Universität zu Köln Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät Abteilung Nuklearchemie PD. Dr. Erik Strub

HERSTELLUNG VON CS-137-STANDARDS FÜR DIE MESSUNG VON BODEN- UND PILZPROBEN MIT GAMMASPEKTROMETRIE

Schriftliche Hausarbeit im Rahmen der Ersten Staatsprüfung für das Lehramt an Gymnasien/Gesamtschulen, dem Landesprüfungsamt für Erste Staatsprüfungen für Lehrämter an Schulen – Außenstelle Köln – vorgelegt von:

Revidierte Version

Christian Schütz

Köln, den 01.04.2016

Inhaltsverzeichnis

I.	I. Abbildungsverzeichnis III			
II.	Tał	pellenverzeichnis	IV	
1.	Ein	leitung und Motivation	.1	
1	.1	Historischer Hintergrund	.1	
1	.2	Vorarbeiten	. 2	
1	.3	Aufgabenstellung	.4	
1	.4	Theoretische Grundlagen	. 5	
	1.4	.1 Cäsium	. 5	
	1.4	.2 Zerfallsschema	. 5	
2.	Pri	nzipien und Methoden der Messung	.9	
2	.1	Grundlagen zur Messung radioaktiver Strahlung	.9	
2	.2	Funktion eines Halbleiterdetektors	11	
2	.3	Gammaspektrometrie	13	
2	.4	Effizienzkurve eines Germanium-Detektors	15	
2	.5	Absorption	17	
2	.6	Selbstabsorption	17	
2	.7	Geometrische Einflüsse	18	
2	.8	Standardpräparate	20	
2	.9	Wiederfindungsrate	20	
2	.10	Berechnungen	21	
	2.1	0.1 Fehlerrechnung	21	
	2.1	0.2 Statistische Auswertung der Messdaten	21	
3.	Erg	ebnisse und Diskussion	22	
3	.1	Energiekalibrierung des Detektors	22	
3	.2	Vorversuche	24	

3.2	.1 Bestimmung des Kalibrierfaktors	
3.2	.2 Verdünnungsreihe	
3.2	.3 Pipettiergenauigkeit	
3.2	.4 Vergleich zweier Analyseprogramme	
3.2	.5 Untersuchung der Geometrieeffekte	
3.2	.6 Bestimmung der absoluten Aktivität	
3.3	Auswahl einer Matrix für die Boden und Pilz-Standards	
3.4	Herstellung der Boden- und Pilz-Standards	
3.5	Gammaspektrometrische Messung der Standards	
3.6	Untersuchung eines Standardspektrums	
3.7	Relative Effizienz	
4. Zus	sammenfassung, Abschlussdiskussion und Ausblick	
4.1	Zusammenfassung	
4.2	Diskussion	
4.3	Ausblick	
III. Lit	eraturverzeichnis	V
IV. Ar	ihang	VIII
V. Er	klärung der Selbstständigkeit	XIII

I. Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Europakarte mit farblicher Kennzeichnung der Cäsium-
Deposition [5]
Abbildung 2: Zerfallsschema von Cs-137 [25]
Abbildung 3: Cs-137 Deposition in Deutschland nach dem Unfall von
Tschernobyl [5]6
Abbildung 4: Cäsiumkreislauf im Ökosystem Wald. [23]
Abbildung 5: Energieabhängigkeit der Absorptionskoeffizienten in Pb [2] 11
Abbildung 6: Das Bändermodell [29]11
Abbildung 7: Schematische Darstellung einer typischen Messanordnung [3]. 13
Abbildung 8: Gammaspektrum einer Probe [2] mit zwei verschiedenen
Gammaenergien14
Abbildung 9: Visualisierung der Photonenabsorption am Detektor [2]15
Abbildung 10: Typische Nachweiswahrscheinlichkeiten verschiedener
Detektoren [3]
Abbildung 11: Vergleich eines punktförmigen und ausgedehnten Präparates
[18]
Abbildung 12: Gammaspektrum von Eu-152
Abbildung 13: Probenhalter
Abbildung 14: Lineare Anpassung an die Verdünnungsreihe27
Abbildung 15: Lineare Anpassung mit Null-Durchgang
Abbildung 16: Spektrum und Fitergebnisse von FP 2 mit GammaVision3231
Abbildung 17: Spektrum und Fitergebnisse von FP 2 mit SciDAVis32
Abbildung 18: Verschließbare Probenbehälter
Abbildung 19: Spektrum von Troisdorf 1.4

II. Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Bestimmung des Kalibrierfaktors	25
Tabelle 2: Zählraten der Verdünnungen der Cs-137-Lösung	26
Tabelle 3: Zählraten dreier Proben gleicher Menge an Cs-137-Lösung	30
Tabelle 4: Vergleich der Zählraten	32
Tabelle 5: Ergebnisse der Abstandsmessungen	34
Tabelle 6: Geometrisches Verhältnis	34
Tabelle 7: Berechnung der absoluten Aktivität	35
Tabelle 8: Durchschnittliche Dichte der untersuchten Medien	38
Tabelle 9: Gemessenen scheinbaren Aktivitäten der Bodenproben	40
Tabelle 10: Gemessenen scheinbaren Aktivitäten der Pilzproben	41
Tabelle 11: Komponenten eines Standardspektrums	44
Tabelle 12: Vergleich der relativen Effizienzen in den Standards	46
Tabelle 13: Zusammenfassung der Ergebnisse der Standardpräparate	48

1. Einleitung und Motivation

1.1 Historischer Hintergrund

Über ein Vierteiljahrhundert ist vergangen, seit sich die Nuklearkatastrophe von Tschernobyl am 26. April 1986 in Block 4 des Kernkraftwerkes Tschernobyl ereignete.

Geplant war die Simulation eines vollständigen Stromausfalls, doch der Versuch geriet auf Grund schwerer Verstöße gegen die Sicherheitsvorschriften und konstruktionsbedingter Eigenschaften des mit Graphit moderierten Kernreaktors außer Kontrolle.

Ein unkontrollierter Leistungsanstieg im Reaktorkern erhitzte Wasser, Graphit, Steuer- und Brennstäbe so weit, bis es zu mehreren Explosionen im Bereich des Reaktors kam. Durch die Explosionen und den anschließenden Brand des Graphits wurden erhebliche Mengen radioaktiven Materials in die Umwelt freigesetzt, die wegen der hohen Temperaturen des Graphitbrandes in große Höhen befördert wurden. Nach der Internationalen Bewertungsskala für nukleare Ereignisse (kurz: INES) wird der Unfall mit Kategorie INES 7 gelistet [11].

Ein starker Ostwind in den Folgetagen der Katastrophe sorgte für die großräumige Verteilung des radioaktiven Materials über ganz Europa [12]. Regionen, die infolge des radioaktiven Niederschlags kontaminiert wurden, weisen auch heute noch eine erhöhte Aktivität langlebiger Radionuklide auf, darunter Sr-90 mit einer Halbwertszeit von 28,78 a und Cs-137 mit einer Halbwertszeit von 30,17 a.

Cs-137 zählt zu den wichtigsten freigesetzten Radionukliden [24]. In Abhängigkeit von der Beschaffenheit des Erdreiches wird Cs-137 unterschiedlich stark fixiert, vor allem im Ökosystem Wald als Teil eines biologischen Kreislaufes. Die in Waldböden anzutreffende geringe Tiefenverlagerung von Cs-137 wird insbesondere im Vergleich der gammaspektrometrischen Untersuchungen typischer Wald-Produkte (in dieser Arbeit: Wildpilze) mit Erzeugnissen landwirtschaftlicher Produktion deutlich [23]. Thema dieser schriftlichen Abschlussarbeit ist die Herstellung von Cs-137 imprägnierten Boden- und Pilz-Standards. Darüber hinaus wird der Fragestellung nachgegangen, inwiefern durch die Nutzung dieser Standards die quantitative Analyse der Cäsium-Kontamination von realen Boden- und Pilzproben gegenüber einer üblichen Messung mit einem absolut kalibrierten Detektor verbessert werden kann.

1.2 Vorarbeiten

In der Arbeit "Gamma-Spektrometrische Bestimmung von Cs-137 aus dem Tschernobyl-Fallout in europäischen Wildpilzen" von P. Sonnauer wurde bereits der Versuch unternommen, aus den absoluten spezifischen Aktivitäten von Cs-137 in Wildpilzen einen Umrechnungsfaktor zu bilden, der Rückschlüsse auf die Bodenkontamination am Fundort der Pilze zulässt [21].

Dazu wurden zunächst verschiedene Wildpilze entweder selber gesammelt oder käuflich erworben. Die Fundorte der gesammelten Pilze konnten regional eindeutig zugeordnet werden, wohingegen bei den erworbenen Pilzen nur eine mäßig genaue Eingrenzung des Ursprungsgebietes möglich war.

Nach Trocknung und Zerkleinerung wurden die Pilze mit einem absolut kalibrierten Detektor gammaspektrometrisch untersucht und mit den Bodenkontaminationen an den Fundorten ins Verhältnis gesetzt.

Die dazu notwendigen Werte der Bodenkontaminationen wurden dem Atlas-Projekt ("Atlas of Caesium Deposition on Europe after the Chernobyl Accident", [5]) der Europäischen Kommission aus den Jahren 1992 bis 1995 entnommen.

Das Atlas-Projekt lieferte im Wesentlichen kartographische Darstellungen der Depositionen radioaktiven Materials, das bei der Havarie des Kernreaktors von Tschernobyl freigesetzt wurde. Dazu wurden in ganz Europa Messungen von Bodenproben durchgeführt und aus diesen umfangreichen Daten, mit Hilfe entsprechender Interpolationsverfahren, Landkarten erstellt, die unterschiedliche Bodenkontaminationen farblich differenzieren. In einigen Ländern, z.B. der Balkanhalbinsel und Sizilien, fehlen Messdaten, weshalb diese Länder in der Landkarte weiß markiert sind.

Das dabei angewandte Messverfahren wird als SAL-Methode (soil sample analysis in laboratory) bezeichnet. Die Entnahmetiefe der Bodenproben variiert von Land zu Land, beträgt jedoch mindestens 5 cm und maximal 30 cm. Seltener wurden auch Luftmessungen (AGS, airborne gamma-spectrometry) oder in-situ (field gamma-spectrometry) und mobile (MGS, mobile gammaspectrometry) gammaspektrometrische Untersuchungen durchgeführt, die zur Bestimmung der Bodenkontaminationen jedoch nicht verwendet wurden.

Eine aus diesen Daten resultierende Europakarte ist in Abbildung 1 zu sehen. Die in den farblich markierten Bereichen zu erwartende Cäsium-Aktivität nimmt von dunkelrot (1480 kBq/m²) bis blass-gelb (2 kBq/m²) ab. Darüber hinaus existiert für jedes Land, in dem Messungen durchgeführt wurden, eine detaillierte Karte.



Abbildung 1: Europakarte mit farblicher Kennzeichnung der Cäsium-Deposition [5].

Der von Sonnauer nach diesem Verfahren ermittelte Umrechnungsfaktor ist jedoch allenfalls als "halbquantitativ" ([21], S.54) zu bezeichnen. Die dem Atlas-Projekt zugrunde liegenden Werte der Bodenkontamination behaften den ermittelten Umrechnungsfaktor mit einer großen Unsicherheit: Zum einen sind die Abstände zwischen den einzelnen Entnahmestellen relativ groß, und zum anderen lässt die Angabe der Werte in Form von Kontaminationsintervallen lokale Aktivitätsschwankungen unberücksichtigt.

Sonnauer argumentiert, dass zur Verifizierung des Umrechnungsfaktors unmittelbar an den Pilzfundorten Bodenproben entnommen und analysiert werden sollten. Dann wären präzisere Aussagen über den Zusammenhang zwischen Boden- und Pilzkontamination und eine detaillierte Diskussion weiterer Einflussfaktoren möglich. Erst aus diesen Daten ermittelte art- und bodenspezifische Umrechnungsfaktoren könnten dann zur Verifizierung oder Falsifizierung eines Zusammenhanges zwischen Boden- und Pilzkontamination herangezogen werden ([21], S.54).

1.3 Aufgabenstellung

Die Bestimmung der absoluten Aktivität einer Messprobe erfolgt im Allgemeinen vermittels zertifizierter Standardpräparate. Dabei kann entweder ein Detektor mittels geeigneter Präparate kalibriert und so Geometrie und Effizienzeffekte berücksichtigt werden. Alternativ können aber auch Standardpräparate eingesetzt werden, die den Messproben möglichst ähneln, damit schwer zu erfassende Korrektionsfaktoren wie Absorption, Rückstreuung, geometriebedingte Effekte usw. entfallen. [19]

Thema dieser Arbeit ist die Herstellung und Untersuchung solcher Standardpräparate aus Pilz- und Bodenproben. Speziell handelt es sich um Cs-137-Standards. Dazu wurden nicht kontaminierte Materialien Zuchtchampignons und Bodenproben aus tieferen Erdschichten – ausgewählt und mit einer bekannten Cs-137-Aktivität imprägniert. Die Materialien für die Standardpräparate wurden so gewählt, dass sie bezüglich ihrer Form und Zusammensetzung an typische Realproben heranreichen. Aus den gammaspektrometrischen Untersuchungen wurden für jedes der hergestellten Standardpräparate relative Effizienzen abgeleitet, die die Absolutbestimmung von Realproben ermöglichen. Sofern sich die zu untersuchenden Proben und die Standards hinreichend ähnlich sind, erübrigt sich so die Korrektur von Geometrie- und Absorptionseffekten vollständig.

1.4 Theoretische Grundlagen

1.4.1 Cäsium

Cäsium ist ein Element der 1. Hauptgruppe und zählt zu den Alkalimetallen. Da elementares Cäsium stark reaktiv ist, kommt es in der Natur nur in Form von Verbindungen vor. Als anisotopes Element existiert in der Natur außerdem nur das stabile Cs-133.

Cäsium wurde im Jahre 1861 durch spektralanalytische Untersuchungen von Mineralwasser aus Dürkheim von Gustav Robert Kirchhoff und Robert Wilhelm Bunsen entdeckt. Es zeigt, wie alle Alkalimetalle, eine charakteristische Flammenfärbung und wurde nach seinen zwei blauen Spektrallinien benannt. Cäsium bedeutet, nach dem lateinischen *caesius*, himmelblau.

Öffentliche Beachtung fand vor allem das radioaktive Isotop Cs-137, als Produkt der Kernspaltung von Uran, welches in größeren Mengen bei der Reaktorkatastrophe von Tschernobyl am 26. April 1986 in die Umwelt gelangte.

1.4.2 Zerfallsschema

Cs-137 ist ein β -Strahler und zerfällt mit einer Halbwertszeit von 30,17 a zu Ba-137. Der größte Anteil (94%) zerfällt in einen isomeren Zustand des Ba-137 (¹³⁷Ba*). Geht diese Spezies in den Grundzustand über, emittiert sie Gammastrahlung mit einer Energie von 662 keV. Lediglich 6% der β -Zerfälle des Cs-137 enden unmittelbar im Grundzustand des Ba-137 (s. Abbildung 2).



Abbildung 2: Zerfallsschema von Cs-137 [25].

1.4.3 Cs-137-Kontamination von Böden und Pflanzen

Nach dem Reaktorunfall im Kernkraftwerk Tschernobyl im April 1986 wurden Radionuklide in die Atmosphäre freigesetzt, die sich über ganz Europa verteilten. Insbesondere das langlebige Cs-137, welches in großen Mengen bei der Kernspaltung von Uran anfällt, ist und bleibt auch weiterhin von Bedeutung.

Das radioaktive Cäsium-Isotop kann auf Grund atmosphärischer Deposition auch heute noch in Böden und Pflanzen nachgewiesen werden. So ist der deutschlandweiten kartographischen Darstellung der Cs-137 Aktivität in Böden zu entnehmen, dass im Gebiet der Bundesrepublik Deutschland im Mittel Aktivitäten von 2-40 kBq/m² zu erwarten sind. Die Karte der Cs-137 Deposition in Deutschland (s. Abbildung 3) beruht auf 1371 Einzelmessungen, die nach der SAL-Methode aufgenommen wurden. Die Bodenproben entstammen einer Tiefe von 5-20 cm [5].



Abbildung 3: Cs-137 Deposition in Deutschland nach dem Unfall von Tschernobyl [5].

süddeutschen Im Raum (nahe Traunstein) konnten sogar Bodenkontaminationen von bis zu 100 kBq/m² ermittelt werden [4]. Unterschiedliche Wesentlichen Aktivitäten sind im auf die Luftmassenbewegungen nach dem Reaktorunfall zurückzuführen. Lokale sind durch kleinräumig unterschiedliche Schwankungen Niederschlagsverteilungen zu erklären. Es ist zu bemerken, dass das in den Untersuchungen gemessene Cs-137 nicht alleine auf den Unfall von Tschernobyl zurückzuführen ist. So stammt ein Teil des Gesamtvorkommens auch aus Atomwaffentests. Dieser Anteil ist aber im Allgemeinen in Mitteleuropa gegenüber dem Tschernobyl-Beitrag vernachlässigbar.

Die räumliche Verteilung von Cs-137 in Böden ist von mehreren Faktoren abhängig. Dabei spielen unter anderem die Wasserbewegungen und die Sorptionseigenschaften des Bodens eine entscheidende Rolle. Radioaktives Cäsium wandert in Böden (mit Ausnahme von Sandböden) nur sehr langsam entlang der vertikalen Richtung, sodass etwa 80% der Cs-Aktivität in den oberen 15 cm des Bodens verbleiben [7]. Die geringe Tiefenverlagerung folgt aus der Fixierung von Cäsium in den Kristallgittern von Tonmineralen, welche aus Schichtsilikaten zusammengesetzt sind. Zwischen den negativ geladenen Silikatschichten werden Kationen zum Ladungsausgleich eingelagert. Auf Grund von Größe und Polarisierbarkeit passen Cäsium-Ionen gut in diese Zwischenschichten und werden dort fixiert [17] [22].

Im Ökosystem Wald durchläuft Radiocäsium einen Kreislauf (s. Abbildung 4) und wird in verschiedenen Kompartimenten gespeichert:

- in der noch nicht zersetzten Streuauflage,
- nach Zersetzung durch Bodenorganismen im Humus,
- in Pflanzen, Pilzen und Mikroorganismen nach Aufnahme über Wurzel bzw. Hyphen.

Der Kreislauf schließt sich, sobald die Biomasse abstirbt. Radiocäsium kann diesem Kreislauf etwa durch die menschliche Nutzung typischer Wald-Produkte (Holz, Pilze, Beeren etc.) entzogen werden. Andernfalls kann radioaktives Cäsium langfristig durch Tiefenverlagerung ins Grundwasser gelangen oder in Tonmineralen fixiert werden. [23]



Abbildung 4: Cäsiumkreislauf im Ökosystem Wald. [23]

2. Prinzipien und Methoden der Messung

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Messung von Gamma-Strahlern mit Halbleiterdetektoren thematisiert. Die Abschnitte 2.1 - 2.4 beschäftigen sich schwerpunktmäßig mit dem Funktionsprinzip und dem Aufbau eines Halbleiterdetektors. In den Abschnitten 2.5 - 2.9 werden spezielle Effekte erläutert, die mit der Messung von Proben verbunden sind und deren Bedeutung in Bezug auf Vergleichsmessungen mit Standardpräparaten diskutiert. Abschließend werden die mathematischen Auswertungsmethoden der im experimentellen Teil angewandten Methoden behandelt (Kap. 2.10).

2.1 Grundlagen zur Messung radioaktiver Strahlung

Die Messung radioaktiver Strahlung ist auf Grund von Wechselwirkungen zwischen γ-Teilchen und Materie möglich. Als relevante Wechselwirkungen sind der Photoeffekt, Compton-Effekt und die Paarbildung zu benennen.

Beim Photoeffekt wird ein einfallendes Gammaquant von einem Hüllenelektron eines Atoms absorbiert und durch die erhöhte kinetische Energie aus der Atomhülle gelöst. Um ein Elektron zu lösen, muss die Energie des einfallen γ -Teilchens größer sein als die Bindungsenergie des Elektrons, die auch als Austrittsarbeit bezeichnet wird. Nachdem ein Elektron aus der Schale gelöst wurde, welches weitere Atome anregen kann, rückt ein Elektron aus einer darüber liegenden Schale, einem energetisch höherem Niveau, nach, wodurch dieses an Energie verliert. Die Energiedifferenz äußert sich in der Emission von Röntgenstrahlung und wird auch als Röntgenfluoreszenz bezeichnet.

Mit zunehmender Energie des Gammaquants wird der Compton-Effekt wahrscheinlicher als der Photoeffekt. Im Gegensatz zu diesem wird beim Compton-Effekt das Gammaquant an einem ruhenden Hüllenelektron gestreut, wobei es einen Teil seiner Energie an das Elektron abgibt und mit veränderter Energie bestehen bleibt.

Übersteigt die Photonenenergie einen Wert von 1,022 MeV, nimmt die Wahrscheinlichkeit der Teilchen-Antiteilchen-Bildung aus dem einfallenden Photon, also der Elektron-Positron-Bildung, stark zu. Die Paarbildung geschieht auf Grund der Impulserhaltung in Kernnähe, da der Kern als Stoßpartner fungiert. Somit findet die Paarbildung auch innerhalb des Coulombfeldes des Kerns statt. Das Photon zerfällt bilateral zu Elektron und Positron, wobei die Energie des Photons in die Ruheenergie der beiden entstehenden Teilchen umgewandelt wird, die je 511 keV beträgt. Der Winkel, in dem Elektron und Positron sich voneinander entfernen ist abhängig von der kinetischen Energie, die sie nach der Paarbildung besitzen.

Die Wahrscheinlichkeit, mit der eine dieser Wechselwirkungen in Erscheinung tritt, wird durch den Wirkungsquerschnitt σ beschrieben, welcher überwiegend von zwei Faktoren abhängt: der Energie des einfallenden Photons und der Kernladungszahl Z des Targets. Der Wirkungsquerschnitt hat die Dimension Fläche und wird als Einheit in barn [b] angegeben, wobei 1b = 10^{-28} m². Die Wirkungsquerschnitte verhalten sich zur Kernladungszahl Z und zur Energie des γ -Teilchens nach folgenden Proportionalitäten [2]:

$$\sigma_{Photoeffekt} \propto \frac{Z^5}{E_{\gamma}^{-3,5}} \tag{1}$$

$$\sigma_{Compton-Effekt} \propto \frac{Z}{E_{\gamma}}$$
(2)

$$\sigma_{Paarbildung} \propto Z^2 \cdot \ln \left(E_{\gamma} \right) \tag{3}$$

So geht aus nachfolgender Abbildung (s. Abbildung 5) hervor, dass Photonen mit einer Energie, die weniger als 511 keV beträgt, in Blei überwiegend durch den Photoeffekt absorbiert werden. Bei Energien von 0,511-5,11 MeV nimmt jedoch der durch den Compton-Effekt gestreute Anteil zu. Ab einer Photonenenergie von ungefähr 10 MeV wird die Paarbildung zum tragenden Effekt.



Abbildung 5: Energieabhängigkeit der Absorptionskoeffizienten in Pb [2].

Die totale Absorptionskurve ergibt sich aus der Summe der Wirkungsquerschnitte. Sie entspricht dem Verlauf der durchgezogenen Linie in der obenstehenden Abbildung:

$$\sigma_{total} = \sigma_{Photoeffekt} + \sigma_{Compton-Effekt} + \sigma_{Paarbildung} \tag{4}$$

In allen Fällen der Wechselwirkung dissipiert die Energie eines Gammaquants in das elektronische System der wechselwirkenden Materie, so dass sie in geeigneten Detektionssystemen registriert werden kann.

2.2 Funktion eines Halbleiterdetektors

Ob ein bestimmtes Material Isolator, Halbleiter oder Leiter ist, kann mit Hilfe des Bändermodells erklärt werden (s. Abbildung 6). Dabei ist der entscheidende Faktor die Energielücke zwischen Valenzband und Leitungsband.



Abbildung 6: Das Bändermodell [29].

Isolatoren weisen eine Energielücke auf, die so groß ist, dass kein Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt werden kann. Valenz- und Leitungsband von elektrischen Leitern überlappen hingegen, weswegen Elektronen schon beim Anlegen einer beliebig kleinen Feldstärke in einen höheren Energiezustand wechseln können. Die Energielücke von Halbleitern stellt einen Mittelweg zwischen diesen beiden Formen dar, sodass durch schon geringfügige Anregung Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband übergehen können. Die Leitfähigkeit von Halbleitern kann durch Dotierung, das Einbringen von Störstellen, beeinflusst werden. Dabei werden Fremdatome mit einer anderen Anzahl an Valenzelektronen in den Halbleiterkristall eingebracht, wodurch es zu einem Überschuss bzw. Mangel an Elektronen kommt. Bringt man in einen Germaniumkristall, ein Element der 5. Hauptgruppe ein, so liegt ein Elektronenüberschuss vor und der Leiter wird n-Leiter genannt. Bringt man jedoch dreiwertige Atome wie Bor ein, so liegt ein Elektronenmangel vor, sogenannte Löcher, und der Leiter wird als p-Leiter bezeichnet.

Die im dotierten Halbleiter vorhandenen Elektronen können zum Ladungstransport genutzt werden. Sind die p- und n-Bereiche verbunden, so können die Elektronen, welche durch die n-Dotierung zu viel sind, in die Elektronenlöcher der p-Dotierung diffundieren. Dabei entsteht eine Verarmungszone, in der die Leitfähigkeit durch fehlende freie Ladungsträger abnimmt. Ebenso wird durch das Wandern der freien Ladungsträger zu den Randgebieten (Ladungstrennung) des Halbleiters ein elektrisches Feld aufgebaut. Um die Verarmungszone, in der γ -Teilchen letztlich wechselwirken sollen, möglichst groß zu halten, wird eine Spannung in Sperrrichtung angelegt, die eine Ladungstrennung begünstigt.

Zur Messung eines Gammaspektrums können zum Beispiel Szintillatoren (z.B. NaI-Kristalle) verwendet werden oder, wie bei den hier zu Grunde liegenden Versuchen, Halbleiterdetektoren (Reinst-Ge-Detektoren). Die Energielücke von Ge-Detektoren beträgt ≈ 0.7 eV und ist damit wesentlich kleiner als die Energielücke in NaI-Detektoren, welche ungefähr 20 eV beträgt. Die Größe der Energielücke bedingt letztlich die gute Energieauflösung der Ge-Detektoren, da im Halbleiter ein einzelnes γ -Teilchen eine größere Anzahl an Elektron-Loch-Paaren erzeugen kann. Um die Anzahl thermisch angeregter Übergänge vom Valenz- ins Leitungsband zu minimieren, werden Ge-Detektoren gekühlt.

2.3 Gammaspektrometrie

Wie eine typische Messanordnung zur Gammaspektrometrie aussehen kann, zeigt die nachfolgende Abbildung (s. Abbildung 7). Die räumliche Ausdehnung der Proben und wie sie auf dem Ge-Detektor platziert werden, bestimmt den sogenannten Geometriefaktor.



Abbildung 7: Schematische Darstellung einer typischen Messanordnung [3].

Wie zuvor erwähnt, können Gammateilchen auf drei fundamentale Arten mit Materie wechselwirken: über den Photoeffekt, Compton-Effekt oder die Paarbildung. Finden diese Effekte innerhalb des Detektionsvolumens statt, so werden die auf den Detektor auftreffenden Impulse detektiert, verstärkt, digitalisiert und je nach ihrere Impulshöhe mittels Vielkanalanalysator bestimmten Kanälen zugeordnet.

Die Energiekalibrierung des Detektors mit einem kalibrierten Standard, zum Beispiel Eu-152, lässt dann Rückschlüsse von der Kanalnummer auf die Energie des detektierten Teilchens zu (Energiekalibrierung). Ein mit dieser Methode aufgenommenes Spektrum ist in nachfolgender Abbildung dargestellt.



Abbildung 8: Gammaspektrum einer Probe [2] mit zwei verschiedenen Gammaenergien.

Der Photopeak (siehe Punkt 1 und 2), auch Totalabsorptionslinie, ergibt sich aus der Überlegung, dass die Energie eines im Detektor eintreffenden γ -Teilchens über den Photoeffekt von einem Elektron in Form von kinetischer Energie total absorbiert wird und somit seine gesamte Energie an die Apparatur überträgt.

Ein γ-Teilchen gibt seine Energie jedoch häufig in mehreren aufeinander folgenden Prozessen ab, sodass ein Photon z.B. erst nach mehreren Compton-Streuungen in einem Photoeffekt absorbiert wird.

Unter Punkt 3 befindet sich der Single escape Peak und unter Punkt 4 der Double escape Peak, welche dadurch entstehen, dass das ab einer Energie von 1,022 MeV entstehende Positron aus der Paarbildung mit einem Elektron im Detektor ein Positronium bildet, das anschließend in zwei Gammaquanten von je 511 keV zerstrahlt. Je nachdem, ob eines oder beide Teilchen den Detektor ohne Energiedeposition verlassen, entstehen diese Linien, die immer um einen festen Energiebetrag kleiner sind als der Photopeak. Punkt 8 ist die 511 keV – Linie, die durch eine Elektron-Positron-Annihilierung außerhalb des Detektors zu erklären ist. Auf Grund der unterschiedlichen Richtungen, in die die dabei entstehenden Photonen emittiert werden, dringt nur eines dieser Photonen in den Detektor ein und bildet schließlich diesen Peak. Zum Beispiel ²²Na zerfällt in einen β^+ -Prozess, weswegen hier eine deutliche 511 keV – Linie zu erwarten ist. Das Compton-Kontinuum und die Compton-Kante (Punkt 5 und 6) ergeben sich aus den verschiedenen Streuwinkeln θ und Energien der Gammaquanten.

Der unter Punkt 7 sichtbare Peak wird Rückstreupeak genannt. Dieser entsteht, wenn ein γ -Teilchen an der Rückwand des Detektors einen Compton-Stoß in einem Winkel von etwa 180° durchführt, einen Teil seiner Energie verliert und wieder in den Detektor eindringt. Wird ein γ -Teilchen zurückgestreut, dringt es nun mit verminderter Energie in den Detektor ein und deponiert dort seine restliche Energie. Bei einer Compton-Streuung unter maximaler Energieabgabe beträgt das Argument im Kosinus $\theta = 180^{\circ}$, was jedoch nicht bei jedem Stoß exakt der Fall sein muss und der Rückstreupeak deswegen breiter erscheint.



Abbildung 9: Visualisierung der Photonenabsorption am Detektor [2].

Die obige Abbildung (s. Abbildung 9) verdeutlicht nochmals das Geschehen innerhalb des Detektionsvolumens, wenn Gammateilchen mit dem Detektormaterial wechselwirken. Die Darstellung ist nicht maßstäblich. Die Verzweigungslinien gehören zu Elektronen, die wellenförmigen Linien zu Gammateilchen.

2.4 Effizienzkurve eines Germanium-Detektors

Die Effizienz eines Detektors beschreibt die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit von Strahlung. Um die Effizienzkurve eines Detektors zu ermitteln, werden gewöhnlich Punktquellen in einem bestimmten, aber konstanten Abstand zum Detektor gemessen. Dazu werden entweder mehrere monoenergetische Nuklide, Mischpräparate oder Präparate wie Eu-152 mit kaskadenartigen Gamma-Übergängen verwendet, um einen Energiebereich von etwa 80 - 2000 keV abzudecken. Die Effizienzkurven beziehungsweise Nachweiswahrscheinlichkeiten verschiedener Detektoren zeigt die nachfolgende Abbildung.



Abbildung 10: Typische Nachweiswahrscheinlichkeiten verschiedener Detektoren [3].

Die Kurven 2, 3 und 4 zeigen den typischen Verlauf der Effizienz von Ge-Detektoren. Der Abfall hin zu niedrigen Energien ist durch die Totschicht auf den Fronten der Germanium-Detektoren zu erklären. In ausgedehnten Proben fällt der Abfall auf Grund von Selbstschwächung noch stärker aus. Im Bereich höherer Energien ist der Verlauf näherungsweise linear abfallend, da bei höherer Gammaenergie die Wechselwirkung mit dem Detektormaterial zunehmend unwahrscheinlich wird.

Misst man etwa die Effizienzkurve eines Mischpräparates in zwei verschiedenen Abständen, so fällt auf, dass die Nachweiswahrscheinlichkeit einer bestimmten Energie hin zu größeren Abständen abnimmt. Relevant ist diese Tatsache bei der Messung ausgedehnter Proben, da sie Strahlung aus unterschiedlichen Ebenen emittieren und nicht für jede Ebene dieselbe Nachweiswahrscheinlichkeit gilt.

2.5 Absorption

Strahlung wird auf dem Weg durch Materie geschwächt und in eine andere Energieform umgewandelt. Betrachtet man eine sehr dünne Schichtdicke dx, wird jede Strahlungsintensität *I* um den gleichen Bruchteil abgeschwächt:

$$dI = -\alpha \cdot I \cdot dx \tag{5}$$

Dabei ist der lineare Schwächungskoeffizient α eine Stoffkonstante und weist die Dimension m^{-1} auf. Die Abschwächung der Strahlungsintensität innerhalb einer größeren Schichtdicke x ergibt sich durch Integration. Die exponentielle Abnahme der Strahlungsintensität wird als das Lambert-Beersche Gesetz bezeichnet [13]:

$$I(x) = I(0) \cdot e^{-\alpha x} \tag{6}$$

Äquivalent zur Bestimmung der Halbwertszeit von radioaktiven Zerfällen kann für jedes Absorbermaterial die Halbwertsdicke bestimmt werden. Die Halbwertsdicke wird hier als $x_{1/2}$ bezeichnet. Sie gibt an, nach welcher im Absorber zurückgelegten Strecke die Intensität einer bestimmten Strahlungsenergie nur noch die Hälfte ihres Anfangswertes beträgt. Demnach gilt für die Halbwertsdicke eines Absorbers:

$$x_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\alpha}$$
 (7)

Somit ist die Halbwertsdicke unmittelbar abhängig vom linearen Schwächungskoeffizienten. [13]

Absorptionseffekte treten auch bei Standardpräparaten auf, doch nehmen sie bei Vergleichsmessungen zwischen Standardpräparat und Messprobe nur einen untergeordneten Stellenwert ein. Auf Grund der gleichartigen Beschaffenheit des Standards und der Realprobe ist der Anteil der absorbierten Strahlung im günstigsten Fall identisch und kann vernachlässigt werden.

2.6 Selbstabsorption

Ein weiterer Faktor bei der Messung von radioaktiven Präparaten ist die Selbstabsorption der Präparate. Bei Messungen von Umweltradioaktivität hat man es zumeist mit ausgedehnten Proben zu tun. Gammastrahlung wird aus diesem Grund in der Messprobe anders abgeschwächt als im kalibrierten Standard. Nimmt man an, dass sich die Messprobe mit einer homogen verteilten Aktivität in weitem Abstand zum Detektor befindet, so tritt die Strahlung praktisch senkrecht aus der Probenebene. Die Strahlung wird durch eine Schicht der Dicke *d* abgeschwächt, die typisch für eine solche Messprobe ist. Der Korrektionsfaktor f_s [3] ergibt sich dann zu:

$$f_s = \frac{\mu d}{1 - e^{-\mu d}} \tag{8}$$

Dabei ist μ der lineare Schwächungskoeffizient. Doch bleibt bei dieser Betrachtung unberücksichtigt, dass nicht für alle Volumenelemente der Probe die Nachweiswahrscheinlich des Detektors gleich ist. [3]

Wie schon bei den im vorigen Kapitel erläuterten Absorptionseffekten liegt der Vorteil der Verwendung von Standardpräparaten darin, dass die Eigenschaften des Standards an die zu messenden Realproben angeglichen werden können. Sofern die Absorptionseigenschaften vergleichbar sind, kommt der Effekt der Selbstabsorption bei der Vergleichsmessung nicht zum Tragen.

2.7 Geometrische Einflüsse

Ein radioaktives Präparat emittiert in alle Raumrichtungen Strahlung, von der nur ein geringer Teil vom Detektor erfasst wird. Welcher Anteil letztlich gemessen wird, hängt von der Geometrie der gesamten Zählanordnung ab, aber ebenso von der Geometrie der Quelle und des Detektors im Einzelnen.

Prinzipiell nimmt die detektierte Strahlungsintensität *I* mit zunehmendem Abstand zwischen radioaktivem Präparat und Detektor proportional ab. Diesen Zusammenhang beschreibt das Abstandsquadratgesetz [10]:

$$I \sim \frac{1}{r^2} \tag{9}$$

Streng genommen gilt dieses Gesetz nur für punktförmige Strahlungsquellen. Näherungsweise gilt es auch, wenn die Ausdehnung der Quelle im Vergleich zum Abstand vom Detektor vernachlässigbar ist. Der Geometriefaktor G beschreibt allgemein den Einfluss der Messgeometrie auf die gemessene Zählrate. Der Geometriefaktor wird aus verschiedenen Parametern gebildet, bei punktförmigen Quellen etwa aus dem Abstand h zwischen Strahlungsquelle und Detektor und dem Radius der Blendenöffnung [18]:

$$G = 0.5 \left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + r^2}} \right)$$
(10)

Die untenstehende Abbildung zeigt einen typischen Aufbau zur Messung von β -Strahlung mit einem Zählrohr. Aus ihr wird erkennbar, dass der Raumwinkel α der auf den Detektor treffenden Strahlung (s. Abbildung 11) für alle nicht achsennahen und weit entfernten Präparatteile kleiner werden muss.



Abbildung 11: Vergleich eines punktförmigen und ausgedehnten Präparates [18].

Als Folge eines kleiner werdenden Raumwinkels ist die Abnahme der Zählrate zu beobachten. Diese Gegebenheit gilt für alle Strahlungsarten und muss insbesondere bei ausgedehnten Präparaten berücksichtigt werden.

Zur Berechnung des Geometriefaktors ausgedehnter Präparate muss eine Korrektur durchgeführt werden. Den Bedarf einer Korrektur verdeutlichten zuletzt Messungen punkförmiger Quellen, die sich außerhalb der mittleren Achse und in unterschiedlichen Abständen zum Detektor befanden. Insbesondere für ausgedehnte Proben – wie zum Beispiel unaufgearbeitete Bodenproben – kann eine solche Korrektur relativ komplex sein, insbesondere wenn die Probe auf Grund ihrer niedrigen Gesamtaktivität möglichst nahe am Detektor platziert werden muss. [20]

Auch auf die Bestimmung von Geometriefaktoren kann bei der Verwendung von Standardpräparaten verzichtet werden, wenn Messprobe und Standardpräparat eine hinreichende geometrische Ähnlichkeit aufweisen.

2.8 Standardpräparate

erfüllen Kalibrierte Überprüfung Standardpräparate neben der der Nachweiswahrscheinlichkeit einer bestimmten Messanordnung also die Möglichkeit einer viel einfacheren Bestimmung der absoluten Aktivität einer Messprobe als über die aufwändige absolute Kalibrierung eines Detektors und die Ermittlung von Geometriefaktoren. Standardpräparate müssen dazu bestimmte Eigenschaften mit sich bringen. Zum einen müssen sie der Messprobe hinsichtlich ihrer chemisch-physikalischen, aber auch ihrer geometrischen Eigenschaften ähneln. Wenn für die Standardpräparate die gleichen Nuklide wie für die spätere Messung eingesetzt werden, entfallen in erster Näherung alle Korrekturen für Absorption, Rückstreuung, Effizienz und Geometrie.

Dies war der ausschlaggebende Grund dafür, im Rahmen dieser Arbeit verschiedene Cs-137-Standardpräparate für die Messung von Cs-137 an Pilzund Bodenproben herzustellen und zu charakterisieren.

2.9 Wiederfindungsrate

Ein Kriterium zur Bewertung der Qualität analytischer Verfahren ist die Wiederfindungsrate, kurz WFR. Sie gibt das Mengenverhältnis eines Analyten wieder, der einer Probe hinzugefügt und in dieser wiedergefunden wird [9]:

$$WFR = \frac{x_{IST}}{x_{SOLL}} \cdot 100\% \tag{11}$$

Der Wert x_{IST} entspricht der bekannten Menge des Analyten und x_{SOLL} der in der Probe wiedergefundenen Menge. Qualitätsziel ist eine Wiederfindungsrate von 100%. Je höher die WFR ausfällt, desto weniger Matrixeinflüsse und Verluste hat es während der Probenvorbereitung durch Mörsern, Umfüllen, Extraktion usw. gegeben. Konstante systematische Fehler vermag die Wiederfindungsrate nicht zu entdecken, jedoch kann sie proportionale systematische Abweichungen aufdecken. [9]

2.10 Berechnungen 2.10.1 Fehlerrechnung

Von den im Folgenden dargelegten Größen sind einige Größen einer direkten Messung nicht zugänglich, sondern werden als Funktion von anderen Größen gebildet. Es sei die Größe y eine Funktion f anderer messbarer Größen $x_1, x_2, ..., x_n$ mit den Messunsicherheiten Δx_n :

$$y = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$$
 (12)

Insofern ergibt sich der Fehler der Größe *y* nach dem Gauß'schen Fehlerfortpflanzungsgesetz [16]:

$$\Delta y = \sqrt{\left(\frac{\partial y}{\partial x_1} \cdot \Delta x_1\right)^2 + \left(\frac{\partial y}{\partial x_1} \cdot \Delta x_2\right)^2 + \dots + \left(\frac{\partial y}{\partial x_n} \cdot \Delta x_n\right)^2}$$
(13)

Der Ausdruck $\frac{\partial y}{\partial x_n}$ entspricht der partiellen Ableitung der Funktion $y = f(x_1, x_2, ..., x_n)$ nach der Variablen x_n .

2.10.2 Statistische Auswertung der Messdaten

Aus den empirisch gewonnen Daten wurde an einigen Stellen das arithmetische Mittel berechnet. Liegt eine Beobachtungsreihe $y_1, y_2, ..., y_n$ der Länge n vor, so werden die Eigenschaften der Beobachtungsreihe durch den empirischen Mittelwert

$$\bar{y} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} y_i \tag{14}$$

beschrieben. Die Mittelwerte sind im Folgenden durch einen Querstrich über der jeweiligen Größe gekennzeichnet. [16]

3. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die experimentellen Abläufe, Untersuchungen und Ergebnisse der Herstellung von Cs-137-Standards aus Boden- und Pilzproben ausführlich geschildert.

Nach der Energiekalibrierung des Detektors (Kap. 3.1) und Bestimmung des Kalibrierfaktors (Kap. 3.2.1) wurde zunächst in einer Reihe von Vorversuchen die absolute Aktivität der für die Standardpräparate verwendeten Cs-137-Lösung bestimmt. Dazu wurde mittels einer Verdünnungsreihe (Kap. 3.2.2) eine Geradengleichung ermittelt, die Auskunft über die Zerfallsrate eines definierten Volumens der Cäsium-Lösung gibt. Darüber hinaus wurde ein vereinheitlichendes Pipettier-Verfahren (Kap. 3.2.3) erprobt, um gleichmäßiges Pipettieren zu gewährleisten. Kapitel 3.2.4 beschäftigt sich mit der Frage, inwieweit die ermittelten Zählraten bei der Verwendung unterschiedlicher anderer Analyse-Software übereinstimmen. Anschließend wurde der Einfluss der Versuchsgeometrie (Kap. 3.2.5) auf die Zählrate untersucht und die Aktivität eines bestimmten Volumens der Cs-Lösung bestimmt.

Nach der Auswahl und Untersuchung einer geeigneten Matrix (Kap. 3.3), wurden die Standardpräparate aus den Böden und Pilzen durch Imprägnierung mit der Cs-137-Lösung hergestellt (Kap. 3.4) und gammaspektrometrisch charakterisiert (Kap. 3.5). Abschließend wird das Spektrum eines Standards erläutert, das in einer Langzeitmessung aufgenommen wurden (Kap. 3.6).

3.1 Energiekalibrierung des Detektors

Sämtliche gammaspektrometrischen Untersuchungen, die der vorliegenden Examensarbeit zu Grunde liegen, wurden an einem Ge(Li)-Detektor der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln ausgeführt. Die Messungen wurden zunächst mit Hilfe der Software GammaVision32 (EG&G Ortec, USA) durchgeführt und ausgewertet.

GammaVision32 emuliert über die von der Messelektronik erhaltenen Signale einen Vielkanalanalysator, der die detektierten Ereignisse sortiert und einem bestimmten Kanal zuordnet. Entscheidend ist die vom Detektor ausgehende Pulshöhe des Signals, die proportional zur Energie des Photons ist. Ein Analog-Digital-Wandler rechnet jeden Puls in einen Kanal um, sodass jeder Kanal einer schmalen Bandbreite von Pulshöhen beziehungsweise Spannungen korrespondiert. [15]

Die Energiekalibrierung geschieht in der Regel mit Präparaten, die γ-Teilchen verschiedener Energien emittieren und deren Photopeaks außerdem eine hohe Intensität aufweisen. Um den Photopeaks der Kalibrierpräparate Energien zuordnen zu können, wurden Literaturwerte und Vergleichs-Spektren herangezogen. [26]

Dazu wurden die für die Auswertung relevanten Peaks markiert, worauf GammaVision32 an den Kurvenverlauf des Peaks eine Gauß-Funktion der Form

$$y(x) = A \cdot e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{x - \bar{x}}{\sigma}\right)^2} + u$$
 (15)

anpasst. Dabei entspricht A der Fläche unter der glockenförmigen Kurve beziehungsweise der Anzahl an detektierten Ereignisse im Messzeitraum, x der Kanalnummer, \bar{x} dem Mittelwert, σ der Standardabweichung und u dem Untergrund. Die mittleren Kanalnummern geben die mittleren Positionen der Peaks an. Mehreren Peaks des Spektrums werden diesen Positionen bestimmte Energiewerte E zugewiesen. GammaVision passt zur Kalibrierung an die Wertepaare eine lineare Funktion der Form

$$E(x) = a \cdot x + c \tag{16}$$

an. Der Faktor a entspricht der Steigung der Geraden und c dem y-Achsenabschnitt. Mit Hilfe dieser Geraden kann jedem Kanal eine Energie zugeordnet werden.

Als Kalibrierpräparat wurde Eu-152 verwendet, dessen gemessenes Spektrum in der nachfolgenden Abbildung zu sehen ist. Die rot markierten Peaks wurden zur Kalibrierung herangezogen.



Abbildung 12: Gammaspektrum von Eu-152.

Aus den Postionen der Peaks und den zugewiesenen Energien ergab sich die Kalibriergerade zu:

$$E(x) = 0,273 \ \frac{keV}{Kanal} \cdot x - 3,304 \ keV$$
(17)

3.2 Vorversuche

3.2.1 Bestimmung des Kalibrierfaktors

Um einen Zusammenhang zwischen gemessener Zählrate R und Aktivität A einer Probe herstellen zu können, wird ein Kalibrierfaktor benötigt. Der Kalibrierfaktor k ergibt sich aus dem Quotienten der Aktivität der radioaktiven Quelle und der am Detektor gemessenen Zählrate:

$$k = \frac{A}{R} \tag{18}$$

$$\Delta k = \sqrt{\left(\frac{\Delta A}{R}\right)^2 + \left(\frac{A}{R^2}\Delta R\right)^2}$$
(19)

Als Zählrate wird der Quotient aus der Impulszahl, der Zahl der detektierten Ereignisse, und der Messzeit bezeichnet.

Mittels eines zertifizierten Standards kann also die absolute Aktivität berechnet werden. Zu diesem Zweck wurde hier ein Cs-137-Standard verwendet, der am 01.01.1979 eine Aktivität von 18,0 kBq mit einer Unsicherheit von 2% aufwies. Unter Verwendung der Zerfallsgleichung

$$A(t) = A_0 \cdot exp\left(-\frac{\ln(2)}{t_{1/2}} \cdot t\right)$$
(20)

kann über die Halbwertszeit $t_{1/2} = 30,17$ a von Cs-137 und die bis dato vergangene Zeit t = 37 a die aktuelle Aktivität des Kalibrierpräparates berechnet werden. Demzufolge beträgt die aktuelle Aktivität des zertifizierten Cs-137-Standards (7,69 ± 0,15) *kBq*.

Der Kalibrierstrahler wurde mehrmals am Ge(Li)-Detektor für 60 Minuten gemessen und aus den Impulszahlen der Kalibrierfaktor ermittelt. Die Ergebnisse sind in der unten stehenden Tabelle zu entnehmen.

Messung	Impulszahl	R [1/s]	k	\overline{k}
1	815848 ± 939	$226,62 \pm 0,26$	$33{,}9\pm0{,}7$	
2	832999 ± 939	$231,39 \pm 0,26$	$33{,}2\pm0{,}6$	$33{,}4\pm0{,}7$
3	834956 ± 1049	$231,93 \pm 0,29$	$33,2 \pm 0,6$	

Tabelle 1: Bestimmung des Kalibrierfaktors

Weiterhin müssen zur Bestimmung der Aktivität einer Probe aus den gemessenen Impulszahlen lediglich die Zählraten ermittelt und diese mit dem Kalibrierfaktor multipliziert werden:

$$A = k \cdot R \tag{21}$$

Für die Unsicherheit ergibt sich somit:

$$\Delta A = \sqrt{(R \cdot \Delta k)^2 + (k \cdot \Delta R)^2}$$
(22)

Exakt ist die Aktivität jedoch nur, wenn Probe und Standard in der gleichen Geometrie (s. Abschnitt 3.2.5) gemessen werden.

3.2.2 Verdünnungsreihe

Die Aktivität der zur Herstellung der Standards verwendeten salpetersauren Cs-137-Lösung war zu Beginn der Messungen unbekannt. Um die bei hoher Aktivität auftretenden Zählverluste durch die Annäherung an die Totzeit des Detektors zu vermeiden, wurde in diesem Versuchsteil ein praktikables Arbeitsvolumen ermittelt. Dazu wurden durch paralleles Verdünnen insgesamt fünf unterschiedliche Volumina der Stammlösung entnommen, auf Schnappdeckelgläser verteilt und mit destilliertem Wasser auf 100 µL aufgefüllt. Die Verdünnungen wurden auf Probenhalter aufgetragen, getrocknet einem Ge(Li)-Detektor gemessen. Um den Einfluss und an von Geometrieeffekten zu minimieren, wurden die Proben, genau wie der zertifizierte Standard, in einem Abstand von 0 cm zum Detektor platziert. Die Probenhalter sind präparierte rechteckige Metallplättchen mit wenigen Zentimetern Kantenlänge, deren innere Fläche kreisrund ausgeschnitten ist.



Abbildung 13: Probenhalter.

Die obige Abbildung (s. Abbildung 13) zeigt einen der Probenhalter, die zum Auftragen der Cs-137-Lösung verwendet wurden. An einer Seite der Metallplättchen wurde Klebeband angebracht, sodass auf der anderen Seite des Plättchens an der Klebefläche Filterpapier fixiert werden konnte. Auf das Filterpapier wurde wiederum die Cs-137-Lösung aufgetragen. Nach Trocknung des Filterpapiers wurden die Proben am Detektor ausgemessen und die Zählraten verglichen. Die aus dieser Methode erhaltenen spektrometrischen Daten sind in der nachfolgenden Tabelle angegeben. Die Messzeit betrug jeweils 3600 s.

Tabelle 2: Zählraten der Verdünnungen der Cs-137-Lösung

Probe	Cs-137 [µL]	Wasser [µL]	R [1/s]
1	$100\pm0,01$		$2{,}72\pm0{,}03$
2	$87,5\pm0,01$	$12{,}5\pm0{,}01$	$2,\!17\pm0,\!03$
3	$75 \pm 0,01$	$25\pm0{,}01$	$1,\!73\pm0,\!02$
4	$50\pm0,01$	$50\pm0,01$	$1{,}20\pm0{,}02$
5	25 ± 0,01	$75\pm0,01$	$0,66 \pm 0,02$

Trägt man die ermittelten Zählraten gegen das Volumen der Cäsium-Lösung graphisch auf und passt eine lineare Funktion an die Werte an, so erhält man für die Zählrate:

$$R(V) = (0,0273 \pm 0,0004) \frac{\frac{1}{s}}{\mu L} \cdot V - (0,16 \pm 0,03) \frac{1}{s}$$
(23)

Mit Hilfe dieser Gleichung kann die Aktivität jedes beliebigen pipettierten Volumens berechnet werden. Die graphische Darstellung der Messergebnisse und Fitfunktion sind in der nachfolgenden Abbildung (s. Abbildung 14) zu sehen. Die Gesamtunsicherheit setzt sich zusammen aus den Unsicherheiten der Pipette, Zählrate und Geometrie.



Abbildung 14: Lineare Anpassung an die Verdünnungsreihe.

Da die Fitgerade nicht alle Messwerte innerhalb der abgeschätzten Unsicherheiten abdeckt, wurde zur Abschätzung der Gesamtunsicherheit bei der Bestimmung der absoluten Aktivität der Cs-137-Lösung wie folgt vorgegangen: die Unsicherheit der Messwerte wurde sukzessive in Prozent-Schritten so weit erhöht, bis der Bereich ausreichend groß war, um von der Fitgeraden eingefasst zu werden. Die Ungenauigkeit ergibt sich nun auf beiden Achsen zu etwa 10% des Messwertes. Nachfolgende Abbildung (s. Abbildung 15) zeigt die korrigierte Auftragung der Messergebnisse.



Abbildung 15: Lineare Anpassung mit Null-Durchgang.

Außerdem wurde eine neue lineare Geradenanpassung durchgeführt und ein Null-Durchgang der Geraden erzwungen. Danach ergibt sich für die Zählrate eines bestimmten Volumens folgende Beziehung:

$$R(V) = (0,0251 \pm 0,0004) \frac{\frac{1}{s}}{\mu L} \cdot V$$
(24)

Nach erneuter graphischer Auftragung ergibt sich, dass bei einer angenommenen Unsicherheit von 10% der überwiegende Teil der Messwerte abgedeckt ist. Zur Unsicherheit des zertifizierten Standards von 4% addieren sich zusätzlich die Unsicherheiten der Zählrate, Geometrie und Pipette in Höhe von insgesamt 6%. Eine Gesamtunsicherheit von 10% stellt zunächst zwar keine hohe Präzision dar, was sich im allgemeinen Zusammenhang aber wieder relativiert, da sich die Messwerte der Bodenkontamination über drei Größenordnungen erstrecken. Insofern ist eine Gesamtunsicherheit im Rahmen dieser Arbeit akzeptabel. Dennoch wurde im Folgenden (s. Abschnitt 3.2.2) versucht, Effekte der Unsicherheit beim Pipettieren weiter zu vermindern.

Die zum Teil hohen Abweichungen sind vermutlich insbesondere bei den geringen Konzentrationen auf die Unsicherheit der Mikropipette (\pm 0,01 µL) zurückzuführen. Signifikantere Auswirkungen haben wahrscheinlich jedoch

Flüssigkeitsreste, die durch Adsorptionseffekte an den Wänden der Schnappdeckelgläser und des Pipettenaufsatzes haften bleiben. Bei geringen Konzentrationen spielen diese Adsorptionseffekte eine wichtige Rolle [14].

Bei der Messung der proben zeigt sich zudem, dass eine Totzeitkorrektur nicht nötig war. Deshalb wurde für die weiterführenden Versuche ein Arbeitsvolumen von 80 µL festgelegt, um eine ausreichende Aktivität und somit relativ kurze Messzeiten der Standards zu gewährleisten. Nach obigen Gleichungen ist für dieses Volumen eine Zählrate von $(2,02 \pm 0,20)\frac{1}{s}$ bzw. $(2,01 \pm 0,20)\frac{1}{s}$ zu erwarten, entsprechend einer Aktivität von $(67,13 \pm 6,68)$ kBq.

3.2.3 Pipettiergenauigkeit

Die Ergebnisse der vorigen Versuchsreihe haben gezeigt, dass das Pipettieren mit einer Ungenauigkeit behaftet ist. Um beim Pipettieren dennoch konsistente Ergebnisse zu erhalten, ist eine einheitliche Methode notwendig, welche die Unsicherheiten nivelliert. Diese Methode soll letztlich auch bei der Herstellung der Standardpräparate verwendet werden können.

In Bezug auf die Verdünnungsreihe bedeutet das, dass die der Stammlösung entnommenen Volumina, und somit auch die Zählraten, bei allen Proben stets im gleichen Bereich liegen sollen. Da die Messergebnisse der Verdünnungsreihe von dieser Erwartung jedoch abweichen, wurde ein vereinheitlichendes Verfahren erprobt.

In diesem Testverfahren wurde der Pipettenaufsatz der Mikropipette mehrmals mit der Stammlösung durchgespült. Mit dem durchgespülten Pipettenaufsatz wurden anschließend direkt jeweils 80 µL der Stammlösung auf drei neue Probenhalter aufgetragen und die Zählraten verglichen. Die aus dieser Methode erhaltenen spektrometrischen Daten sind der nachfolgenden Tabelle zu entnehmen. Die Messzeit betrug jeweils 7200 s.

Probe	Cs-137 [µL]	R [1/s]	R [1/s]
FP 1	$80\pm0{,}01$	$2{,}54\pm0{,}02$	
FP 2	$80\pm0,01$	$2{,}61\pm0{,}02$	$2{,}58 \pm 0{,}02$
FP 3	$80 \pm 0,01$	$2{,}59\pm0{,}02$	

Tabelle 3: Zählraten dreier Proben gleicher Menge an Cs-137-Lösung

Im Mittel liegen die Zählraten aller drei Filterpapier-Standards dicht beieinander. Da der Unsicherheit der Mikropipette rechnerisch nicht berücksichtigt wurde, kann der relative Fehler auf 2% aufgerundet werden, wobei es sich um einen Schätzwert handelt. Es ist anzunehmen, dass durch Durchspülung des Pipettenaufsatzes eine Art Sättigungseffekt an den Wänden des Aufsatzes eintritt, der die abermalige Adsorption der Stammlösung erschwert. Dadurch wird gleichmäßiges Pipettieren insgesamt begünstigt.

Durch den Verzicht, die Stammlösung in einem separaten Gefäß mit destilliertem Wasser auf 100 µL aufzufüllen, konnten ebenfalls Verluste vermieden werden. Auf Grundlage der in Kapitel 3.2.2 erarbeiteten Zählraten wichen die Ergebnisse um 22% vom Erwartungswert ($R(V = 80 \ \mu L) = (2,02 \pm 0,20)\frac{1}{s}$) ab. Dass die Zählraten nun relativ deckungsgleich sind, weist auf eine systematische Abweichung bei der vorherigen Verdünnungsreihe hin.

Für die weiterführenden Versuche wurde daher das hier erprobte Verfahren für die Herstellung der Boden- und Pilz-Standards verwendet.

3.2.4 Vergleich zweier Analyseprogramme

Die bisher beschriebenen Ergebnisse wurden mit Hilfe von GammaVision32 ermittelt. Zum Vergleich hinsichtlich der Übereinstimmung der Ergebnisse verschiedener Analyse-Software, wurde im Folgenden auch SciDAVis [31] zur Auswertung derselben Messdaten verwendet.

Gammavision berechnet beim Markieren einer ROI (region of interest) automatisch alle statistisch relevanten Größen (Halbwertsbreite (FWHM) des Peaks, die Peak-Fläche, Untergrund-Korrektur und Zählrate).

SciDAVis ist ein frei verfügbares Software-Produkt ist, das zur Visualisierung und Analyse von Messwerten dient. Zu diesem Zweck verfügt es über diverse interne Werkzeuge wie dem Kurvenanpassungsassistenten. Zur Auswertung wurden die Messdaten der Filterpapier-Standards FP 1, FP 2 und FP 3 aus Kapitel 4.3.3 verwendet und die aus dem arithmetischen Mittel ermittelten Zählraten \overline{R} verglichen.

Die untenstehende Abbildung zeigt beispielshalber einen Ausschnitt aus einem der gemessenen Spektren der Filterpapier-Standards (hier: FP 2) in GammaVision. Die rote Markierung zeigt die ROI (region of interest) an und umschließt den Peak bei einer Energie von 662 keV. Die Analyseergebnisse sind im hell unterlegten Fenster daneben angegeben.



Abbildung 16: Spektrum und Fitergebnisse von FP 2 mit GammaVision32.

GammaVision32 speichert das Messergebnis in einer .Spe-Datei, welches, neben den Messdaten, diverse Informationen über den Messzeitpunkt, die Eichfunktion etc. enthält. Mit Hilfe eines Texteditors können die Messdaten entnommen und mit einem von GammaVision32 unabhängigen Programm visualisiert und analysiert werden. Die nun mittels SciDAVis visualisierten Messdaten und Analyseergebnisse sind in der folgenden Abbildung zu sehen.



Abbildung 17: Spektrum und Fitergebnisse von FP 2 mit SciDAVis.

Um die Nettozählraten der Filterpapier-Standards und deren arithmetisches Mittel vergleichen zu können, kann bei SciDAVis eine manuelle Untergrund-Korrektur durchgeführt werden. Dazu muss von der Peakfläche *A* lediglich der Untergrund *u* subtrahiert werden. GammaVision32 bestimmt die Nettozählrate automatisch. Die Ergebnisse sind in nachfolgender Tabelle angegeben.

Tabelle 4: Vergleich der Zählraten

Fitparameter	GammaVision32	SciDAVis
A	18777 ± 142	18382 ± 59
u	280	15
x _c	661,68 keV	661,95 keV
σ	1,38 keV	1,18 keV
\overline{R}	$(2,58 \pm 0,02)s^{-1}$	$(2,53 \pm 0,01)s^{-1}$

Der Vergleich zeigt, dass sich die mit GammaVision32 und SciDAVis ermittelten Zählraten noch deutlich unterhalb einer Abweichung von 5% überschneiden.

Da sich die Ergebnisse von GammaVision und SciDAVis für die hier beschriebenen Messungen nicht unterscheiden, kann geschlussfolgert werden, dass für die in dieser Arbeit betrachteten Fälle keine aufwändigere Untergrundkorrektur nützlich ist als die in den automatischen Auswerteroutinen von GammaVision implementiert ist. Aus praktischen Gründen wurden daher die für die Standardpräparate relevanten Analysen auch im Folgenden mit GammaVision32 durchgeführt. Für die Darstellungen unter Kapitel 3.2.2 und Kapitel 3.6 wurde dennoch SciDAVis verwendet.

3.2.5 Untersuchung der Geometrieeffekte

Die Geometrie des zertifizierten Cs-137-Standards, wie er zur Bestimmung des Kalibrierfaktors verwendet wurde, entspricht näherungsweise einer Punktquelle. Im Vergleich dazu verteilt sich die Aktivität der Filterpapier-Standards auf eine Fläche. Welchen Effekt dieser Unterschied auf die Messung ausübt, soll im Folgenden untersucht werden. Dazu wurde das Verhältnis aus den Zählraten der Nah- und Fernmessung eines Standards gebildet. Dieser Quotient wird weiterhin als Geometrisches Verhältnis V_{geo} bezeichnet und ist dimensionslos. Es wird über den Zusammenhang

$$V_{geo} = \frac{\bar{R}_{fern}}{\bar{R}_0} \tag{25}$$

berechnet. Für die Unsicherheit ergibt sich somit:

$$\Delta V_{geo} = \sqrt{\left(\frac{1}{\bar{R}_0} \cdot \Delta \bar{R}_{fern}\right)^2 + \left(\frac{\bar{R}_{fern}}{\bar{R}_0^2} \cdot \Delta \bar{R}_0\right)^2} \tag{26}$$

Dabei entsprechen \overline{R}_0 und $\overline{\overline{R}}_{fern}$ den Zählraten der Nah- und Fernmessung. Die Unsicherheiten der Zählraten sind $\Delta \overline{R}_0$ und $\Delta \overline{R}_{fern}$.

In der nachfolgenden Tabelle sind die Zählraten beim Abstand 0 cm den vorangegangenen Kapiteln entnommen und entsprechen den dort ermittelten mittleren Zählraten der Standards. Die Messungen beim Abstand 2,5 cm wurden jeweils nur einmal durchgeführt. Von den Filterpapier-Standards wurde exemplarisch FP 1 verwendet. Die Messdauer der Fernmessungen betrug 7200 s.

Abstand [cm]	R _{Kal.Standard} [1/s]	<i>R</i> _{FP} [1/s]
0	$229,95\pm0,29$	$2{,}58\pm0{,}02$
2,5	$66,20 \pm 0,14$	$0,86 \pm 0,01$

Tabelle 5: Ergebnisse der Abstandsmessungen

Die daraus resultierenden geometrischen Verhältnisse sind in der folgenden Tabelle abgebildet.

Tabelle 6: Geometrisches Verhältnis

	Zert. Cs-137- Standard	FP-Standard
V _{geo}	$0,\!288\pm0,\!001$	$0,333 \pm 0,071$

Aus den Daten geht eine Abweichung der geometrischen Verhältnisse voneinander von ungefähr 15% hervor. Weniger Strahlung wurde letztlich beim zertifizierten Standard detektiert. Unter Berücksichtigung der Unsicherheit des Filterpapier-Standards sind die Ergebnisse konsistent.

Dass mit wachsendem Abstand zum Detektor die gemessene Strahlungsintensität abnimmt, ist durch das Abstandsquadratgesetz zu erklären. Nach dem Abstandsquadratgesetzt nimmt die Intensität von Strahlung einer Punktquelle auf Grund der Divergenz der Strahlung mit dem Abstand r um den Faktor $\frac{1}{r^2}$ ab. Sofern eine Strahlungsquelle keine punktförmige Geometrie aufweist, kann sich dieser Geometrie durch einen größeren Abstand der Quelle zum Detektor zumindest genähert werden. Absorptionseffekte sind in dieser Form der Betrachtung soweit unberücksichtigt.

Aus dem mathematischen Zusammenhang ergibt sich, dass die Intensitätsabnahme der flächig ausgedehnten Strahlungsquelle (Filterpapier-Standard) bei gleichem Abstand zum Detektor geringer ausfällt als die der Punktquelle (kalibrierter Standard).

Von einer allgemeingültigen Aussage, die sich aus dieser Beobachtung ableiten ließe, ist jedoch abzuraten. Der vorliegende Datenbestand an Abstandsmessungen ist zu gering, um gesicherte Aussagen treffen zu können. Darauf deutet nicht zuletzt der verhältnismäßig große relative Fehler des Filterpapier-Standards hin. Es kann nur vermutet werden, dass die berechneten geometrischen Verhältnisse einen Trend wiederspiegeln.

Um konkretere Aussagen über Geometrieeffekte treffen zu können, die sich speziell bei diesem Versuchsaufbau auswirken, wären weitere Messungen bei verschiedenen Abständen notwendig. Dass überhaupt Geometrieeffekte auftreten, belegt die Differenz zwischen den geometrischen Verhältnissen der Punktquelle und der Filterpapier-Standards hinlänglich.

Abstandsmessungen mit dem Filterpapier-Standard könnten im Prinzip dazu genutzt werden, die Strahlung aus einer Schicht oder Füllhöhe der später gemessenen Boden- und Pilz-Standards zu simulieren. Selbstabsorptionseffekte durch das Proben-Medium werden dann jedoch nicht berücksichtigt.

Das heißt, dass Geometrieeffekte auch bei den Standardpräparaten aus Boden- und Pilzproben einen entscheidenden Einfluss auf die gemessene Aktivität ausüben werden.

Der Sinn der Standardpräparation in dieser Arbeit liegt jedoch gerade darin, dass Geometrieeffekte bei der Messung von Realproben außer Acht gelassen werden können. Wie oben beschrieben, wird dies dadurch erzielt, dass die Standards eine zu den Realproben vergleichbare Geometrie aufweisen. Auf diese Weise wird eine komplizierte mathematische Korrektur, überhaupt die Bestimmung eines Geometriefaktors, irrelevant.

3.2.6 Bestimmung der absoluten Aktivität

Da nun präzise beziehungsweise einheitlich pipettiert werden kann, kann die Bestimmung der absoluten Aktivität von 80 µL Cs-Lösung erfolgen. Der Kalibrierfaktor $\bar{k} = (33,4 \pm 0,7)$ ist bereits aus der Untersuchung des zertifizierten Cs-137-Standards bekannt (Kapitel 3.2.1). Unter Verwendung der Messergebnisse der Filterpapier-Standards (Kapitel 3.2.3), wird die Aktivität aus der mittleren Zählrate durch Multiplikation mit dem Kalibrierfaktor berechnet.

Tabelle 7: Berechnung der absoluten Aktivität

Probe	Cs-137 [µL]	R [1/s]	Ā [Bq]
FP 1, FP 2, FP 3	je (80 ± 0,01)	$2{,}58 \pm 0{,}02$	$86,24 \pm 0,67$

Demnach liegt in einem Volumen von 80 μ L Cs-Lösung eine Aktivität von (86,24 \pm 0,67) *Bq* vor. Dieser Wert mit der dazugehörigen Unsicherheit wurde im Folgenden bei der Präparation der Standardproben zugrunde gelegt.

3.3 Auswahl einer Matrix für die Boden und Pilz-Standards

Ziel ist die Herstellung von Cs-137-Standards aus erdigem Boden, Sand, Blumenerde und Pilzen. Zu diesem Zweck wurden zunächst nicht kontaminierte Böden und Pilze ausgewählt und präpariert. Die ausgewählten Realböden ermöglichen einen direkten Vergleich, die Sandböden und Blumenerde stellen hingegen zwei Extrem-Modellfälle für Böden mit hohem Sand- bzw. Humusanteil dar.

Die erdigen Böden stammen aus Troisdorf und Lohmar, wo sie einer Tiefe von 15-20 cm entnommen wurden. Durch Messungen wurde sichergestellt, dass in den Materialien vor der Imprägnierung kein Cs-137 enthalten war. Größere Steine wurden entnommen. Die Sandproben entsprechen einem Sandgemisch, wie es üblicherweise zur Herstellung von Beton verwendet wird. Die Korngrößen reichen von 0,06 –2 mm. Bei der Blumenerde handelt es sich um ein käuflich erworbenes Produkt aus einem Supermarkt. Im Vergleich zu den erdigen und sandigen Matrices ist die Blumenerde ein humusreiches Substrat und besteht somit zu einem hohen Anteil (hier: 24% der Frischmasse, nach Angabe des Herstellers) aus organischem Material. Für die späteren Pilz-Standards wurden Zuchtchampignons verwendet, welche auf speziellen Substraten in geschlossenen Räumen angebaut werden und von daher praktisch kein Cs-137 enthalten [28].

Auf Grund des variierenden Wasseranteils in den Medien wurde im Sinne der Reproduzierbarkeit der Standardpräparate stets das Trockengewicht betrachtet, auf die sich die im Folgenden alle angegebenen Massen beziehen. Dazu wurden alle Böden im Trockenschrank bei 50 °C bis zur Gewichtskonstanz getrocknet. Anschließend wurden die getrockneten Böden in verschließbare Kunststoff-Flaschen gegeben, die Füllhöhe notiert und die Nettomasse bestimmt. Die Pilze wurden zunächst im unbeschadeten Zustand bei Raumtemperatur vorgetrocknet. Erst dann wurden sie in wenige Millimeter große Stücke zerkleinert, in Petrischalen umgefüllt und im Trockenschrank gelagert. Bei allen Proben wurde stets die Schütthöhe bestimmt.



Abbildung 18: Verschließbare Probenbehälter.

Nur die Pilze wurden in kleinere Behältnisse (Petrischalen aus Kunststoff) gefüllt. Grundfläche und Wanddicke der unterschiedlichen Gefäße sind vergleichbar. Aus Füllhöhe h und Grundfläche $F = (20 \pm 0,1) cm^2$ der Kunststoff-Behälter kann das Füllvolumen V berechnet werden:

$$V = A \cdot h \tag{27}$$

$$\Delta V = \sqrt{(A \cdot \Delta h)^2 + (h \cdot \Delta A)^2}$$
(28)

Die unterschiedliche stoffliche Zusammensetzung der Medien bestimmt auch ihre Dichte. Die Dichte ρ ergibt sich aus dem Quotienten der Probenmasse *m* und dem Füllvolumen:

$$\rho = \frac{m}{V} \tag{29}$$

$$\Delta \rho = \sqrt{\left(\frac{\Delta m}{V}\right)^2 + \left(\frac{m}{V^2} \cdot \Delta V\right)^2} \tag{30}$$

Probenmaterial	<i>m</i> [g]	<i>h</i> [cm]	$\overline{ ho}$ [g/cm ³]
Sand 1	105 ± 1	$2,8\pm0,2$	
Sand 2	106 ± 1	$2,8\pm0,2$	$1,\!87\pm0,\!13$
Sand 3	106 ± 1	$2,9\pm0,2$	
Troisdorf 1.4	100 ± 1	$3,1 \pm 0,2$	
Troisdorf 2.4	98 ± 1	$3,0 \pm 0,2$	$1,\!61 \pm 0,\!10$
Lohmar Std 3	120 ± 1	$3,8 \pm 0,2$	
Blumenerde 1	30 ± 1	$4,5 \pm 0,4$	
Blumenerde 2	30 ± 1	$4,7\pm0,4$	$0{,}32\pm0{,}03$
Blumenerde 3	30 ± 1	$5,0 \pm 0,4$	
Pilze 1	12 ± 1	$2,0 \pm 0,4$	
Pilze 2	12 ± 1	$1,8 \pm 0,4$	$0,\!32\pm0,\!07$
Pilze 3	12 ± 1	$1,9 \pm 0,4$	
Pilze 4 (halb)	6 ± 1	$1,0 \pm 0,4$	$0,30 \pm 0,13$

Tabelle 8: Durchschnittliche Dichte der untersuchten Medien

Die Messunsicherheit beim Ablesen der Füllhöhen sollte der kleinsten Skaleneinteilung des verwendeten Lineals entsprechen, also 1 mm. Beschaffenheit und Form der unterschiedlichen Medien erschwerten jedoch die homogene Verteilung des Probenmaterials, weswegen die Ableseungenauigkeit zur Beschreibung der Unsicherheit von h nicht ausreicht. So ließ sich bei den erdigen und sandigen Medien keine exakt horizontal flache Ebene einstellen. Die Unsicherheit wurde daher auf 2 mm geschätzt. Bei der Blumenerde und den Pilzen schwankte die Füllhöhe in einem größeren Bereich, da wegen der unregelmäßigen Größe und Form ihrer Bestandteile immer wieder Stücke aus der Oberfläche herausragten und eine genaue Abgrenzung somit nicht möglich war. Die Unsicherheit wurde hier auf 4 mm geschätzt.

Der Sand weist mit 1,87 g/cm^3 insgesamt die höchste Trockenraumdichte auf. Die Erden aus Troisdorf und Lohmar unterscheiden sich nur geringfügig, weshalb ihre gemeinsame mittlere Dichte berechnet wurde. Die Dichten der Blumenerde und Pilze sind nach dem hier verwendeten Dichtebestimmungsverfahren weitestgehend identisch. Die Blumenerde musste über mehrere Tage hinweg im Trockenschrank gelagert werden. Auf Grund ihrer (humusreichen) Zusammensetzung hat sie Feuchtigkeit nur langsam abgegeben.

Womöglich hätte durch die Zerkleinerung bis hin zur Pulverisierung der Pilze eine niedrigere und exaktere Dichte ermittelt werden können. In Hinblick auf Realproben ist eine zu feine Zerkleinerung jedoch nicht sinnvoll. Durch den Kontakt der Trockenmasse mit dem Zerkleinerungswerkzeug und dem Umfüllen in Schalen und Behältnisse sind stets zusätzliche Verluste verbunden. Da unter Umständen nur kleine Mengen Pilze im Wald gesammelt werden können, könnte dies bei der Untersuchung von Realproben die Messunsicherheit unnötig erhöhen.

Die gesammelten Informationen über Beschaffenheit, Gewicht, Füllhöhe und Dichte der Medien sind nun hinreichend bestimmt. Im nächsten Schritt wurden die Materialien mit Cs-137 imprägniert.

3.4 Herstellung der Boden- und Pilz-Standards

Die zur Herstellung der Standards verwendeten Boden- und Pilzproben wiesen keine nachweisbare Cs-137-Aktivität auf.

Zunächst wurden die Proben mit destilliertem Wasser vermischt und aufgewirbelt. Jeder Probe wurden jeweils 80 μ L der in Kap. 3.2.2 und Kap. 3.2.3 beschriebenen Cs-137-Lösung hinzugefügt. Dies entspricht einer Aktivität von (86,24 ± 0,67) *Bq* je Präparat. Mit verschlossenem Deckel wurden diese anschließend für mehrere Minuten geschüttelt. Die Gefäße mit den Pilzproben wurden zusätzlich mit Parafilm umwickelt, da diese keinen Drehverschluss besitzen. Dennoch drang eine geringe Menge Flüssigkeit durch den Verschluss. Auf Grund des hohen Wasseranteils wurde das jedoch für irrelevant befunden.

Zur Trocknung wurde der Deckel wieder abgenommen und mit der trockenen Seite zum Boden neben die jeweilige Probe gelegt. Die Trocknung bis zur Gewichtskonstanz fand im Trockenschrank bei 50 °C statt. Die Trockenzeit betrug durchschnittlich drei Tage. Die Pilze, insbesondere die Blumenerde, benötigten bis zu sieben Tage bis zur Gewichtskonstanz. Die getrockneten Proben wurden verschlossen und so lange geschüttelt, bis keine Klumpen oder aneinander haftende Teile mehr zu erkennen waren.

3.5 Gammaspektrometrische Messung der Standards

Zur gammaspektrometrischen Untersuchung am Ge-Detektor lagen die Proben direkt auf dem Detektor auf. Aus den Zählraten wurde unter Verwendung des Kalibrierfaktors (s. Kapitel 3.2.1) ihre scheinbare Aktivität A_{schein} ermittelt, um die Präparate untereinander vergleichbar zu machen. Die Aktivität einer Bodenprobe kann auch in eine Flächenaktivität $A_{Fläche}$ umgerechnet werden. Die Flächenaktivität erhält man allgemein durch Division der Aktivität durch die Fläche des Probennahmegerätes (hier: 20 cm² = 0,002 m²). Die Einheit ist kBq/m². Bei vergleichbaren Proben hinsichtlich Art, Masse und Füllhöhe wurde außerdem das arithmetische Mittel gebildet. Die Ergebnisse sind in der nachfolgenden Tabelle angegeben.

Probe	A _{schein} [Bq]	$\overline{A}_{schein}[Bq]$
Blumenerde 1	$40,\!01\pm0,\!81$	
Blumenerde 2	$35,35 \pm 0,71$	$38,\!05\pm0,\!77$
Blumenerde 3	$38,\!78\pm0,\!78$	
Sand 1	$34,\!46 \pm 0,\!69$	
Sand 2	$35,\!41 \pm 0,\!70$	$35,\!13\pm0,\!70$
Sand 3	$35,51 \pm 0,71$	
Troisdorf 1.4	$33,33 \pm 0,66$	
Troisdorf 2.4	$33,19 \pm 0,66$	$33,20 \pm 0,00$
Lohmar Std 3	$30,20 \pm 0,60$	$30,20 \pm 0,60$

Tabelle 9: Gemessenen scheinbaren Aktivitäten der Bodenproben

Die höchste scheinbare Aktivität ist bei der Blumenerde zu beobachten. Darauf folgen der Sand und dann die Erdproben.

Für die Pilze wurde ebenfalls die scheinbare Aktivität berechnet. Die Aktivität der Pilze kann auch in eine spezifische Aktivität $A_{spez.}$ umgerechnet werden. Diese erhält man durch Division der Aktivität durch die Probenmasse. Die Einheit ist kBq/kg. Bei vergleichbaren Proben hinsichtlich Art, Masse und Füllhöhe wurde auch hier das arithmetische Mittel gebildet. Die Ergebnisse sind in der Tabelle zu sehen.

Probe	A _{schein} [Bq]	$\overline{A}_{schein}[\mathrm{Bq}]$
Pilze 4 (halb)	$74,\!45 \pm 1,\!47$	$74,\!45 \pm 1,\!47$
Pilze 1	$60,99 \pm 1,21$	
Pilze 2	$63,74 \pm 1,26$	$63,\!10\pm1,\!25$
Pilze 3	$64,56 \pm 1,27$	

Tabelle 10: Gemessenen scheinbaren Aktivitäten der Pilzproben

Die scheinbaren Aktivitäten ermöglichen die Diskussion der Standardpräparte untereinander und dienen damit letztlich auch der Abschätzung des Einflusses unterschiedlicher Probenformen auf das Messergebnis. Die tatsächliche Aktivität aller Standardpräparate beträgt (86,24 \pm 0,67) *Bq*, wie schon in Kapitel 3.4 beschrieben wurde.

Bei allen hergestellten Standards wird die homogene Verteilung des Cs-137 vorausgesetzt. Das Vermischen (Aufschlämmen) mit Wasser der Proben sollte die Anlagerung von Cäsium an nur einem geringen Teil des Probenmaterials verhindern. Zur Homogenisierung muss gewährleistet sein, dass die Cs-137-Lösung vollständig im destillierten Wasser gelöst ist. Dazu wurden die imprägnierten Proben geschüttelt. Um Verluste zu vermeiden, fand die Homogenisierung im Probenbehälter statt und ohne Verwendung von Rühroder Zerkleinerungswerkzeug.

Hinsichtlich der Dichten ist zu erwarten gewesen, dass der Sand die geringste scheinbare Aktivität aufweist. Denn nach dem Absorptionsgesetz beziehungsweise dem Lambert-Beerschen Gesetz gilt: Je höher die Dichte eines Absorbers, desto stärker die Abschwächung von Strahlung.

Bei klassischen Abschwächungsversuchen wird die radioaktive Strahlungsquelle vor einer Absorberschicht platziert, welche die Strahlung auf dem Weg zum Detektor abschwächt. Im Gegensatz dazu ist die Strahlungsquelle in diesem Versuch unmittelbar mit dem Absorber, also mit den Boden- und Pilzproben, vermischt. Das bedeutet, dass die im Detektor registrierten Gammateilchen unterschiedlich lange Strecken durch den Absorber bzw. die Bodenprobe zurückgelegt haben. Aussagen über die Absorption der Strahlung unter Beachtung des Absorptionsgesetzes sind im Rahmen dieser Arbeit nur qualitativ sinnvoll. Ein mathematischer Ansatz zur Beschreibung der Selbstabschwächung ist in Kapitel 2.6 wiedergegeben. Strahlung, die aus entfernteren Bereichen den Absorber bis zum Detektor durchdringt, wird zu einem höheren Anteil absorbiert. Dieser Anteil steigt mit der Füllhöhe des Probenbehälters. Diese Annahme wird durch den Vergleich der Proben "Troisdorf 1.4" und "Troisdorf 2.4" mit "Lohmar Std 3" gestützt. Letztere weist zwar eine ähnliche Dichte auf, ist aber höher gefüllt. Folglich ist die scheinbare Aktivität geringer als bei den Troisdorf-Präparaten.

Hinsichtlich der Füllhöhen der Standards müssen weiterhin geometrische Faktoren zur Erklärung der Beobachtung geringerer Zählraten berücksichtigt werden. Auf die Abnahme der Strahlungsintensität bei zunehmendem Abstand vom Detektor wurde auch schon in Kapitel 4.3.5 an Hand eines kalibrierten Cs-137-Standards und einem Filterpapier-Standard hingewiesen. So nimmt die Strahlungsintensität mit dem reziproken Abstandsquadrat $\left(\frac{1}{r^2}\right)$ ab. Insofern hat die Versuchsgeometrie einen entscheidenden Einfluss auf die Messung. Streng genommen gilt dies nur für punktförmige Strahler. Bei ausgedehnten Strahlern kann sich dieser Voraussetzung jedoch durch einen größeren Abstand zum Detektor zumindest genähert werden.

Die hergestellten Standardpräparate können in der Verwendung als Referenz zur Bestimmung der Cäsium-Aktivität in Realproben herangezogen werden. Dafür müssen sich Standardpräparat und Realprobe vor allem in zwei Eigenschaften ähneln: in ihrer Geometrie und Dichte. Ist diese Bedingung nicht erfüllt, entstehen durch die oben diskutierten Effekte nur schwerlich kalkulierbare Ungenauigkeiten. Der Vorteil ihrer Verwendung beruht jedoch eindeutig auf ihren immanenten Eigenschaften, durch die die Herleitung von Korrekturfaktoren obsolet wird.

Bei den Pilzpräparaten ist mit einem geringen Aktivitätsverlust zu rechnen, da bei der Homogenisierung ein Teil der Flüssigkeit durch den nicht verschließbaren Deckel drang. Bei weiteren Versuchen dieser Art sollten entweder andere Gefäße gewählt oder die Abdichtung sichergestellt werden. Zum Beispiel kann Knetmasse an die Ränder gedrückt werden, sodass der Flüssigkeitsaustritt während des Schüttelns verhindert wird. Als Fehlerquelle bzw. Unsicherheitsfaktor kann weiterhin in Betracht gezogen werden, dass sich bei der Herstellung der Standards ein Teil der Aktivität während der Trocknung an den Gefäßwänden abgesetzt hat. Sofern dieser Anteil nicht mehr in der Trockenmasse übergeht, ist bei diesem Versuchsaufbau mit einer Intensitätsabnahme zu rechnen. Die Unsicherheit wird hier jedoch als so gering eingestuft, dass sie vernachlässigt wird.

3.6 Untersuchung eines Standardspektrums

In folgender Abbildung ist auszugsweise das Gammaspektrum des Standards "Troisdorf 1.4" dargestellt. Zur besseren Darstellung wird der natürliche Logarithmus der Impulszahlen verwendet. Das Spektrum wurde auf Grund besserer Darstellungsmöglichkeit der Energie-Achse mit Hilfe von SciDAVis visualisiert.



Abbildung 19: Spektrum von Troisdorf 1.4.

Die Energien der gemessenen Peaks sind in unten stehender Tabelle angegeben. Über eine Datenbankrecherche (s. Literaturverzeichnis: [30]) wurden die Nuklide ermittelt, auf welche die detektierten Gammaenergien zurückzuführen sind.

Markierung	Energie [keV]	Lit. Energie [keV]	Nuklid
1	352 ± 1	351,9	Pb-214
2	511 ± 1	511	K-40 (u.a.)
3	662 ± 1	661,7	Cs-137
4	1238 ± 1	1238,1	Bi-214
5	1460 ± 1	1460,8	K-40

Tabelle 11: Komponenten eines Standardspektrums

Das Gammaspektrum des Standards "Troisdorf 1.4" zeigt nicht nur den erwarteten Full-Energy-Peak bei etwa 662 keV (Markierung 3), der auf das in der Standardprobe enthaltene Cs-137 zurückzuführen ist. Die Analyse dieses Spektrums wird exemplarisch durchgeführt und ist auf die Messungen aller hier untersuchten Standardpräparate übertragbar.

Angesichts der Messdauer von 23 h ist auch ein ausgeprägter Untergrund zu erkennen. Dieser setzt sich im Allgemeinen aus terrestrischer und kosmischer Strahlung zusammen [13].

Die unter Markierung 1 und 4 genannten Nuklide sind Teil einer natürlichen Zerfallsreihe [6], weswegen das Vorfinden dieser Nuklide nicht unwahrscheinlich ist. Verunreinigungen mit radioaktivem Blei können sich auch in der Bleiabschirmung des Detektors befinden. Als Teil der Zerfallsreihe von U-238 können sie von daher auch entweder aus dem umgebenden Beton oder aus dem Boden selbst stammen. Das unter Markierung 5 genannte K-40 kann aus mehreren Quellen stammen. Sowohl in den Bodenproben als auch in der Bausubstanz oder durch Verunreinigung des Detektors ist die Messung von K-40 möglich. Die 511-keV-Linie unter Markierung 2 entstammt der Elektron-Positron-Annihilierung. Sie erfolgt zum Beispiel auf den Zerfall von K-40 zu Ar-40. Damit ist sie eine Folgeerscheinung des β^+ -Zerfalls.

Eine Möglichkeit, das Spektrum einer Standardmessung zu optimieren, ist der Abzug des gesamten Strahlungshintergrundes. Dazu müssten zunächst die noch nicht imprägnierten Proben gammaspektrometrisch gemessen werden. Zieht man dann das "leere" Spektrum vom Spektrum des Standardpräparates ab, ist dieses weitestgehend frei von jedem irrelevanten Strahlungshintergrund. Sinnvoll ist die Messung des Hintergrundspektrums auch bezüglich der Sauberkeit des Detektors, da auf Grundlage des Hintergrundspektrums Verunreinigungen identifiziert werden können. Verunreinigungen mit Fremdnukliden werden dann problematisch, wenn sie identisch sind mit den Nukliden in der Probensubstanz.

3.7 Relative Effizienz

Um Rückschlüsse auf systematische Abweichungen bei der Messung einer Realprobe zu ermöglichen, wurde aus den untersuchten Standards eine relative Effizienz abgeleitet, für die gilt:

$$E_r = \frac{A_{schein}}{A} \cdot 100\% \tag{31}$$

Mit der Unsicherheit

$$\Delta E_r = \sqrt{\left(\frac{A_{schein}}{A^2} \cdot \Delta A\right)^2 + \left(\frac{1}{A} \cdot \Delta A_{schein}\right)^2} \cdot 100\%$$
(32)

Die relative Effizienz gibt bezüglich der analysierten Standards das Verhältnis der scheinbaren und tatsächlichen Aktivität wieder. Die Einheit wird in Prozent angegeben. Die tatsächliche Aktivität von 80 μ L der verwendeten Cs-137-Lösung beträgt (86,24 ± 0,67) *Bq*. Diese wurde mit Hilfe des zertifizierten Cäsium-Standards aus den Filterpapier-Standards ermittelt (s. Kapitel 3.2.6). Die scheinbare Aktivität berechnet sich aus den gemessenen Zählraten und dem Kalibrierfaktor (s. Kapitel 3.2.1). Das heißt, wenn eine Realprobe die gleiche scheinbare Aktivität wie eines der Standardpräparate aufweist, dann befindet sich in der Realprobe die gleiche Aktivität wie in 80 μ L der Cäsium-Lösung. In der nachstehenden Tabelle sind die relativen Effizienzen der Größe nach sortiert angegeben.

Standard	\overline{h} [cm]	$\overline{ ho}$ [g/cm ³]	Ā _{schein} [Bq]	<i>E_r</i> [%]
Pilze halb	$1,0 \pm 0,4$	$0,\!30\pm0,\!13$	$74,\!45\pm1,\!47$	$86,4 \pm 1,8$
Pilze voll	$1,9\pm0,4$	$0{,}32\pm0{,}07$	$63,\!10\pm1,\!25$	$73,2 \pm 1,6$
Blumenerde	$4,7\pm0,4$	$0,\!32\pm0,\!03$	$38,\!05\pm0,\!77$	$44,1 \pm 1,0$
Sand	$2,8\pm0,2$	$1,\!87\pm0,\!13$	$35,\!13\pm0,\!70$	$40,8\pm0,9$
Troisdorf	$3,1 \pm 0,2$	$1{,}61\pm0{,}10$	$33,\!26\pm0,\!66$	$38,6\pm0,8$
Lohmar	$3,8 \pm 0,2$	$1,\!61 \pm 0,\!10$	$30,20 \pm 0,60$	$35,4 \pm 0,7$

Tabelle 12: Vergleich der relativen Effizienzen in den Standards

Im Vergleich der Standards untereinander ergeben sich die höchsten relativen Effizienzen bei den Pilz-Standards. Deutlich niedriger fallen die Ergebnisse für die Blumenerde- und Sand-Standards aus. Bei den erdigen Standards (Troisdorf & Lohmar) sind die geringsten relativen Effizienzen zu beobachten.

Die relative Effizienz ist an die Wiederfindungsrate angelehnt, wie sie in der Analytischen Chemie verwendet wird, um Hinweise auf Unsicherheiten zu erhalten, die durch Matrixeinflüsse entstehen. Ihre Unsicherheit wird üblicherweise über die Standardabweichung ermittelt. Da aber eine nicht ausreichend lange Messreihe vorliegt, wurde die Unsicherheit über die Gaußsche Fehlerfortpflanzung ermittelt.

Betrachtet man die Ergebnisse im Einzelnen, so ist hinsichtlich der Dichten eine andere Reihenfolge zu erwarten. Der Sand weist die höchste Dichte auf, weswegen bei diesem mit der stärksten Absorption zu rechnen war. In Bezug auf das Lambert-Beersche Gesetz (vgl. Kapitel 3.1) bedeutet dies, dass die aus Sand hergestellten Standards, im Vergleich zu den anderen Standard-Medien, den größten Abschwächungskoeffizienten α besitzen.

Damit wird aber nur ein Teil des Absorptionsgesetzes betrachtet. In welchem Maße Strahlung letztendlich abgeschwächt wird, hängt auch mit der von der Strahlung zu durchdringenden Schichtdicke zusammen. Eben diese Schichtdicke beziehungsweise Füllhöhe ist bei den Sand-Standards niedriger als bei den erdigen Standards. Daraus resultiert, in Relation zu den anderen Standardpräparaten, offensichtlich insgesamt eine ineffektivere Abschwächung der Strahlung durch den Sand. Auch geometrische Einflüsse spielen hinsichtlich der relativen Effizienz der Sand-Standards eine Rolle. Dadurch, dass sich die tatsächliche Aktivität von (86,24 \pm 0,67) *Bq* auf ein kleineres Probenvolumen verteilt, ergo die Füllhöhe geringer ausfällt, befindet sich die gesamte Aktivität näher an der Detektionseinheit. Das bedeutet wiederum, dass der abgedeckte Raumwinkel (Strahlungskegel) in allen Schichten der Standards größer ist und eine höhere Strahlungsintensität gemessen werden kann.

Dieser Zusammenhang zeigt sich am deutlichsten bei den Pilz-Standards: Zwischen halbvollem und vollem Probengefäß nimmt die relative Effizienz um 13,2% ab. Auf Grund der geringen Dichte sind die Abschwächungseffekte durch Absorption bei den Pilzen am geringsten. Geometrische Effekte fallen deswegen mehr ins Gewicht.

Zur genaueren Berücksichtigung der Intensitätsabnahme könnte es zielführend sein, weitere Standardpräparate herzustellen, beispielsweise Standardpräparate, bei welchen die Füllhöhen systematisch variieren, während die Zusammensetzung des Probenmaterials gleichbleibt. Füllhöhenunterschiede wurden hier nur bei den Erd- und Pilz-Standards berücksichtigt. Das hätte auch den Vorteil, dass mehrere Standards eines Mediums, aber unterschiedlicher Geometrie existieren.

Bei den hier hergestellten Standardpräparaten wurden die Mengen so gewählt, dass sie einer Realprobe bezüglich Dichte und Zusammensetzung möglichst nah kommen. Realproben enthalten oftmals Steine, die vor der gammaspekrometrischen Untersuchung entfernt werden müssen. Im Umkehrschluss bedeutet dies, dass in einem solchem Fall insgesamt weniger Probenmasse aus einer Bodenschicht vorhanden ist. Vorausgesetzt, dass immer dieselben Aufbewahrungs-Gefäße verwendet werden, sind die Gefäße dann nicht mehr so hoch gefüllt wie die der Standards. Insbesondere dann, wenn die Realprobe dem jeweiligen Standardpräparat in Bezug auf Füllhöhe und/oder Dichte nicht mehr hinlänglich ähnelt, kann dieser Einfluss auf die Aktivitätsmessung durch Betrachtung der relativen Effizienzen besser beurteilt werden. Gegebenenfalls kann aus den relativen Effizienzen ein Korrekturfaktor abgeleitet werden. Die Realprobe lässt sich idealerweise durch Interpolation der Werte der Standardpräparate abbilden.

Die nachfolgende Tabelle gibt abschließend die tatsächlichen Aktivitäten der Standardpräparte, ihre mit Hilfe des Kalibrierfaktors berechneten scheinbaren Aktivitäten und relative Effizienzen wieder.

Standard	A [Bq]	Ā _{schein} [Bq]	<i>E_r</i> [%]
Pilze halb	$86{,}24\pm0{,}67$	$74,\!45 \pm 1,\!47$	$86,4 \pm 1,8$
Pilze voll	$86{,}24\pm0{,}67$	$63,10 \pm 1,25$	$73,2 \pm 1,6$
Blumenerde	$86{,}24\pm0{,}67$	$38,\!05\pm0,\!77$	$44,1 \pm 1,0$
Sand	$86{,}24\pm0{,}67$	$35,13 \pm 0,70$	$40,8\pm0,9$
Troisdorf	$86{,}24\pm0{,}67$	$33,\!26\pm0,\!66$	$38,6\pm0,8$
Lohmar	$86,24 \pm 0,67$	$30,20 \pm 0,60$	$35,4 \pm 0,7$

Tabelle 13: Zusammenfassung der Ergebnisse der Standardpräparate

4. Zusammenfassung, Abschlussdiskussion und Ausblick

In Kap. 4.1 werden abschließend alle Arbeitsschritte zusammengefasst. Die darauffolgende Diskussion (Kap. 4.2) geht sowohl auf die Herstellung und den Nutzen der Cs-137-Standards ein und wägt das Für und Wider der Verwendung eben dieser ab. Mögliche Inhalte weiterführender Arbeiten werden im Ausblick (Kap. 4.3) vorgeschlagen.

4.1 Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit war die Herstellung und Charakterisierung von Cs-137-Standards, die eine genauere Aktivitätsbestimmung des in natürlichen Bodenund Pilzproben enthaltenen Radiocäsiums erlauben. Die Standards wurden aus nicht kontaminierten Böden und Pilzen hergestellt, um den Eigenschaften realer Messproben möglichst zu ähneln.

Im ersten Schritt wurden Böden unterschiedlicher Zusammensetzung und Dichte (Erde, Sand, Blumenerde) gesammelt. Die Probenaufbereitung bestand aus der Entfernung größerer Steine, Trocknung, Gewichts- und Füllhöhenbestimmung. Außerdem wurden Zuchtchampignons aus dem Supermarkt getrocknet und zerkleinert und ebenfalls die Probenmassen und Füllhöhen bestimmt.

Über eine Verdünnungsreihe wurde ein praktisches Arbeitsvolumen der Cäsium-Lösung ermittelt, die den Boden- und Pilzproben zugesetzt werden sollte, damit die Aktivität nicht an die Totzeit des Detektors heranreicht. Dabei stellte sich heraus, dass das Pipettieren mit einer Ungenauigkeit behaftet ist.

Nach Entwicklung eines einheitlichen Pipettier-Verfahrens wurde die Aktivität der zur Imprägnierung verwendeten Cs-137-Lösung bestimmt.

Inwiefern die ermittelten Zählraten stimmig waren, zeigte der Vergleich zweier Analyseprogramme, die zur Auswertung der Spektren der Filterpapier-Standards herangezogen wurden.

Vergleichsmessungen zwischen einem Filterpapier-Standard und einem kalibrierten Cs-Standard (Punktquelle) zeigten erwartungsgemäß, dass die Zählrate des Full-Energy-Peaks von Cäsium mit zunehmendem Abstand zwischen Detektor und Probe abnimmt. Die Abnahme der Zählrate fällt bei gleichem Abstand beim Filterpapier-Standard geringer aus als bei der

Punktquelle. Zur Erklärung dieser Beobachtung kann einerseits das Abstandsquadratgesetz herangezogen werden, nach dem die Strahlungsintensität proportional zum Abstand abnimmt. Andererseits verursacht die flächenförmige Ausdehnung des Filterpapier-Standards Geometrieeffekte, die mathematisch nur schwerlich zu erfassen sind.

Alle vorangegangen Untersuchungen zielten letztlich darauf hin, die zu erwartenden Eigenschaften der Cs-137-Standards zu beschreiben. Auf die Vorversuche folgte die eigentliche Präparation der Standards. Mit Hilfe von Gammaspektrometrie konnten für die Boden- und Pilz-Standards scheinbare Aktivitäten ermittelt werden, welche die Standards untereinander vergleichbar machten.

Langzeitmessungen zeigen sich auch typische Untergrundlinien, die an einem Beispiel (Troisdorf 1.4) diskutiert wurden.

Die relativen Effizienzen wurden aus der scheinbaren und tatsächlichen Aktivität der Standards bestimmt. Sie sind schlussendlich ein praktisches Werkzeug zur Abschätzung systematischer Abweichungen.

4.2 Diskussion

Die gammaspektrometrischen Untersuchungen der Standardpräparate entsprachen weitestgehend dem erwarteten Verlauf. Alle Proben wurden mit der gleichen Aktivität ((86,24 \pm 0,67) Bq) imprägniert. Aus den Messungen der Standardpräparate ergaben sich unter Verwendung des Kalibrierfaktors unterschiedliche scheinbare Aktivitäten, mit Hilfe derer die Standardpräparate untereinander verglichen werden konnten. Mit dem Vorwissen aus den vorangegangenen Versuchen kann etwa die Aktivitätsdifferenz zwischen den vollen und halbvollen Pilz-Standards durch die Füllhöhen begründet werden. Je höher eine Probe gefüllt ist, desto weniger Aktivität enthält sie. Die Aktivitätsabnahme ist aber nur scheinbar und lässt sich durch Geometrieeffekte erklären. Doch auch die Dichte des Mediums, in der sich das radioaktive Nuklid befindet, beeinflusst die Messung. Abschwächungseffekte durch Absorption spielen in dichteren Medien eine zunehmend relevante Rolle. So ist die Füllhöhe der Blumenerde-Standards zwar größer als die der Sand-Standards, auf Grund der geringen Dichte wird aber dennoch eine höhere scheinbare Aktivität bei den Blumenerde-Standards gemessen. Daraus lässt sich ableiten, je dichter ein Medium ist, desto stärker wird Strahlung durch Absorption geschwächt.

Um verwertbare Ergebnisse zu erhalten, sollten die Realproben eine ähnliche Dichte und Füllhöhe aufweisen. Sind Cs-137-Standard und Realprobe nicht gleichartig, weicht die tatsächliche Aktivität nach oben hin ab, wenn sie eine geringere Dichte und/oder Füllhöhe hat. Umgekehrt weicht die tatsächliche Aktivität der Messprobe nach unten hin ab, wenn Dichte und Füllhöhe größer sind.

Mit Hilfe des nun etablierten Satz von Standards, mit dem Pilz- und Bodenproben absolut gemessen werden können, lassen sich die folgenden Schritte zur Analyse eines Zusammenhangs zwischen Boden- und Pilzkontamination in drei Punkten zusammenfassen:

- a) Überprüfung der Bodenkontamination in Deutschland an Beispielen durch Vergleich mit den Werten aus dem Atlas-Projekt.
- b) Aufstellung der Korrelation zwischen Boden- und Pilzkontamination f
 ür konkrete Standorte.
- c) Überprüfung eines gültigen Faktors für bestimmte Pilzarten, wie schon von Sonnauer [21] antizipiert.

Sollte ein solcher Faktor verifiziert werden, kann die Bodenkontamination der weißen Flecken im Atlas-Projekt (s. Abbildung 1: Europakarte mit farblicher Kennzeichnung der Cäsium-Deposition [5].) im Rahmen des GLOBE-Projektes [32] oder auf der Basis von osteuropäischen Pilzproben ermittelt werden.

4.3 Ausblick

Die Untersuchung der Umweltradioaktivität und damit verbundenen Strahlenbelastung für Mensch und Natur ist ein dauerhafter Prozess. Nukleare Katastrophen wie Tschernobyl sind, anders als Atomwaffentest, nicht gewollt, und es werden gewaltige Mengen radioaktiven Materials freigesetzt, doch bieten sie auch Gelegenheit, die Dynamik natürlicher Vorgänge zu beobachten und verstehen.

Cs-137 wird auf Grund seiner Halbwertszeit noch Jahrzehnte in der Natur nachweisbar sein. Diese Tatsache kann wissenschaftlich auf unterschiedliche Art und Weise genutzt werden. Eine Möglichkeit wurde schon in der Abschlussarbeit von P. Sonnauer [21] behandelt. Die Gültigkeit des ermittelten Umrechnungsfaktors zwischen Boden- und Pilzaktivität ist auf Grund der Bestimmungsmethode jedoch stark eingeschränkt. Zudem ist der Wert mit einer sehr großen Unsicherheit (\pm 50%) behaftet. Sofern ein solcher Umrechnungsfaktor überhaupt existiert, muss er durch genauere Untersuchungsmethoden verifiziert werden.

Mit Hilfe der in dieser Arbeit hergestellten Standardpräparate kann nun eine exaktere Analyse des Cäsium-Gehaltes von Boden- und Pilzproben erfolgen. Die Entnahme der zu untersuchenden Proben sollte immer paarweise ablaufen. Das heißt, dass die Bodenproben unmittelbar dort entnommen werden sollten, wo auch die Pilze gesammelt werden. Dann lässt sich ein Zusammenhang zwischen Boden- und Pilzkontamination feststellen.

Sofern genügend Probenmaterial an einem Ort gesammelt werden kann, was bei Wildpilzen oftmals schwierig ist, ließe sich sowohl an Hand von natürlichen als auch gezüchteten Pilzproben ermitteln, ob sich die Radioaktivität vermehrt zum Beispiel in den Stielen oder Hüten von Pilzen anreichert.

III. Literaturverzeichnis

- M. Alonso, E. J. Finn, *Quantenphysik und Statistische Physik*, 5.
 Auflage, Oldenbourg Verlag, München, 2012
- [2] K. Bethge, G. Walter, B. Wiedemann, *Kernphysik. Eine Einführung.*, 3. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 2008
- [3] Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, Grundlagen der Gammaspektrometrie mit Halbleiterdetektoren, ISSN 1865-8725, Version September 1992
- [4] Bundesministerium f
 ür Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, Umweltradioaktivität und Strahlenbelastung, Jahresbericht 2013, Bonn, 2015
- [5] M. D. Cort, G Dubois, S. D. Fridman, M. G. Germenchuk, Y. A. Izrael, A. Janssens, A. R. Jones, G. N. Kelly, E. V. Kvasikova, I. I. Matveenko, I. M. Nazarov, Y. M. Pokumeiko, V. A. Sitak, E. D. Stukin, L. Y. Tabachny, Y. S. Tsaturov, S. I. Avdyushin, *Atlas Of Caesium Deposition On Europe After The Chernobyl Accident*, Office for Official Publications oft he European Communities 1998, Luxembourg, 1998
- [6] W. Demtröder, Experimentalphysik, Kern-, Teilchen- und Astrophysik,2. überarbeitete Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 2005
- [7] U. Fielitz, Überprüfung von Ökosystemen nach Tschernobyl hinsichtlich der Strahlenbelastung der Bevölkerung, Environmental Studies, Göttingen, 2001
- U. Fielitz, Untersuchungen zum Verhalten von Radiocäsium in [8] Wildschweinen und anderen Biomedien des Waldes, Abschlussbericht Forschungsvorhaben StSch 4324, zum im Auftrag des Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit, 2005
- [9] W. Funk, V. Dammann, G. Donnevert, Qualitätssicherung in der Analytischen Chemie, Anwendungen in der Umwelt-, Lebensmittel- und Werkstoffanalytik, Biotechnologie und Medizintechnik, 2. Auflage, Wiley-VCH, Weinheim, 2005

- [10] C. Grupen, T. Stroh, U. Werthenbach, Grundkurs Strahlenschutz: Praxiswissen f
 ür den Umgang mit radioaktiven Stoffen, Springer-Verlag, Berlin, 2008
- [11] INES, *The International Nuclear And Radiological Event Scale User's Manual*, 2008 Edition, Co-Sponsored By The International Atomic Energy Agency, Vienna, 2013
- [12] Informationskreis Kernenergie, *Tschernobyl, Der Reaktorunfall*, INFORUM Verlags- und Verwaltungs GmbH, Bonn, **1996**
- [13] D. Meschede, *Gerthsen Physik*, 23. Überarbeitete Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 2006
- [14] K. H. Lieser, *Einführung in die Kernchemie*, 3. neubearbeitete Auflage, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim, **1991**
- [15] Ortec, GammaVision Software User's Manual, Software Version 7,
 Advanced Measurement Technology, Inc., U.S.A, 2013
- [16] L. Papula, Mathematische Formelsammlung für Ingenieure und Naturwissenschaftler, 9. Auflage, Vieweg & Sohn Verlag, Wiesbaden, 2006
- [17] E. Riedel, C. Janiak, *Anorganische Chemie*, 8. Auflage, De Gruyter, Berlin, 2011
- [18] K. Schmeiser, *Radioaktive Isotope, Ihre Herstellung und Anwendung*, Springer-Verlag, Berlin, **1957**
- [19] K. Schmeiser, Radionuclide, 2. Auflage, Springer-Verlag, Berlin, 1963
- [20] H. Schwiegk, Künstliche radioaktive Isotope in Physiologie, Diagnostik und Therapie, Springer-Verlag, Berlin, **1953**
- [21] P. Sonnauer, Gamma-Spektrometrische Bestimmung von Cs-137 aus dem Tschernobyl-Fallout in europäischen Wildpilzen, Examensarbeit, Köln, 2015
- [22] T. Tamura, Cesium sorption reactions as indicator of clay mineral structures, International clay conference, Proceedings of the conference held at Stockholm, Sweden, August 12-16
- [23] Umweltbundesamt GmbH, *Radionuklide im Waldökosystem*, Wien, 2000

- [24] UNSCEAR, Sources And Effects Of Ionizing Radiation, Volume II, Annex D – Health effects due to radiation from the Chernobyl accident, S. 49, New York, 2011
- [25] J. D. Wilson, C. A. Hernández-Hall, *Physics Laboratory Experiments*,
 8. Ausgabe, CENGAGE Learning, Stamford, 2015
- [26] G. Zaddach, Katalog von Ge(Li)-γ-Spektren, Berichte der Kernforschungsanlage Jülich, Nr. 914, Jülich, 1973
- [27] http://www.globe.gov/ (letzter Zugriff: 26.03.2016)
- [28] http://www.lugv.brandenburg.de/media_fast/4055/fb_pilze.pdf (letzter Zugriff: 26.03.2016)
- [29] https://lp.uni-goettingen.de/get/text/6779 (letzter Zugriff: 26.03.2016)
- [30] http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/ (letzter Zugriff: 26.03.2016)
- [31] http://scidavis.sourceforge.net/ (letzter Zugriff: 26.03.2016)
- [32] http://scidavis.sourceforge.net/manual/ (letzter Zugriff: 26.03.2016)

IV. Anhang

Legende

Formelzeichen	Einheit	Einheitenname	Anmerkung
d	cm	Zentimeter	Abstand zum Detektor. d = 0 cm, sofern nicht angegeben
t	S	Sekunde	Messdauer
Counts		Impulszahl	Detektierte Impulse
R	1/s	Counts per second	Zählrate
k		Kalibrierfaktor	dimensionslos
k_mittel		gemittelter Kalibrierfaktor	arithmetisches Mittel
V_Cs	μL	Mikroliter	Cs-Lösung
V_Wasser	μL	Mikroliter	dest. Wasser
V	cm ³	Kubikzentimeter	Probenvolumen
u		Untergrund	Untergrund- impulse
m	g	Masse	Probenmasse
h	cm	Zentimeter	Füllhöhe
ρ	g/cm³	Massendichte	Probendichte
А	Bq	Becquerel	
A_sp.	Bq/kg	spezifische Aktivität	Scheinbare sp. Aktivität der Standards
A_fl.	Bq/m²	Flächenaktivität	Scheinbare Flächenaktivität der Standards
Die Unsicherheiten der Größen sind am Δ vor dem Formelzeichen zu erkennen. Andernfalls sind (Wert \pm Unsicherheit) angegeben.			

Bestimmung des Kalibrierfaktors

Messung	d [cm]	A [kBq]	t [s]
1	0	$7{,}69 \pm 0{,}15$	3600
2	0	$7{,}69\pm0{,}15$	3600
3	0	$7{,}69 \pm 0{,}15$	3600
4	2,5	$7{,}69 \pm 0{,}15$	3600

Messung	Counts	R [1/s]
1	815848 ± 939	$226{,}62\pm0{,}26$
2	832999 ± 939	$231,\!39\pm0,\!26$
3	834956 ± 1049	$231,93 \pm 0,29$
4	238317 ± 514	$66{,}20\pm0{,}14$

Messung	k	Δk	k_mittel	∆k_mittel
1	33,9328	0,6630		
2	33,2341	0,6493	33,4411	0,6535
3	33,1562	0,6481		
4	116,1646	2,2791		

Verdünnungsreihe

Probe	V_Cs [µL]	V_Wasser [µL]	t [s]
1	100		3600
2	87,5	12,5	3600
3	75	25	3600
4	50	50	3600
5	25	75	3600

Probe	Counts	ΔCounts	R [1/s]	ΔR [1/s]
1	9776	103	2,72	0,03
2	7818	91	2,17	0,03
3	6212	80	1,73	0,02
4	4331	76	1,20	0,02
5	2392	70	0,66	0,02

Probe	A [kBq]	ΔA [kBq]
1	0,0908	0,00202
2	0,0726	0,00165
3	0,0577	0,00135
4	0,0402	0,00106
5	0,0222	0,00078

Pipettiergenauigkeit

Probe	V_Cs [µL]	t [s]	Counts	ΔCounts
FP 1	80	7200	18260	149
FP 2	80	7200	18777	142
FP 3	80	7200	18666	142
FP 1 (2,5 cm)	80	7200	6220	89

Probe	R [1/s]	ΔR [1/s]	A [kBq]	ΔA [kBq]
FP 1	2,536	0,021	0,0848	0,00069
FP 2	2,608	0,020	0,0872	0,00066
FP 3	2,593	0,020	0,0867	0,00066
FP 1 (2,5 cm)	0,864	0,012	0,0289	0,00041

Vergleich zweier Analyseprogramme

Probe	Counts	ΔCounts	u	Δu
FP 1	17925	51	12	2
FP 2	18382	59	15	3
FP 3	18356	67	12	3

Probe	R [1/s]	ΔR [1/s]
FP 1	2,49	0,01
FP 2	2,55	0,01
FP 3	2,55	0,01

Standards

Probe	Bemerkung	m [g]	h [cm]
Troisdorf 1.4		100	3,1
Troisdorf 2.4		98	3
Troisdorf 2.4	d = 4,0 cm	98	3
Lohmar Std 3		120	3,8
Lohmar Std 3	Wiederholung	120	3,8
Sand 1		105	2,8
Sand 2		106	2,8
Sand 3		106	2,9
Blumenerde 1		30	4,5
Blumenerde 2		30	4,7
Blumenerde 3		30	5
Pilze 1		12	2
Pilze 2		12	1,8
Pilze 3		12	1,9
Pilze 4 halbvoll		6	1
Pilze 5 halb	nicht verwendet	6	1

Probe	ρ[g/cm³]	Δρ[g/cm³]	V [cm ³]	ΔV [cm ³]
Troisdorf 1.4	1,61	0,11	62	4,01
Troisdorf 2.4	1,63	0,11	60	4,01
Troisdorf 2.4	1,63	0,11	60	4,01
Lohmar Std 3	1,58	0,08	76	4,02
Lohmar Std 3	1,58	0,08	76	4,02
Sand 1	1,88	0,14	56	4,01
Sand 2	1,89	0,14	56	4,01
Sand 3	1,83	0,13	58	4,01
Blumenerde 1	0,33	0,03	90	8,01
Blumenerde 2	0,32	0,03	94	8,01
Blumenerde 3	0,30	0,03	100	8,02
Pilze 1	0,30	0,07	40	8,00
Pilze 2	0,33	0,08	36	8,00
Pilze 3	0,32	0,07	38	8,00
Pilze 4 halbvoll	0,30	0,13	20	8,00
Pilze 5 halb	0,30	0,13	20	8,00

Probe	t [s]	Counts	ΔCounts
Troisdorf 1.4	79200	78931	300
Troisdorf 2.4	79200	78595	296
Troisdorf 2.4	79200	22393	296
Lohmar Std 3	79200	71533	290
Lohmar Std 3	79200	72229	287
Sand 1	79200	81606	306
Sand 2	79200	83854	309
Sand 3	79200	84112	304
Blumenerde 1	79200	94749	518
Blumenerde 2	79200	83714	380
Blumenerde 3	79200	91853	438
Pilze 1	79200	144469	516
Pilze 2	79200	150950	437
Pilze 3	79200	152900	414
Pilze 4 halbvoll	79200	176328	468
Pilze 5 halb	79200	148508	433

Probe	R [1/s]	Δ R [1/s]	A [kBq]	ΔA [kBq]
Troisdorf 1.4	0,997	0,004	0,0333	0,00066
Troisdorf 2.4	0,992	0,004	0,0332	0,00066
Troisdorf 2.4	0,283	0,004	0,0095	0,00022
Lohmar Std 3	0,903	0,004	0,0302	0,00060
Lohmar Std 3	0,912	0,004	0,0305	0,00061
Sand 1	1,030	0,004	0,0345	0,00069
Sand 2	1,059	0,004	0,0354	0,00070
Sand 3	1,062	0,004	0,0355	0,00071
Blumenerde 1	1,196	0,007	0,0400	0,00081
Blumenerde 2	1,057	0,005	0,0353	0,00071
Blumenerde 3	1,160	0,006	0,0388	0,00078
Pilze 1	1,824	0,007	0,0610	0,00121
Pilze 2	1,906	0,006	0,0637	0,00126
Pilze 3	1,931	0,005	0,0646	0,00127
Pilze 4 halbvoll	2,226	0,006	0,0745	0,00147
Pilze 5 halb	1,875	0,005	0,0627	0,00124

Probe	A_sp. [kBq/kg]	ΔA_sp. [kBq/kg]	A_fl. [kBq/m ²]	$\Delta A_{fl.} [kBq/m^2]$
Troisdorf 1.4	0,33	0,0007	16,664	0,897
Troisdorf 2.4	0,33	0,007	16,593	0,893
Troisdorf 2.4	0,09	0,002	4,728	0,261
Lohmar Std 3	0,30	0,007	15,102	0,813
Lohmar Std 3	0,30	0,007	15,249	0,821
Sand 1	0,34	0,008	17,228	0,927
Sand 2	0,35	0,008	17,703	0,953
Sand 3	0,36	0,008	17,758	0,955
Blumenerde 1	0,40	0,009	20,003	1,079
Blumenerde 2	0,35	0,008	17,674	0,952
Blumenerde 3	0,39	0,009	19,392	1,045
Pilze 1	0,610	0,014		
Pilze 2	0,637	0,014		
Pilze 3	0,646	0,014		
Pilze 4 halbvoll	0,745	0,016]	
Pilze 5 halb	0,627	0,014]	

V. Erklärung der Selbstständigkeit

Ich versichere, dass ich die schriftliche Hausarbeit – einschließlich beigefügter Zeichnungen, Kartenskizzen und Darstellungen – selbstständig verfasst und keine anderen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe. Alle Stellen der Arbeit, die dem Wortlaut oder dem Sinne nach anderen Werken entnommen sind, habe ich in jedem Fall unter Angabe der Quelle deutlich als Entlehnung kenntlich gemacht.

Köln, den 01.04.2016

Christian Schütz