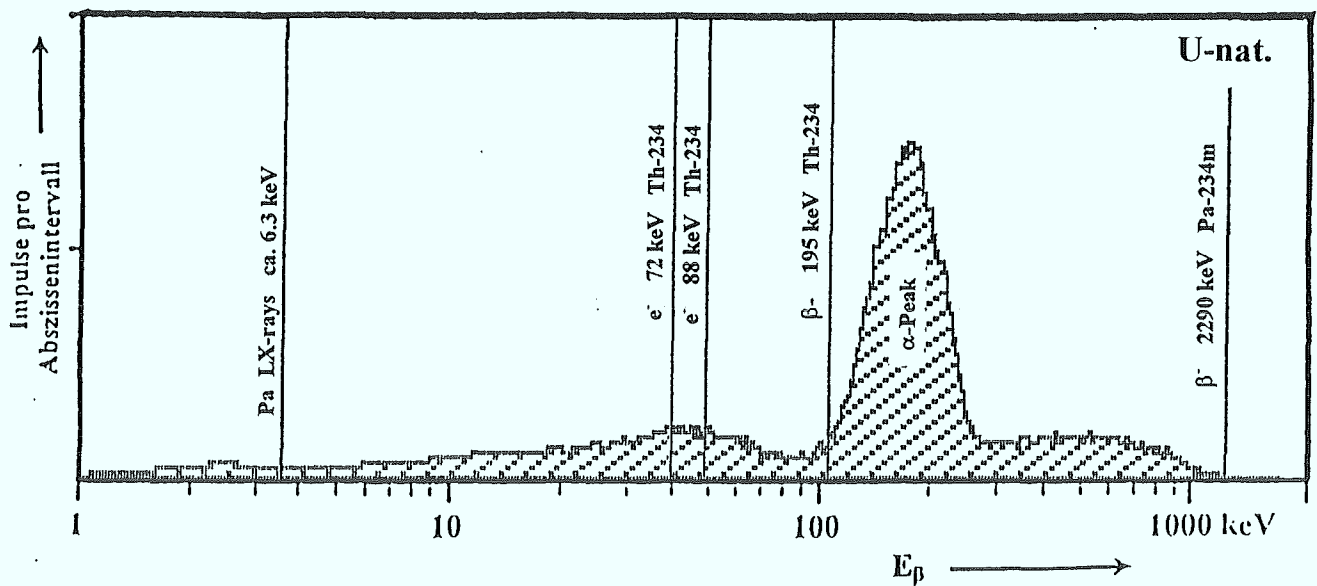
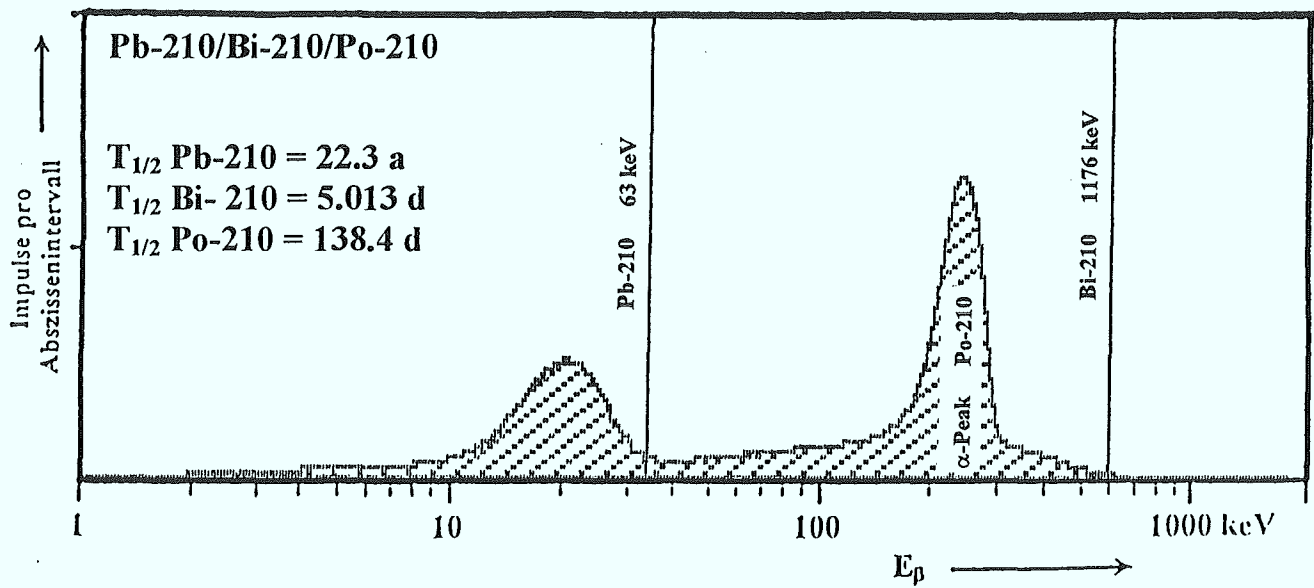
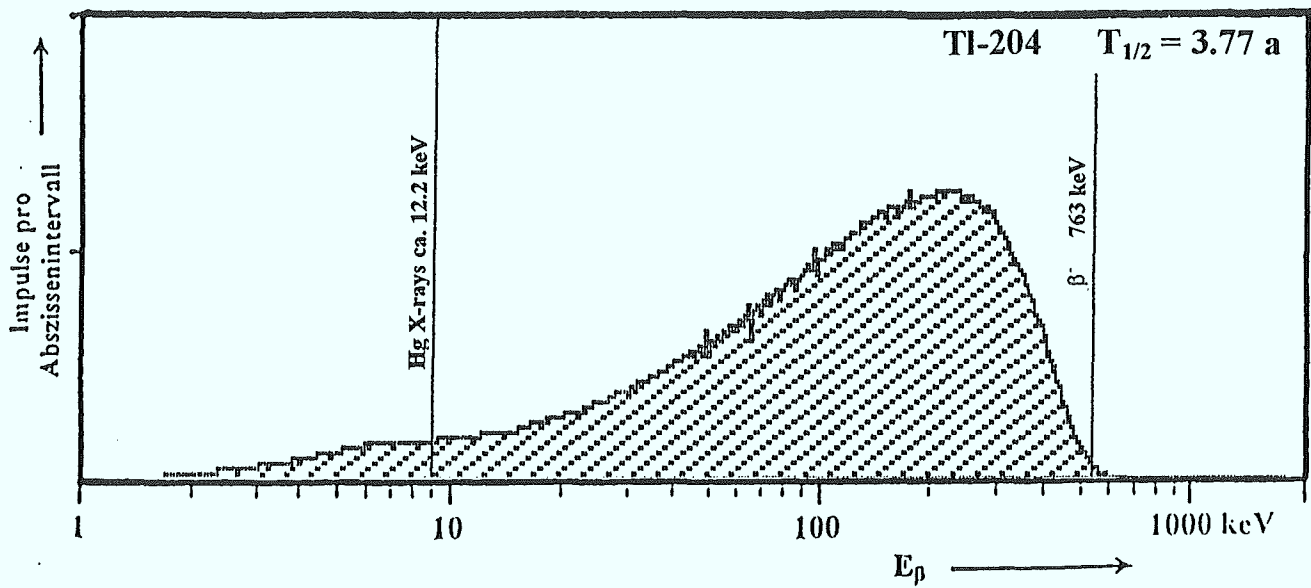


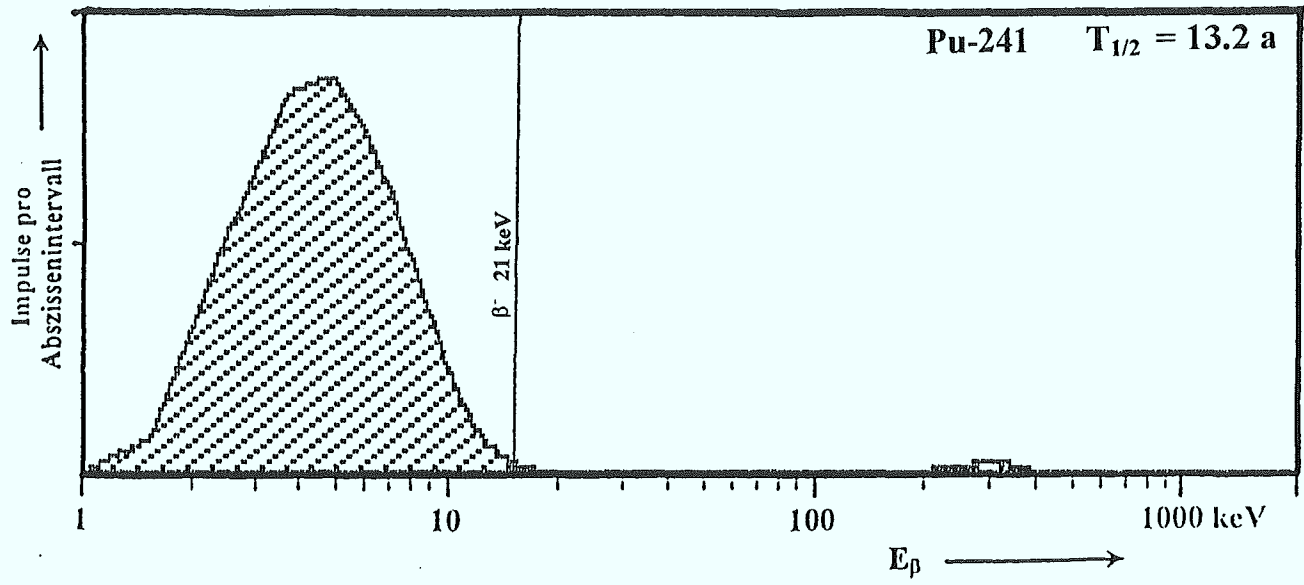












Jül-3066
Mai 1995
ISSN 0944-2952