



Zentrale Technisch Wissenschaftliche Betriebseinheit  
ZTWB Radiochemie München RCM

# **Nutzung von Bremsstrahlungsinformation zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfallgebinde**

**Dipl. Phys. (Univ.) Benjamin Paul Rohrmoser**

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

**Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)**

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. Martin Zacharias

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr. Peter Böni  
2. Univ.-Prof. Dr. Stefan Schönert

Die Dissertation wurde am 23.12.2015 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 10.11.2016 angenommen.



*meinen lieben Eltern*



## Danksagung

Bevor es ans Lesen meiner Dissertation geht, möchte ich mich recht herzlich bei folgenden Personen bedanken, die zu der Entstehung meiner Doktorarbeit beigetragen haben und mir deren Durchführung überhaupt erst ermöglicht haben.

Mein besonderer Dank gilt:

Für seine Schirmherrschaft über mein Projekt und seine moralische Unterstützung danke ich besonders meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. Peter Böni.

Herrn Dr. Thomas Bücherl, der mir die Möglichkeit bot unter seiner Leitung diese Arbeit zu verfassen, mir dabei fast alle Freiheiten gewährte und mir gegenüber sehr viel Geduld bewies.

Herrn Dr. Christoph Lierse von Gostomski für die Anstellung an der RCM und seine Leidenschaft im Beruf und die daraus resultierende Motivierung seiner Mitarbeiter.

Des Weiteren gilt mein Dank:

Herrn Prof. Dr. Martin Zacharias für den Vorsitz bei der Promotionskommission. Prof. Dr. Stefan Schönert dafür, dass er sich bereit erklärt hat, Zweitgutachter dieser Arbeit zu sein.

Frau Gisela Grünewald für das Erklären und Anlernen an den meisten Messsystemen, ihre Unterstützung und Rat bei den Messungen und ihre unendliche Geduld bei Fragen. Herrn Horst Erntl für alles, was er mir beigebracht hat, besonders beim  $\gamma$ -Scanning und der zugehörigen Auswertung, seine Unterstützung bei dieser und den ein oder anderen guten Whisky. Herrn Christian Mattheis besonders für seine Unterstützung beim Abtippen lästiger Zahlenreihen. Herrn Marek Blaszczyński für jedes Gespräch in, um und über die Arbeit sowie das Teilen seines Schreibtisches. Herrn Liu Shuquan für die Hilfe bei MATLAB. Dr. Lin Xilei für die Bestrahlung und das Herstellen der  $^{170}\text{Tm}$ -Präparate. Herrn Dr. Fabian Scheipl für die Realisierung des R-Codes und die Diskussionen. Herrn Dominik Schreivogl für seine Motivation immer weiterzumachen. Und darüber hinaus allen Kollegen bei der RCM für das tolle, freundschaftliche Klima und die stetige Hilfsbereitschaft. Und zu guter Letzt meine Eltern und Freunden, die mich immer unterstützen.

Eure Hilfsbereitschaft sowie eure Arbeiten, Tipps und Unterstützung sind das Grundgerüst, durch das die vorliegende Arbeit überhaupt entstehen konnte. Besonders hervorheben möchte ich, dass ihr euch, wenn die Möglichkeit bestand, immer umgehend für mich Zeit nahmt, wenn ich auf euch zukam, egal ob meine Anliegen klein oder groß, sachlich oder unsachlich waren. Die daraus entstandenen Gespräche und Diskussionen haben mir sehr geholfen.

Danke!



## Verwendete Abkürzungen:

BS	Bremsstrahlung
EB	Elektronen-Bremsstrahlung
EXZ	Exzentrizität
HWZ	Halbwertszeit
LGS	Lineares Gleichungssystem
MAC	Mass Attenuation Coefficient
NIST	National Institute of Standards and Technology
OVT	Ortsverteilung
PDA	Probe-Detektor-Abstand
RCM	Radiochemie München
ROI	Region Of Interest
SGS	Segmentiertes- $\gamma$ -Scanning
ÜW	Übergangswahrscheinlichkeit
UG	Untergrund
UGK	Untergrundkorrektur
WW	Wechselwirkung





# Inhaltsverzeichnis

<b>Danksagung</b>	<b>III</b>
<b>Verwendete Abkürzungen</b>	<b>V</b>
<b>1 Motivation und Zielsetzung</b>	<b>1</b>
1.1 Ausgangslage . . . . .	1
1.2 Stand von Wissenschaft und Technik . . . . .	2
1.3 Zielsetzung . . . . .	3
<b>2 Theorie</b>	<b>7</b>
2.1 Allgemeines . . . . .	7
2.2 Physikalische Grundlagen . . . . .	7
2.2.1 Radioaktiver Zerfall . . . . .	7
2.2.2 Wirkungsquerschnitt . . . . .	13
2.2.3 Bremsstrahlung . . . . .	14
2.2.4 Wechselwirkung von Gamma-Strahlung mit Materie . . . . .	17
2.2.5 Schwächung von Gamma-Strahlung beim Durchgang durch Materie . . . . .	19
2.3 Gamma-Spektrometrie . . . . .	21
2.3.1 Effekte im Spektrum . . . . .	22
2.3.2 Der Rückstreupeak . . . . .	23
2.4 Zusammenfassung . . . . .	24
<b>3 Relevante Beta-Strahler</b>	<b>25</b>
3.1 Auswahlkriterien . . . . .	25
3.2 Übersicht der Strahler . . . . .	27
3.3 Praktische Relevanz . . . . .	29
<b>4 Entwicklung eines Auswerteverfahrens</b>	<b>33</b>
4.1 Allgemeines . . . . .	33
4.2 Auswerteverfahren . . . . .	33
4.2.1 Aufnahme des Untergrundspektrums . . . . .	34
4.2.2 Aufnahme des Gamma-Spektrums des Messobjekts . . . . .	34
4.2.3 Analyse des Gamma-Spektrums . . . . .	34
4.2.4 Rekonstruktion des Gamma-Spektrums auf der Grundlage der identifizierten und quantifizierten Gamma-Strahler . . . . .	36
4.2.5 Extraktion des Bremsstrahlungsanteils durch Differenzbildung von gemessenem und rekonstruiertem Gamma-Spektrum . . . . .	36
4.2.6 Interpretation des Bremsstrahlungsspektrums . . . . .	37
<b>5 Simulationswerkzeuge</b>	<b>41</b>
5.1 Allgemeines . . . . .	41
5.2 Das Simulationsprogramm EGSnrc . . . . .	42
5.2.1 Grundsätzliches zu EGSnrc . . . . .	42

5.2.2	Beispiele für Simulationen mit EGSnrc . . . . .	43
5.3	Weitere Berechnungen . . . . .	45
<b>6</b>	<b>Experimentelle Untersuchungen</b>	<b>47</b>
6.1	Allgemeines . . . . .	47
6.2	Messplätze . . . . .	47
6.2.1	Stationärer HPGe-Messplatz . . . . .	47
6.2.2	Mobiler HPGe-Messplatz . . . . .	48
6.2.3	Mobiler Gamma-Scanner . . . . .	49
6.3	Quellen . . . . .	51
6.4	Messungen . . . . .	54
6.4.1	Allgemeines . . . . .	54
6.4.2	Untergrund-Messungen . . . . .	54
6.4.3	Untersuchung von Geometrie Effekten . . . . .	56
6.4.4	Einfluss von Absorbern auf das Gamma-Spektrum . . . . .	58
6.5	Messungen an 200 L Gebinden am mobilen Gamma-Scanner . . . . .	61
<b>7</b>	<b>Auswertung und Diskussion</b>	<b>63</b>
7.1	Allgemeines . . . . .	63
7.2	Geometrie-Effekte . . . . .	64
7.2.1	Allgemeines . . . . .	64
7.2.2	Stationärer HPGe-Messplatz . . . . .	67
7.2.3	Mobiler Gamma-Scanner . . . . .	75
7.2.4	Zusammenfassung . . . . .	76
7.3	Einfluss von Absorbern auf das Spektrum . . . . .	77
7.3.1	Allgemeines . . . . .	77
7.3.2	Stationärer HPGe-Messplatz . . . . .	78
7.3.3	Mobiler HPGe-Messplatz . . . . .	79
7.3.4	Zusammenfassung . . . . .	81
7.4	Vergleich von Simulation und Messung . . . . .	82
7.4.1	Allgemeines . . . . .	82
7.4.2	Zu den Geometrieeffekten . . . . .	83
7.4.3	Simulation mehrere Gamma-Strahlern in einem Spektrum . . . . .	83
7.4.4	Zusammenfassung . . . . .	86
7.5	Bestimmung des Bremsstrahlungsanteils in Gamma-Spektren . . . . .	87
7.5.1	Die Parametrisierung . . . . .	87
7.5.2	Berechnung: Vom Elektronen- zum Photonenspektrum . . . . .	89
7.6	Anwendung des Auswerteverfahrens zur Identifikation von Beta-Strahlern . . . . .	92
7.6.1	Allgemeines . . . . .	92
7.6.2	Modell in R zur automatisierten Beta-Strahler-Bestimmung . . . . .	92
7.6.3	Vorverarbeitung der Daten und Anmerkungen . . . . .	93
7.6.4	Test des Auswerteverfahrens . . . . .	95
7.6.5	Zusammenfassung . . . . .	103
7.7	Quantifizierung und darüber hinaus . . . . .	106
7.7.1	Quantifizierung . . . . .	106
7.7.2	Identifikation von Bremsstrahlern in Gamma-Scans anhand ihrer Ortsverteilung . . . . .	111
7.7.3	Zusammenfassung . . . . .	115
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>117</b>
<b>A</b>	<b>EGSnrc Eingabedatei</b>	<b>121</b>
<b>B</b>	<b>Code der S(k)-Berechnung</b>	<b>125</b>

B.1	Matrix Interpolation . . . . .	125
B.2	Erzeugung der Sigma-Matrix . . . . .	126
B.3	Berechnung der Matrix $n(T, k)$ . . . . .	127
B.4	Berechnung von $S(k)$ . . . . .	128
<b>C</b>	<b>Quellcode R</b>	<b>129</b>
C.1	Code für Preprocessing . . . . .	129
C.2	Code für 50 keV Cut-Off ohne Rückstreuung . . . . .	131
C.3	Code für 50 keV Cutoff mit Rückstreuung . . . . .	132
C.4	Code für 90 keV Cut-Off ohne Rückstreuung . . . . .	133
C.5	Code für 90 keV Cut-Off mit Rückstreuung . . . . .	134
	<b>Literatur</b>	<b>135</b>



# Kapitel 1

## Motivation und Zielsetzung

### 1.1 Ausgangslage

Radioaktiver Abfall stellt rund um den Globus ein großes Problem der heutigen Zeit dar. Politisch ein heikles Thema, gibt es hierzulande nach wie vor keine Entscheidung über eine Lösung für die Endlagerung. Einigkeit herrscht lediglich darüber, dass Atommüll aufgrund seiner strahlenden Eigenschaften ein Risiko für Mensch und Natur darstellt. Produzenten hierzulande (abgesehen vom Uranbergbau) sind Forschungseinrichtungen vieler Wissenschaftsbereiche, medizinische Institute sowie die Nuklearindustrie.

Eine Einteilung radioaktiver Abfälle lässt sich in drei Bereiche treffen: schwach-, mittel- und hochradioaktiver Abfall. Dies ist das offizielle Schema der Internationale Atomenergie-Organisation (IAEA) [1]. Diese Einteilung kann jedoch auch je nach zuständiger Behörde oder Staat variieren [2]. So spielt neben der Halbwertszeit auch die stoffliche Zusammensetzung eine Rolle. Eine weitere Einteilung lässt sich nach Art des Aggregatzustands, Brennbarkeit, etc. treffen. Anfallender Abfall muss, bevor er in einer Lagerstätte gelagert wird, dafür lagerfähig gemacht werden, d.h. in einen chemisch stabilen, nicht wasserlöslichen Zustand übergeführt und möglichst raumsparend, transport- und (end)lagerfähig verpackt werden. Dabei spricht man von Konditionierung. Die Verpackung erfolgt in speziellen Transport- und Lagerbehältern. In ihnen wird der radioaktive Abfall in ein Gebinde, auch Matrix genannt, eingebracht und somit fixiert. Dieses ist ebenfalls chemisch stabil und wasserunlöslich.

Entscheidend beim Umgang und der Lagerung von radioaktivem Abfall ist eine genaue Kenntnis seines Nuklidinventars, d.h. Art und Menge der enthaltenen radioaktiven Isotope ist von größter Bedeutung. Um Gefahren von Mensch und Umwelt abzuwenden, muss vorhandener radioaktiver Müll möglichst sicher endgelagert werden. Hier wird die Bedeutsamkeit um die Kenntnis des Nuklidinventars deutlich:

Eine möglichst genaue Information über die Zusammensetzung von radioaktiven Abfällen hat einen erheblichen ökologischen und ökonomischen Einfluss. Mit jeder zusätzlichen Information über das Inventar eines endzulagernden radioaktiven Abfallgebundes können die, bei Nichtkenntnis zu treffenden konservativen Annahmen über dessen tatsächliches Inventar reduziert werden. Dies führt automatisch zu einer Reduzierung von Scheinaktivitäten und einer optimierten Auslastung der ggf. verfügbaren Lagerkapazitäten. Daher ist eine entsprechend Charakterisierung absolut notwendig.

Für die Charakterisierung radioaktiver Abfallgebunde werden vorzugsweise zerstörungsfreie Verfahren eingesetzt. Zerstörungsfrei heißt, dass Informationen aus einem geschlossen Objekt gewonnen werden, ohne dieses zu öffnen oder zu zerstören. Im Gegensatz dazu wird bei der zerstörenden Prüfung eine Probe aus dem Gebinde entnommen und gegebenenfalls einer chemische Aufbereitung unterzogen.

Der größte Vorteil eines zerstörungsfreien Verfahrens ist die Minimierung der Strahlenbelastung für das dort tätige Personal. Weitere Vorteile sind eine Reduzierung des zusätzlich anfallenden radioaktiven Abfalls und eine Einsparung an Zeit und Kosten gegenüber einer zerstörenden Analyse.

Zusammenfassend kann man sagen: Eine maximale Kenntnis des Nuklidinventars ermöglicht die bestmögliche Ausnutzung der erlaubten nuklidspezifischen Kapazitäten in den Lagerstätten. Ebenso wichtig ist der Schutz des Personals und der Umwelt. Auch bei einem möglichen Katastrophenfall wäre eine Abschätzung der zu treffenden Maßnahmen besser möglich.

Nachdem gerade die Rolle der zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfallgebinde dargelegt wurde, kommen wir nun zu einer neuen Möglichkeit, solch eine Charakterisierung zu realisieren. Auf Grund jahrzehntelanger Erfahrung der ZTWB Radiochemie München (RCM) der Technischen Universität München beim Betrieb von  $\gamma$ -Scannern und der Auswertung von  $\gamma$ -Spektren entstand eben dort die Idee der „Nutzung von Bremsstrahlungsinformation zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfallgebinde“.

Aufbauend auf diese Idee finden sich hier die Ergebnisse zur praktischen Umsetzung eben dieser, nach den Erkenntnissen, welche ich im Rahmen meiner Anstellung bei RCM in den letzten Jahren gewinnen konnte.

## 1.2 Stand von Wissenschaft und Technik

Radioaktive Strahlung tritt im Wesentlichen als  $\alpha$ -,  $\beta$ - oder  $\gamma$ -Strahlung auf. Für die Charakterisierung von  $\alpha$  und  $\beta$ -strahlenden Abfällen werden bisher ausschließlich zerstörende Verfahren eingesetzt. Bei der Identifikation über  $\gamma$ -Strahlung wird seit Jahrzehnten die  $\gamma$ -Spektroskopie als zerstörungsfreie Methode erfolgreich eingesetzt.

$\gamma$ -Strahlung durchdringt Materie und somit auch das Abfallgebinde relativ leicht<sup>1</sup>. Daher kann sie außerhalb des Fasses mit geeigneten Messgeräten nachgewiesen werden. Das Messverfahren des segmentierten  $\gamma$ -Scannings (SGS) ist eine etablierte Methode zur Charakterisierung radioaktiver Abfallgebinde [3]. Durch Abrastern der Oberfläche eines Gebindes (z. B. eines 200 L Fasses) mit einem kollimierten hochreinem Germanium (HPGe)-Detektor werden für jeden dieser Punkte  $\gamma$ -Spektren aufgenommen und abgespeichert. Gamma-Übergänge in Nukliden haben immer diskrete Übergangsenergien anhand derer sich die Nuklide identifizieren lassen. Die Analyse dieser Spektren<sup>2</sup> sowie des Summenspektrums, welches durch die Addition aller Einzelspektren gewonnen wird, ermöglicht die Identifizierung der im Gebinde enthaltenen  $\gamma$ -strahlenden Nuklide.

Werden elektrisch geladenen Teilchen gebremst entsteht elektromagnetische Strahlung. Diese wird als Bremsstrahlung bezeichnet. Sie tritt überall dort auf, wo sich bewegende, geladene Teilchen (durch Materie) abgebremst werden und hat stets eine nicht diskrete, kontinuierliche Energieverteilung. Bremsstrahlung ist ein weit verbreitetes Phänomen in der Physik. Man findet sie sowohl in einfachen Röntgenröhren [4] als auch in Superhaufen von Galaxien [5].

Der Zerfall eines Radionuklids setzt geladene Teilchen frei. So werden beispielsweise beim  $\beta^-$  bzw.  $\beta^+$ -Zerfall Elektronen bzw. Positronen emittiert. Jedes Radionuklid hat ein charakteristisches Elektronenspektrum, welches von der Art der Strahlung (d. h.  $\beta^-$  oder  $\beta^+$ ) sowie dem Isotop abhängt, sich kontinuierlich bis zu einer maximalen Energie erstreckt und durch eine Überlagerung vieler einzelner Zerfälle zustande kommt. Die Maximalenergie entspricht der Ener-

---

<sup>1</sup>Dies ist eine sehr verallgemeinernde Aussage, welche hier getroffen wird. Im Detail spielen die Energie der Strahlung, sowie die Abschirmereigenschaften der Materie eine wichtige Rolle.

<sup>2</sup>Es kann sich hierbei um mehrere hundert Einzelspektren handeln.

gie, welche das  $\beta$ -Teilchen bei seiner Emission maximal aus dem Zerfall erhalten kann und entsprechend bei einer vollständigen Abbremsung abgeben kann. Aus dem charakteristischen Elektronenspektrum ergibt sich bei Abbremsung der Elektronen ein ebenfalls charakteristisches Bremsstrahlungsspektrum.

Letzteres kann als „Verunreinigung“ in einem  $\gamma$ -Spektrum enthalten sein. In  $\gamma$ -Messungen an radioaktiven Abfallgebinden sind diese kontinuierlichen Spektren den charakteristischen Linienspektren radioaktiver Nuklide sowie dem Compton-Untergrund und weiteren Effekten überlagert. Diese Information wird jedoch aktuell in der Auswertung von  $\gamma$ -Spektren nicht berücksichtigt. Dies zeigte eine durchgeführte Literaturrecherche.

Für die Literaturrecherche wurden verschiedene Datenbanken und Suchmaschinen verwendet, dazu gehörten FIZ Karlsruhe, Microsoft Academic Search, Google Scholar u.a. für einen aktuellen Überblick auch arXiv.org. Auch wurden zahlreiche Journale direkt in die Recherche mit einbezogen, dazu gehörten „Nuclear Instruments and Methods in Physics Research“ sowie „atw“ um zwei relevante zu nennen. Zugang zu den Journalen liefert zumeist die elektronische Zeitschriftenbibliothek der Universitätsbibliothek der TUM. Zusätzlich zum Themengebiet Bremsstrahlung wurden in der Recherche auch einige ausgewählte Referenzen zu den Themengebieten  $\gamma$ -Spektroskopie, Daten / Datenbanken und Simulation von  $\gamma$ -Spektren mit berücksichtigt.

Nicht nur aus historischer Sicht interessant ist <http://www.datasync.com/rsfl/bremindx.htm>. Dort zugängliche ist eine Liste von Publikationen zum Thema Bremsstrahlung aus den Jahren 1891 bis 1986.

Eine weitere wichtige Quelle für Informationen zum Thema Bremsstrahlung war der Kontakt zu Mitarbeitern des Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL), USA. Hierdurch wurde eine Vielzahl berechneter Bremsstrahlungsspektren zugänglich gemacht.

Keine der gesichteten Arbeiten bezog sich jedoch direkt auf die Nutzung von Bremsstrahlungsinformationen in  $\gamma$ -Spektren radioaktiver Abfallgebände zur Identifikation und Quantifikation von  $\beta$ -Strahlern, d. h. es kann davon ausgegangen werden, dass das Thema im Rahmen dieses Arbeit erstmalig bearbeitet wird.

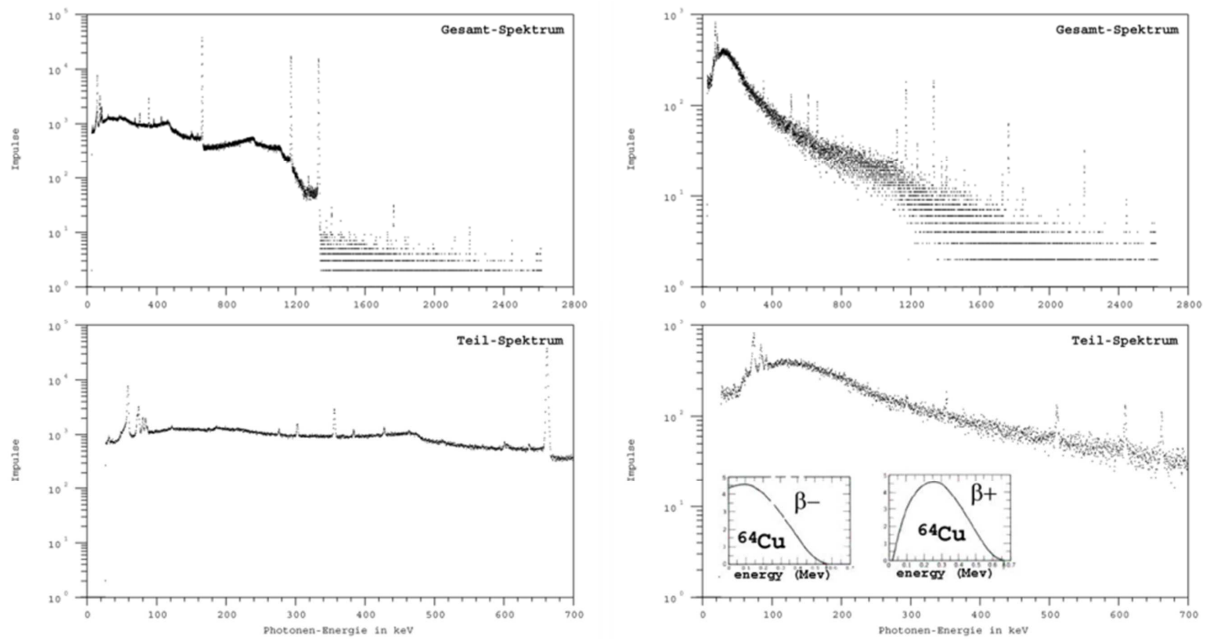
### 1.3 Zielsetzung

Wie angemerkt findet bisher keine Auswertung von Bremsstrahlungsinformation in der zur Charakterisierung von radioaktiven Abfall angewandten  $\gamma$ -Spektroskopie statt.

Eine entsprechenden Auswertung vorausgesetzt, eröffnet sich mit diesem Verfahren prinzipiell der Zugang zur zerstörungsfreien Charakterisierung von  $\beta$ -Emittern in radioaktiven Abfallgebinden. In der vorliegenden Arbeit sind die in Frage kommenden Abfallgebände 200 Liter Fässer mit schwach radioaktivem Abfall.

Die Möglichkeit, Abfallgebände während des segmentierten- $\gamma$ -Scannings auch auf das Vorhandensein von  $\beta$ -Strahler zu untersuchen, würde für die RCM einen erheblichen Mehrwert bei der zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfallgebände liefern.

In der Vergangenheit durchgeführte Messungen zeigten in den Summenspektren mancher  $\gamma$ -Scans mehrfach einen erhöhter Untergrund, der als Bremsstrahlung identifiziert werden konnte. Abbildung 1.1 zeigt die gemessenen  $\gamma$ -Spektren zweier Gebinde, wovon eines einen Anteil Bremsstrahlung enthält.



**Abbildung 1.1:** Vergleich eines  $\gamma$ -Scans mit und ohne  $\beta$ -Strahler. Die  $\beta^-$  und  $\beta^+$ -Spektren für  $^{64}\text{Cu}$ , welche in das Spektrum rechts unten eingeblendet sind stammen von [6].

Die linke Seite zeigt ein „normales“ Summenspektrum eines radioaktivem Abfallgebinden (200 L Fass), im rechten Spektrum sieht man eine kontinuierliche Erhöhung des Untergrundes zu niedrigen Energien hin, die durch einen Bremsstrahler erzeugt wird.

Hieraus ergab sich die Fragestellung, die im Rahmen der vorliegenden Promotionschrift bearbeitet wird:

Kann diese Information für eine erweiterte Charakterisierung des Nuklidinventars genutzt werden?

Es soll gezeigt werden, ob und welche Möglichkeiten für die Bestimmung von  $\beta$ -Strahlern anhand ihrer in  $\gamma$ -Spektren enthaltenen Bremsstrahlungsinformationen existieren.

Darüber hinaus stellt sich die Fragen, ob nach erfolgreicher Identifizierung auch eine Quantifizierung der gefundenen Nuklide möglich ist?

Um Antworten auf diese Fragen zu finden, fanden u. a. experimentelle Untersuchungen, an bei RCM verfügbaren Messsysteme statt. Dabei wurden radioaktive Quellen mit Aktivitäten von einigen kBq bis in den TBq-Bereich eingesetzt. Die Messungen erfolgten zu einem großen Teil im Labormaßstab, d. h. nicht an 200 Liter Abfallfässern, sondern an einem stationären HPGe-Messsystem in einer Bleiburg. Dies diente dem Erarbeiten der grundlegenden Prinzipien des Verfahrens, welches hier noch vorgestellt wird. Messungen mit realen Abfallgebinden bilden den kleineren, aber wesentlicheren Teil der Arbeit. Diese wurden teils an  $\gamma$ -Scanner-Systemen, teils an sehr kompakten, mobilen  $\gamma$ -Detektoren vermessen. Parallel zu den Messungen wurden umfangreiche Simulationsberechnungen durchgeführt, deren relevante Ergebnisse ebenfalls präsentiert werden. Die gewonnen Erkenntnisse sollen der späteren Übernahme der Methodik zur Analyse in den Routinebetrieb der Charakterisierung radioaktiver Abfallgebände dienen.

Im folgenden Kapitel 2 wird der radioaktive Zerfall, die dort anzutreffenden Strahlungsarten, seien diese primärer oder sekundärer Natur, und ihre Eigenschaften sowie ihre Detektierbarkeit besprochen.



Dabei wird sich zeigen, dass es eine große Anzahl von sekundärer Strahlung gibt welche im Spektrum auftreten kann, aber nicht zwingend muss. Diese Tatsache kann als Hinweis darauf verstanden werden, warum es bisher kein Verfahren gibt, das eine Auswertung des Beitrags der Bremsstrahlung in  $\gamma$ -Scans berücksichtigt. Die vorliegenden Arbeit lieferte eine erste Umsetzung eines möglichen Verfahrens und zeigt Beispiele bei denen eine Auswertung trotz der widrigen Grundvoraussetzung möglich war. Ein Risiko besteht, dass in der Praxis manche Identifikation scheitern werden und daher auch weiterhin teilweise konservative Abschätzungen nötig bleiben.



# Kapitel 2

## Theorie

### 2.1 Allgemeines

In diesem Kapitel werden die physikalischen und technischen Grundlagen erörtert welche für die Extraktion der Information über die Bremsstrahlung aus  $\gamma$ -Spektren nötig sind. Dieses Kapitel lässt sich grob in zwei Abschnitte teilen.

Im ersten Teil wird ein kurzer Überblick über die Arten des radioaktiven Zerfalls und die dabei anzutreffende Strahlungsarten gegeben. Hierzu werden nachfolgend erst die wesentlichen physikalischen Grundlagen zum  $\beta$ -Zerfall zusammengestellt. Der Schwerpunkt wird auf der Diskussion der Eigenschaften der Bremsstrahlung liegen.

Der zweite Teil nimmt sich den Methoden und technischen Herausforderungen in der Gamma-Spektroskopie an. Die Grundlagen der  $\gamma$ -Spektroskopie [7] werden als weitestgehend bekannt vorausgesetzt und aus diesem Grund nur insoweit betrachtet, als sie sich auf die Detektion des Bremsstrahlungsspektrums beziehen. Als Grundlage für diese Betrachtungen wurde u. a. [8] genutzt.

Am Ende dieses Kapitels wird mit den zuvor geschaffenen Grundlagen der Zugang zur Bremsstrahlungsinformation aufgezeigt. Die Gliederung und Argumentation in den nachfolgenden Kapiteln beruht im Wesentlichen auf einem Zusammenschritt der Skripten von Herrn Krücken [9] von der TU München und Herrn Weiss [10] vom Max-Planck-Institut für Astrophysik, Garching, sowie von Herrn zur Nedden [11] vom Desy.

### 2.2 Physikalische Grundlagen

Folgend wird der radioaktive Zerfall phänomenologisch beschrieben. Der  $\beta$ -Zerfall wird darüber hinaus ausführlich skizziert. Die Wechselwirkungseigenschaften des Elektrons mit Materie werden erörtert, unter welche auch die Bremsstrahlung fällt. Auch werden die häufigsten Wechselwirkungen von  $\gamma$ -Quanten, die für die  $\gamma$ -Spektroskopie eine Rolle spielen, aufgezeigt.

#### 2.2.1 Radioaktiver Zerfall

Der radioaktive Zerfall ist die Umwandlung oder der Zerfall eines Atomkerns in einen anderen. Atomkerne setzen sich aus Nukleonen zusammen. Zu den Nukleonen zählt man Protonen und

Neutronen. Für eine erste Betrachtung muss an dieser Stelle noch nicht auf die subatomare Struktur der Nukleonen eingegangen werden.

Es gibt verschiedene Modelle, die den Aufbau und den Zusammenhalt des Atomkerns beschreiben. Zwei häufig verwendete sind das Tröpfchenmodell und das Schalenmodell. Im Tröpfchenmodell wird der Kern quasi klassisch als kugelförmiges, elektrisch geladenes Flüssigkeitströpfchen betrachtet [12], in dem die Nukleonen den Molekülen eines inkompressiblen geladenen Flüssigkeitströpfchens entsprechen. Das Tröpfchenmodell liefert bereits gute Vorhersagen über die Stabilität von Kernen. Besonderheiten wie magischen Zahlen lassen sich damit nicht erklären.

Das Schalenmodell des Kerns ist eine quantenmechanische Beschreibung des Kerns. Es ist stark an das Schalenmodell des Atoms angelehnt und beruht auf der Quantisierung des Bahndrehimpulses, dem Pauli-Prinzip und dem Konstrukt der Orbitale (Potentialtopf) [13]<sup>1</sup>.

Für die Stabilität eines Kerns ist die Bindungsenergie der Nukleonen entscheidend. Kerne die Protonen oder / und Neutronen mit magischen Zahlen enthalten, werden magische Kerne bzw. doppelt magische Kerne genannt. In ihnen ist die Bindungsenergie pro Nukleon besonders hoch. Verschiedene Effekte nehmen dabei Einfluss auf die Stärke der Bindung. Eine Beschreibung über die Bindungsenergien nach dem Tröpfchenmodell liefert die Bethe-Weizsäcker-Formel [14], welche in der gezeigten Form um den letzten Term erweitert wurde, der erst mit dem Schalenmodell erklärbar wird:

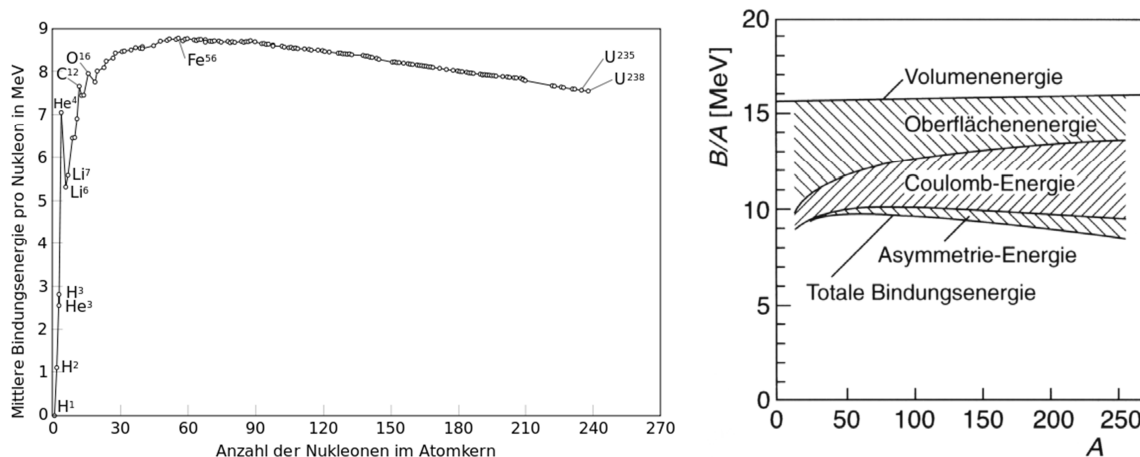
$$E_{\text{Bindung}} = E_{\text{Volumen}} - E_{\text{Oberfläche}} - E_{\text{Coulomb}} - E_{\text{Symmetrie}} \pm E_{\text{Paarung}} \quad (2.1)$$

Der Volumenterm beschreibt die gegenseitige Anziehung benachbarter Nukleonen auf Grund der starken Wechselwirkung. Der Oberflächenterm wirkt sich negativ auf die Bindung aus, da Nukleonen an der Oberfläche weniger Bindungspartner haben und dadurch weniger fest gebunden sind. Ebenso wirkt der Coulombterm, auf Grund der sich abstoßenden elektrischen Ladungen der Protonen, destabilisierend. Der Symmetrieterm ist quantenmechanischer Natur. Neutronen und Protonen sind Fermionen, daher unterliegen sie der Fermi-Dirac-Statistik und dem Pauli-Prinzip. Ist die Proton- gleich der Neutronen-Anzahl im Kern wird dieser Term gleich Null. Je unterschiedlicher die Neutronen und Protonen-Anzahl sind, desto mehr wirkt sich der Symmetrieterm negativ auf die Kernbindungsenergie aus. Eine Erklärung für den Paarungsterm liefert erst die Theorie hinter dem Schalenmodell. In ihm sind Proton-Proton und Neutron-Neutron Paare mit Spin Null stabiler, als die jeweiligen einzelnen ungepaarten Nukleonen. Bei gerader Protonen- und Neutronen-Anzahl hat er einen positiven, bei ungerader einen negativen Einfluss auf die Bindungsenergie. Bei Kombinationen von gerader und ungerader Protonen- und Neutronen-Anzahl wird sein Beitrag Null. Mit obiger Formel kann man die Bindungsenergie pro Nukleon bestimmen. Abbildung 2.1 zeigt eben diese Bindungsenergie. Zu beachten sind die Ausreißer bei He, C und O, diese beruhen auf den magischen Zahlen des Schalenmodells.

Aus der Abbildung kann man entnehmen, dass die Kerne mit der größten Bindungsenergie eine Massenzahl A, entsprechend der Anzahl an Nukleonen, von knapp 60 haben. Die Bindungsenergie reduziert die Ruheenergien der Kernbausteine, d. h. die Masse eines Atomkerns ist leichter als die Summe der Masse seiner Protonen und Neutronen. Dieser relativistische Effekt wird Massendefekt genannt. Der Massendefekt lässt sich durch Einsteins Relation  $E = mc^2$  beschreiben. Der Ausdruck gibt den Energiegehalt einer ruhenden Masse m an. Ein Teil dieser Ruheenergie ist im gebundenen Kern als Bindungsenergie gespeichert. Der Massendefekt ist durch die Stärke der starken Wechselwirkung bei Kernprozessen deutlich ausgeprägt<sup>2</sup>.

<sup>1</sup>Eugene Paul Wigner, Maria Goeppert-Mayer, J. Hans D. Jensen, 1949. Goeppert-Mayer & Jensen Nobelpreis im Jahr 1963.

<sup>2</sup>Bei den Hüllenelektronen ist dieser Effekt in der Regel vernachlässigbar. Außerhalb der Kernphysik spielt er



**Abbildung 2.1:** Bindungsenergie pro Nukleon aus [15]. Die Beiträge der einzelnen Komponenten aus [16]

Anschaulichstes Beispiel für die im Kern gebundene Bindungsenergie ist die Explosion einer Atombombe, dabei wird diese Energie auf einen Schlag freigesetzt. Je größer der Massendefekt eines Kerns im Verhältnis zu seinen Nukleonen ist, desto stabiler ist dieser Kern, d. h. es muss mehr Energie zu seiner Spaltung aufgebracht werden. Die Frage ob ein Kern stabil oder instabil ist beantwortet sich indem man seine Masse betrachtet: Ist die Masse des Mutterkerns größer als die Summe der Massen seiner Zerfallsprodukte, ist der Kern instabil.

Ist ein Kern nicht stabil, zerfällt er spontan ohne Energiezufuhr von außen. Diesen Zerfall bezeichnet man als radioaktiven Zerfall. Er ist statistischer Natur, d. h. wenn man ein Ensemble von Kernen betrachtet, zerfallen daraus zufällig in einer bestimmten Zeit eine bestimmte Anzahl der Kerne. Vorhersagen welcher Kern zerfällt sind nicht möglich. Nur die Anzahl der Zerfälle pro Zeit ist bekannt, ein Maß dafür ist die Halbwertszeit des Nuklids. Mit ihrer Hilfe und dem Zerfallsgesetz lässt sich die Zahl der zerfallenen Teilchen zu einem beliebigen Zeitpunkt berechnen.

Radioaktive Zerfälle können im Wesentlichen in drei Klassen eingeteilt werden:

- Der  $\alpha$ -Zerfall bei dem der Kern einen  ${}^4_2\text{He}$ -Kern emittiert. Dabei ändert sich die Kernzusammensetzung von  $(A, Z)$  zu  $(A-4, Z-2)$ .
- Die spontane Spaltung, bei der der Kern in etwa zwei gleichgroße Teilfragmente zerbricht.
- Der  $\beta$ -Zerfall. Auf seine Eigenart wird später detailliert eingegangen.

Nach beinahe jedem radioaktiven Zerfall befindet sich der oder die Tochterkerne in einem energetisch angeregten Zustand. Diese überschüssige Energie wird über  $\gamma$ -Strahlung abgegeben, dabei spricht man häufig von einem  $\gamma$ -Zerfall<sup>3</sup>, bei dem ein angeregter Kernzustand ein  $\gamma$ -Quant aussendet. Eine andere Möglichkeit, die Energie des angeregten Zustand abzugeben ist die Interne Konversion, auch Innere Konversion genannt. Dabei überträgt der angeregte Tochterkern direkt seine Energie auf ein Hüllenelektron, welches mit einer diskreten Energie von  $E_e = E_\gamma - E_{\text{Bindung}}$  den Kern verlässt. Dies ist kein zweistufiger Prozess, bei dem ein  $\gamma$ -Quant die Vermittlung übernimmt. Die Energieübertragung findet direkt auf Grund elektromagnetischer Wechselwirkung

keine Rolle.

<sup>3</sup>Je nach Autor, wird dieser manchmal als vierte Zerfallsart behandelt. Da sich dabei das Element nicht mehr ändert, sondern nur noch die überschüssige Energie des Tochterkerns abgegeben wird, wird hier die Einteilung mit drei Zerfallsarten gewählt.

zwischen Kern und Hüllenelektron statt. Im Anschluss erfolgt eine spontane Emission eines Röntgenquants durch Rekombination in den Schalen der Elektronenhülle.

Ein Maß für die Stabilität eines Kerns ist die sogenannte Separationsenergie  $S$ . Kerne sind stabil, wenn die Separationsenergie im Vergleich zur Bindungsenergie pro Nukleon groß ist. Ansonsten kann ein (radioaktiver) Zerfall stattfinden. Die Separationsenergie  $S$  berechnet sich aus der Massendifferenz des Mutterkerns mit Masse  $m_M(A, Z)$  zu der des Tochterkern  $m_T(A-x, Z-y)$  plus der des separierten Teilchens  $m(x, y)$ .  $x$  und  $y$  sind die Protonen- bzw. Neutronen-Anzahl des separierten Fragments. Ist das separierte Teilchen beispielsweise ein  $\alpha$ -Teilchen, also ein  ${}^4\text{He}$ -Kern mit Masse  $m_\alpha(4, 2)$ , dann gilt für  $S_\alpha$  (mit Bindungsenergie  $B$ ):

$$S_\alpha = m_T(A-4, Z-2) + m_\alpha(4, 2) - m_M(A, Z) = B_M(A, Z) - B_T(A-4, Z-2) - B_\alpha(4, 2) \quad (2.2)$$

Gibt man die Separationsenergie für einzelne Protonen oder Neutronen an, definieren die Nuklide bei denen die Separationsenergie Null erreicht, die entsprechenden Abbruchkanten auf der Nuklidkarte. Ist die Separationsenergie negativ treten spontane Zerfälle, mit den zugehörigen Teilchen auf. Es gibt sogenannte Protonen- oder Neutronenabbruchkanten, dort kann ein Kern kein weiteres Proton bzw. Neutron mehr aufnehmen<sup>4</sup>.

## Der Beta-Zerfall

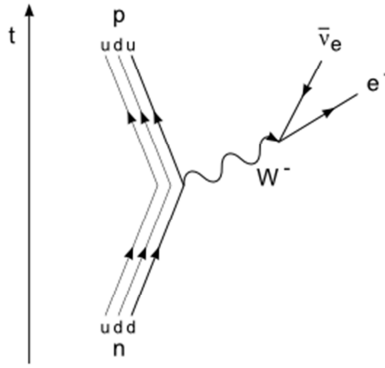
In obiger Diskussion war es nicht nötig genauer auf die Substruktur der Nukleonen einzugehen, da man die starke Wechselwirkung als Prozess zwischen Nukleonen verstehen kann. Bei der Diskussion des  $\beta$ -Zerfalls ist dieser tiefere Blick jedoch sinnvoll, da der zugrundeliegende Prozess die schwache Wechselwirkung ist. Diese ist ein Prozess, der direkt in den einzelnen Nukleonen stattfindet. Nukleonen sind aus Quarks zusammengesetzt. Ein Proton besteht aus zwei down- und einem up-Quark, ein Neutron hingegen aus einem down- und zwei up-Quarks. Die für die schwache Wechselwirkung verantwortlichen sehr massereichen Austauschteilchen sind im Fall des  $\beta$ -Zerfalls W-Bosonen die eine Masse von  $80,401 \text{ GeV}/c^2$  [17] besitzen. Durch diese hohe Masse ist die Wechselwirkung extrem kurzreichweitig, deutlich kürzer als ein Atomkerndurchmesser. Die schwache Wechselwirkung ist für den Wechsel des Isospins (Flavour) eines Quarks zuständig. Bisher wurde nur allgemein vom  $\beta$ -Zerfall gesprochen, es existieren jedoch verschiedene Arten für diesen Zerfall. Allgemein werden unter dem Begriff  $\beta$ -Zerfall folgende drei Prozesse verstanden:

- Elektron-Emission ( $\beta^-$ -Zerfall)
- Positron-Emission ( $\beta^+$ -Zerfall)
- Elektron-Einfang

Im Folgenden wird nur exemplarisch auf den  $\beta^-$ -Zerfall eingegangen. Später werden die verschiedenen Zerfalls-Arten und die Eigenschaften der Kerne, welche die jeweilige Art begünstigen aufgezeigt. Im Falle des  $\beta^-$ -Zerfalls ist das Austauschteilchen der schwachen Wechselwirkung ein  $W^-$ -Boson. Es tritt beim Zerfall als virtuelles Teilchen auf und zerfällt selbst in ein Elektron und ein Elektron-Antineutrino. Abbildung 2.2 zeigt ein Feynman-Diagramm dieses Prozesses.

---

<sup>4</sup>Eine einfache, nicht in allen Fällen zutreffende Definition für diese Abbruchkanten: Gibt man die Separationsenergie für einzelne Protonen oder Neutronen an, definieren die Nuklide bei denen die Separationsenergie dabei Null erreicht, die entsprechenden Abbruchkanten auf der Nuklidkarte.



**Abbildung 2.2:** Feynman-Diagramm des  $\beta^-$ -Zerfalls.

Formal kann man den Prozess aus Abbildung 2.2 schreiben als:

$$udd \xrightarrow{W^-} uud + e^- + \bar{\nu}_e \quad (2.3)$$

In ihm wandelt sich ein Neutron ( $udd$ ) unter Aussendung eines Elektrons und eines Elektron-Antineutrinos in ein Proton ( $uud$ ) um. Auf Ebene der Nukleonen lautet der Prozess somit:

$${}^1_0n \rightarrow {}^1_1p + e^- + \bar{\nu}_e \quad (2.4)$$

Die freiwerdende Zerfallsenergie verteilt sich auf das Elektron und das Antineutrino.

Es gibt allerdings auch den umgekehrten Prozess, in dem ein  $W^+$ -Boson ein up-Quark in ein down-Quark verwandelt. Das  $W^+$ -Boson zerstrahlt dabei in ein Antielektron und Elektron-Neutrino. Diese Art des Zerfalls wird  $\beta^+$ -Zerfall genannt.

$$uud \xrightarrow{W^+} udd + e^+ + \nu_e \quad (2.5)$$

Anders gesprochen wandelt sich ein Proton unter der Aussendung eines Positrons und eines Elektron-Neutrinos in ein Neutron um:

$${}^1_1p \rightarrow {}^1_0n + e^+ + \nu_e \quad (2.6)$$

In diesem Fall verteilt sich die freiwerdende Zerfallsenergie auf das Positron und das Neutrino, abzüglich eines Betrages von  $2m_0c^2$  für jeweils die Ruheenergie. Dem  $\beta^+$ -Zerfall folgt in der Regel unmittelbar die Emission von zwei  $\gamma$ -Quanten mit 511 keV aufgrund der Materie-Antimaterie-Annihilation des emittierten Positrons mit einem Elektron.

Als Elektronen-Einfang wird der Prozess bezeichnet, bei dem ein Elektron eines Atoms - meist aus den inneren Schalen und bevorzugt aus der K-Schale - vom Atomkern eingefangen wird. Dabei wandelt sich ein Proton in ein Neutron unter Emission eines Neutrinos um.

$${}^1_1p + e^- \rightarrow {}^1_0n + \nu_e \quad (2.7)$$

Begleitet ist dieser Prozess von der Emission von Röntgenstrahlung, welche charakteristisch für das Atom ist, da es sich um einen Röntgenübergang des Tochterkerns handelt. In den meisten Fällen handelt es sich um Röntgenstrahlung aus der K-Schale, manchmal wird auch ein Auger-Elektron emittiert.

Der ebenfalls existierende doppelte  $\beta$ -Zerfall ist im Rahmen der vorliegenden Betrachtungen vernachlässigbar und wird nicht weiter berücksichtigt. Der Spezialfall des freien Neutronen-Zerfalls ist hier ebenfalls nicht von Interesse.

Für die weitere Betrachtung sind die spektralen Verteilungen des Elektrons bzw. des Positrons im  $\beta^-$ - und  $\beta^+$ - Zerfall relevant. Für ihre näherungsweise Herleitung, die auf dem quantenmechanischen Ausdruck für Übergangswahrscheinlichkeiten basiert und sich aus der zeitabhängigen Störungsrechnung erster Ordnung ergibt, wird nachfolgend nicht eingegangen, sondern nur die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst. Für eine tiefer gehende Betrachtung sei auf die einschlägige Literatur verwiesen, beispielsweise [8], [18].

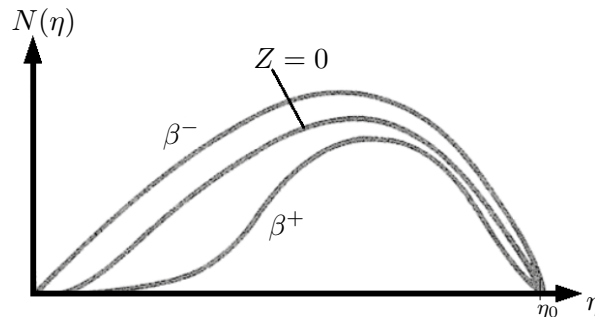
Mittels der Gleichung

$$N(\eta)d\eta = \frac{|H_{fi}|^2}{B} f^* \cdot (\varepsilon_0 - \varepsilon)d\eta \quad (2.8)$$

mit

- $N(\eta)$  Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für das Auftreten eines Elektrons mit Impuls  $\eta$
- $H_{fi}$  Matrixelement des Hamilton-Operators zwischen Anfangszustand  $i$  und Endzustand  $f$  (nicht oder nur sehr schwach energieabhängig)
- $f^*$  Fermi-Funktion; berücksichtigt u. a. eine Korrektur der Spektralform aufgrund des Coulomb-Feldes des Kerns, das eine Beschleunigung der Positronen und eine Verzögerung der Elektronen bewirkt.
- $B$  Konstante
- $\varepsilon_0$  Maximalenergie
- $\varepsilon$  Energie

kann die Form eines  $\beta$ -Spektrums näherungsweise berechnet werden. Dies ist in Abbildung 2.3 schematisch dargestellt. Der Einfluss des Coulomb-Feldes des Kerns auf die Form des Spektrums ist erkennbar, so erhalten die Positronen nach dem sie die Coulomb-Barriere des Kerns überwunden haben, einen extra Schub um die Kernregion zu verlassen, Elektronen werden verzögert. Zum Vergleich wurde auch der Verlauf für ein fiktives, ladungsfreies Teilchen mit eingezeichnet ( $Z=0$ ).



**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der Form von  $\beta$ -Spektrn (aus [8]). Zum besseren Verständnis ist der Verlauf für ein fiktives ladungsfreies  $\beta$ -Teilchen mit eingezeichnet ( $Z=0$ ).

Die Gleichung kann auch für die Identifikation von  $\beta$ -Strahlern genutzt werden. Durch Umformung ergibt sich

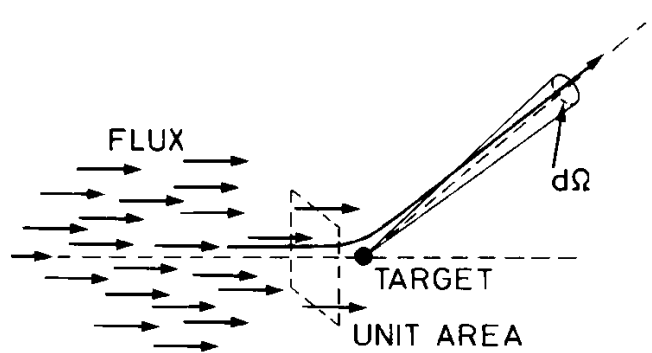
$$\sqrt{\frac{N(\eta)}{f^*(Z, \eta)}} = const \cdot (\varepsilon_0 - \varepsilon) \quad (2.9)$$



Die grafische Darstellung dieser Relation (die sogenannte Fermi-Darstellung oder auch Kurie-Plot) ist eine Gerade, aus deren Verlauf die Maximalenergie (auch Endpunktenergie  $E_{max}$  bzw.  $E_0$  genannt) relativ genau bestimmt werden kann. Ein Vergleich mit tabellierten, nuklidspezifischen Maximalenergien liefert den zugehörigen  $\beta$ -Strahler. In der  $\beta$ -Spektroskopie zeigen die meisten  $\beta$ -Strahler tatsächlich dieses lineare Verhalten<sup>5</sup>.

## 2.2.2 Wirkungsquerschnitt

Eine wichtige physikalische Größe ist der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$ . Er ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung zwischen einer Welle oder einem Teilchen (Projektile) mit einem anderen Teilchen (Target). Bildhaft gesprochen ist der Wirkungsquerschnitt die Fläche unter der das Target dem Projektil erscheint. Jede Art von Wechselwirkungen, Absorption, elastische-, inelastische Streuung oder irgendeine Reaktion, z.B. Bremsstrahlungserzeugung, kann mit einem eigenen Wirkungsquerschnitt beschrieben werden.



**Abbildung 2.4:** Definition des Wirkungsquerschnitts nach [11]

Man kann den differentiellen Wirkungsquerschnitt  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ , wie in Abbildung 2.4 dargestellt, durch folgende Formel ausdrücken:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E, \Omega) = \frac{1}{\Phi} \frac{dN_s}{d\Omega} \quad (2.10)$$

- $E$  = Energie des Projektils
- $\Phi$  = ein gleichmäßig in Ort und Zeit verteilter Fluss aus Projektil-Teilchen, sein Strahlquerschnitt ist wesentlich größer als das Target
- $d\Omega$  = Raumwinkelement
- $N_s$  = mittlere Zahl gestreuter Teilchen pro Zeiteinheit

In einer quantenmechanischen Betrachtung ist  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  ein Wahrscheinlichkeitsstrom in das Raumwinkelement  $d\Omega$ . Dieser ist normiert auf die Wahrscheinlichkeit, dass das Projektil die Targetfläche passiert. Der Ausdruck ist energie- und streuwinkelabhängig.

Den totalen Wirkungsquerschnitt für eine bestimmte Energie  $E$  erhält man durch Integration über alle Winkel:

<sup>5</sup>Abweichung sind durch Ungenauigkeiten in den Annahmen begründet, die in der Herleitung der Gleichung unterstellt wurden.

$$\sigma(E) = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \quad (2.11)$$

### 2.2.3 Bremsstrahlung

Elektronen können Bremsstrahlung erzeugen. Aus der klassischen Elektrodynamik folgt, dass ein geladenes Teilchen, also auch ein Elektron bzw.  $\beta$ -Partikel Strahlung emittiert sobald es beschleunigt bzw. abgebremst wird. In der Quantenmechanik ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon erzeugt wird, sobald ein Elektron beschleunigt wird, größer Null. Unter Zuhilfenahme dieses Welle-Teilchen-Dualismus wird nachfolgend eine kurze, aber für diese Arbeit ausreichende, Beschreibung des Bremsstrahlungsphänomens gegeben.

Nachfolgend wird der, der externen Bremsstrahlung, zugrunde liegende Prozess am Beispiel von Elektronen kurz skizziert.

Die Bremsstrahlung ist abhängig von dem auf das Elektron einwirkende elektrische Feld. Das elektrische Feld des Kerns spielt bei der Erzeugung der Bremsstrahlung die tragende Rolle, daher ist diese von der Kernladungszahl des Materials abhängig. Jedoch wird die Kernladung durch das Feld der atomaren Elektronen abgeschirmt. Der Effekt der Abschirmung lässt sich mit einem Faktor  $\xi$  beschreiben [11].

$$\xi = \frac{100m_e c^2 h\nu}{E_0 E Z^{1/3}} \quad (2.12)$$

Dabei ist  $h\nu = E_0 - E$  die Energie des emittierten Photons,  $E_0$  und  $E$  die Anfangs- bzw. Endenergie des Elektrons und  $Z$  die Kernladungszahl. Die beiden Extreme  $\xi \simeq 0$  und  $\xi \gg 1$  legen die Grenze für eine weitere Berechnung fest und entsprechen dabei einer kompletten und gar keiner Abschirmung. Es kann gezeigt werden, dass gilt:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{rad} = N \int_0^{\nu_0} h\nu \frac{d\sigma}{d\nu}(E_0, \nu) d\nu \quad (2.13)$$

Das Integral muss numerisch berechnet werden, dabei ist  $N$  die Teilchenzahldichte. Für verschiedene Energiebereiche und Materialien gibt es mit unterschiedlichen theoretischen Ansätzen einige empirische Berechnungen, z. B. [19], [20].

Der Ausdruck  $dE/dx$  gibt den Energieverlust pro Längeneinheit an, im Englischen spricht man von „stopping power“. Der totale Energieverlust setzt sich wie folgt zusammen:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{tot} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_{ion} + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{rad} \quad (2.14)$$

Dabei gibt  $(dE/dx)_{ion}$  den Ionisationsverlust an, das entspricht dem Teil der Energie, den die Elektronen durch Ionisation der Atome verlieren. Der Strahlungsverlust  $(dE/dx)_{rad}$  wird als äußere Bremsstrahlung bezeichnet, da hier das Elektron von außen auf ein Atom trifft. Er ist die allgemeine Form, die man unter dem Begriff Bremsstrahlung versteht. Beim radioaktiven Zerfall gibt es allerdings eine zweite Art von Bremsstrahlung, die sogenannte innere Bremsstrahlung<sup>6</sup>.

<sup>6</sup>Die innere Bremsstrahlung entsteht direkt am  $\beta$ -zerfallenden Kern und wird durch Prozess  $n \rightarrow p + e + \gamma + \bar{\nu}$  beschrieben.

Für die totale „stopping power“ eines Materials der Dichte  $\rho$  wurde Ende 2010 eine empirische Formel, mit den Konstanten  $A, B, C, M$  und  $K$  sowie der Ordnungszahl  $Z$  und der totalen Teilchenenergie  $\gamma$ , mit einem Gültigkeitsbereich von 20 keV bis 50000 keV von Rathi et al. publiziert [21] :

$$-1/\rho(dE/dS)_{tot}^{\pm} = (MZ + C)(\gamma^{A\pm Z+B\pm})/\gamma(K^{\pm} - 1) \quad (2.15)$$

Die Beiträge der einzelnen Komponenten und ihre Berechnung sind in [22] zu finden. Dabei wird in dem für diese Arbeit relevanten Energiebereich bis 2 MeV die „stopping power“ für Bremsstrahlung nach einer Kombination aus Berger Seltzer [23] und Pratt [24] et al. berechnet. Diese ist zurückzuführen auf die Arbeit von Tseng und Pratt [25]. Weitere Referenzen und Details sind unter [22] zu finden.

$\beta$ -Strahlung hat in Materie eine Reichweite von wenigen Millimetern. Für die vorliegende Arbeit wird die Annahme getroffen, dass die radioaktiven Quellen nicht frei im Raum schweben, sondern im Allgemeinen verpackt, also von Materie im festen Aggregatzustand umgeben sind. Dessen Dicke ist in der Regel immer größer als die Reichweite der Elektronen, im entsprechenden Material. Unter der Annahme eines solchen dicken Absorbers, entsteht in der unmittelbaren Umgebung des  $\beta$ -Emitters, die gesamte äußere Bremsstrahlung mit dem ihr zugehörigen Spektrum. Dieser Bereich in dem die Bremsstrahlung erzeugt wird, heißt Erzeugermatrix, sie ist das radioaktive Material selbst und das unmittelbar umgebende Material, die Verpackung. Im Gegensatz zur Erzeugermatrix gibt es auch noch eine Absorbermatrix. Als solche wird Materie bezeichnet welche, von der bereits erzeugte Bremsstrahlung durchdrungen wird und in dem diese abgeschwächt wird. Sie ist verantwortlich für die Erzeugung sekundärer Strahlung und deren Streuung, sowie für die Absorption sowohl von primärer als auch sekundärer Strahlung. Details hierzu befinden sich im theoretischen Teil dieser Arbeit ab Kapitel 2.2.4.

Ist die Erzeugermatrix ein „dicker“ Absorber<sup>7</sup>, gilt für die Berechnung der in ihr entstehenden Bremsstrahlung, nach [26]:

Trifft ein einzelnes Elektron der Energie  $T$  auf einen dicken Absorber, erzeugt es dort  $n$  Photonen mit der Energie  $k$ , wobei  $k \leq T$  gilt. Dieser Prozess kann durch die Gleichung von Bethe und Heitler [27] beschrieben werden<sup>8</sup>:

$$n(T, k) = N \int_k^T \frac{\sigma_k(E)}{-dE/dx} dE \quad (2.16)$$

Die rechte Seite der Gleichung enthält die Eigenschaften des Absorbers.  $N$  ist seine Teilchenzahldichte,  $\sigma_k(E)$  der Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung eines Photons der Energie  $k$  durch ein Elektron mit Energie  $E$  in dem Absorber. Das Bremsvermögen des Materials für Elektronen wird durch  $(dE/dx)$  beschrieben. Die Integrationsgrenzen sind durch die Tatsache festgelegt, dass ein Elektron der Energie  $T$  kein Photon mit einer höheren Energie erzeugen kann, d. h. es gilt immer  $k \leq T$ .

$\beta$ -Spektren decken einen Energiebereich bis zu der nuklidspezifischen Maximalenergie  $T_{max}$  kontinuierlich ab (siehe Kapitel 2.2.1). Wird dieses Spektrum  $P(T)$  normiert, d. h. gilt

$$\int_0^{T_{max}} P(T) dT = 1 \quad (2.17)$$

<sup>7</sup>Dicke des Absorbers wesentlich größer als die Reichweite der Elektronen im Absorbermaterial.

<sup>8</sup>Für  $\beta^+$ -Strahler ist die Gleichung von Bethe und Heitler entsprechend anzupassen.

dann kann die Anzahl  $S$  der Bremsstrahlungsfotonen mit der Energie  $k$ , welche von einem  $\beta$ -Strahler mit dem Elektronen-Spektrum  $P(T)$  erzeugt werden, durch die Gleichung

$$S(k) = \int_T^{T_{max}} P(T)n(T, k)dT \quad (2.18)$$

beschrieben werden, d. h.  $S(k)$  beschreibt das Bremsstrahlungsspektrum<sup>9</sup>.

Bisher wurde nur von der äußeren Bremsstrahlung gesprochen und die innere nur beiläufig erwähnt. Diese entsteht direkt im elektrischen Feld des Kerns in dem das Elektronen beim  $\beta$ -Zerfall erzeugt wird, wenn es diesen verlässt. Ihre Herleitung [29] wird an dieser Stelle nicht gezeigt, ihre Entstehung und damit Intensität ist in erster Näherung jedoch unabhängig von der Kernladungszahl  $Z$ , ganz im Gegensatz zur äußeren Bremsstrahlung die näherungsweise mit  $Z^2$  (vgl. z. B. [30]) geht. Wichtig bleibt hier festzuhalten, dass die Bremsstrahlung ein für das Nuklid typisches charakteristisches Spektrum besitzt.

## Form und Intensität des Bremsstrahlungsspektrums

Wie wir gesehen haben gibt es die innere und die äußere Bremsstrahlung, welche bei Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit auftreten können.

Wichtig für eine Charakterisierung der  $\beta$ -Strahlers anhand seiner Bremsstrahlung ist, dass sie ein charakteristisches Spektrum aufweisen. Evans stellte in seinem Buch „The atomic nucleus“ fest:

„However, the shape of the bremsstrahlung spectrum is independent of  $Z$  of the absorber. Hence each  $\beta$ -ray emitter has its own characteristic external bremsstrahlung spectrum.“ [31]

Zu identischen Aussagen gelangten auch Wu [32] sowie Edwards und Pools [33]. D. h. jeder  $\beta$ -Strahler hat sein eigenes charakteristisches Spektrum.

Dies ist die grundsätzliche Annahme, welche für eine zweckmäßige Bearbeitung der hier gestellten Aufgabe unterstellt wurde. Ändert sich das Bremsstrahlungsspektrum bei jeder möglichen Kombination aus Quelle und Erzeugermatrix, wird die Aufgabe unüberschaubar komplex, bzw. was nicht charakteristisch ist ist nicht zu charakterisieren.

Untersuchungen von Dhaliwahl zeigten jedoch, dass sich nicht nur die Intensität sondern auch die Form des Bremsstrahlungsspektrums verändert [28]. Im Kapitel 7.5.2 wird eine Berechnung durchgeführt, welche den Unterschied zeigt.

Auch zeigten Singh et al. [34] 2012, als ein Großteil der vorliegenden Messungen bereits erledigt war<sup>10</sup>, dass sich die Form und dadurch die Photonenzahl (Intensität) des Bremsstrahlungsspektrum durch den Beitrag der Polarisations-Bremsstrahlung ändert, was zumindest bei kleinen Energien eine Rolle spielt. Der von ihnen untersuchte Energiebereich lag zwischen 5 keV und 30 keV. Dieser Bereich spielt in dieser Arbeit jedoch keine Rolle.

Bei den im Rahmen der Arbeit durchgeführten Messungen waren alle radioaktiven Quellen (vgl. Kapitel 6.3) fest in einer Erzeugermatrix verpackt. Daher bestand nicht die Möglichkeit, das

<sup>9</sup>Anmerkung: Bei elementaren Absorbern kann  $S(k)$  als Funktion der Ordnungszahl  $Z$  ausgedrückt werden [28], d. h. in der Form  $S(k) \sim Z^n$ .

<sup>10</sup>Das Paper wurde erst 2014 bei einer erneuten Recherche entdeckt, als die finale Version dieses Kapitels geschrieben wurde.

radioaktive Material in eine Vielzahl unterschiedlicher Erzeugermatrizen zu platzieren und diesen Effekt zu untersuchen. Somit zeigten sich bei gleichen Nukliden kein Unterschied in der Form des Bremsstrahlungsspektrums.

Es wird zudem im Weiteren von der Annahme ausgegangen, dass sämtliche Bremsstrahlung in dicken Absorbern (vgl. Rechnung vorangegangenen Abschnitt) nur von einer Erzeugermatrix<sup>11</sup> stammt.

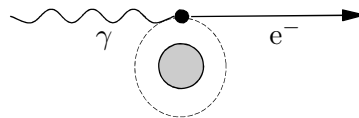
Die unterschiedlichen Arten der Bremsstrahlung, also Innere- und Äußere, können bei den durchgeführten Messungen und den bei RCM betriebenen  $\gamma$ -Scanner nicht unterschieden werden.

## 2.2.4 Wechselwirkung von Gamma-Strahlung mit Materie

Damit die  $\gamma$ -Spektroskopie überhaupt funktioniert, müssen die  $\gamma$ -Quanten mit dem Detektormaterial wechselwirken, damit sie dort detektierbar sind. Als mögliche Wechselwirkungen können Absorption, elastische- sowie inelastische Streuungen auftreten. Zwei Absorptionsprozesse, der Photoeffekt und die Paarbildung, sowie ein Streuprozess, die elastische Compton-Streuung, sind die bei der  $\gamma$ -Spektroskopie dominierenden Wechselwirkungsmechanismen. Andere Prozesse, wie z. B. Rayleigh- oder Delbrück-Streuung, können diesen gegenüber vernachlässigt werden.

### Photoeffekt

Beim Photoeffekt gibt das Photon seine gesamte Energie an ein Hüllenelektron ab. Während der vollständigen Absorption des Photons löst sich das Elektron dabei aus der Hülle. Schematisch ist der Prozess in Abbildung 2.5 dargestellt.



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung des Photoeffekts [11].

Das herausgeschlagene Elektron besitzt die gesamte Energie  $E_\gamma$  des Photons abzüglich seiner Bindungsenergie  $E_B$ .

In der Literatur, z. B. [35] und [36], wird der Photoeffekt-Wirkungsquerschnitt häufig in nicht relativistischer Born Approximation beschrieben:

$$\sigma_{photo} = \sigma_{Th} \alpha^4 \sqrt{32} \epsilon^{-3,5} Z^5 \quad (2.19)$$

Dabei ist  $\alpha$  die Feinstrukturkonstante und  $\sigma_{Th}$  der Thomson-Wirkungsquerschnitt für elastische Streuung von Photonen an Elektronen. Ferner sei  $\epsilon = \frac{E_\gamma}{m_e c^2}$ . Wie Kolanski<sup>12</sup> bemerkt, gilt diese

<sup>11</sup> Bei der praktischen Umsetzung dieser Arbeit kann davon ausgegangen werden, dass nur eine sehr begrenzte Anzahl unterschiedlicher Erzeugermatrizen angetroffen wird, welche sich untereinander ähnlich sind. Diese Tatsache lässt an der praktischen Umsetzbarkeit dieses Verfahrens festgehalten. Der Unterschied in der Form des Bremsstrahlungsspektrums, welcher durch unterschiedliche Erzeugermatrizen entsteht, wird in der Praxis wesentlich kleiner, als die Fehler, welche bei der Rekonstruktion des Bremsstrahlungsspektrums passieren. Hinzu kommt die generell große Unsicherheit bei  $\gamma$ -Scans. Sollte dieser Effekt tatsächlich eine Rolle spielen, bleibt bei weiterführenden Arbeiten der Ausweg, dass das Anfangs- und Endspektrum, zwischen denen alle anderen durch unterschiedliche  $Z$  verursachten Spektren liegen, bei der Identifikation herangezogen werden. Ähnlich wie es die Einhüllende im Kapitel 4.2.6 beschreibt.

<sup>12</sup>Hermann Kolanski, Humboldt-Universität zu Berlin, 2005.

Näherung jedoch für die wenigsten Energiebereiche. Heitler lieferte eine Korrektur [37] für Gleichung 2.19. Betrachtet man den Massenschwächungskoeffizienten  $\mu(E_\gamma)/\rho = \sigma N_A/A$ , wie ihn das NIST (National Institute for Standards and Technology) zum Beispiel in Abbildung 2.10 für Bitumen liefert, zeigt sich in einem großen Energiebereich ein fast linearer Verlauf in der doppelt-logarithmischen Darstellung. Kolanski ermittelt aus Daten [38] für reine Elemente die Quotienten  $a$  und  $b$  für den dieser Linearität zugrundeliegenden Zusammenhang  $\sigma = ae^b$ . Er erhält für den Photoeffekt-Wirkungsquerschnitt eine Proportionalität von:

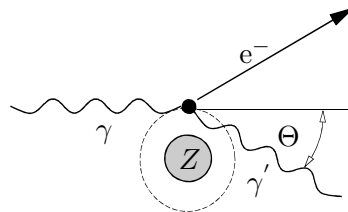
$$\sigma \sim \epsilon^{-2.7} Z^{3.8} \quad (2.20)$$

## Compton-Streuung

Beim Compton-Effekt streut ein Photon elastisch an einem gebundenen Hüllenelektron. Dabei überträgt es einen Teil seiner Energie  $E_\gamma$  auf das Elektron und fliegt mit verminderter Energie  $E'_\gamma$  unter einem Winkel  $\theta$  zur ursprünglichen Flugrichtung weiter. Diese Energie ist vom Streuwinkel  $\theta$  abhängig:

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos \theta)} \quad (2.21)$$

Schematisch ist der Prozess in Abbildung 2.6 dargestellt:



**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung der Compton-Streuung [11].

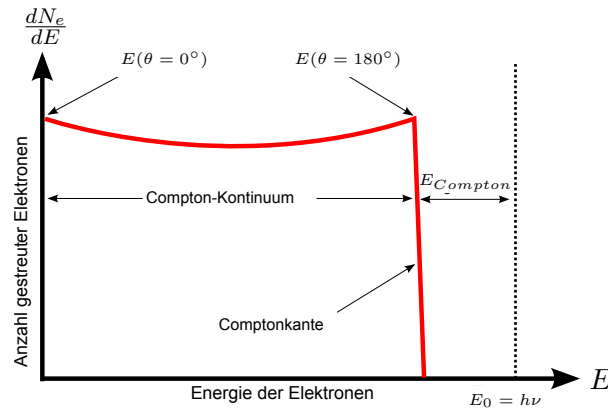
Die kinetische Energie  $T$  des gestreuten Elektrons ergibt sich zu:

$$T = h\nu - h\nu' = h\nu \frac{\gamma(1 - \cos \theta)}{1 + \gamma(1 - \cos \theta)} \quad (2.22)$$

Dabei ist  $\gamma = h\nu/m_e c^2$ . Klein und Nishina [39] liefern den Zusammenhang zwischen  $\sigma_C$  und  $\sigma_{Th}$  für  $E_\gamma \ll m_e c^2$ . Damit ergibt eine Integration über  $d\Omega$  den totalen Wirkungsquerschnitt der Compton-Streuung zu:

$$\sigma_C = 2\pi r_e^2 \left( \frac{1 + \gamma}{\gamma^2} \left( \frac{2(1 + \gamma)}{1 + 2\gamma} - \frac{1}{\gamma} \ln(1 + 2\gamma) \right) + \frac{1}{2\gamma} \ln(1 + 2\gamma) - \frac{1 + 3\gamma}{(1 + 2\gamma)^2} \right) \quad (2.23)$$

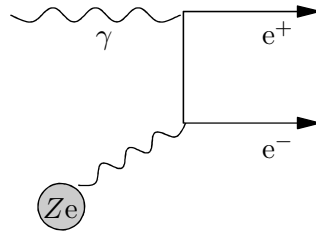
Abbildung 2.7 zeigt die Energieverteilung der durch Compton-Streuung angestoßenen Elektronen.



**Abbildung 2.7:** Energieverteilung der Compton-Elektronen bei einfallenden monochromatischen  $\gamma$ -Quanten mit der Energie  $h\nu$ , aus [40] analog zu [30].

## Paarbildung

Bei der Paarbildung zerstrahlt ein Photon in ein Elektron-Positron-Paar. Aus Gründen der Impulserhaltung ist die Nähe zu einem Atomkern entscheidend. Der Prozess ist ferner erst ab einer Mindestenergie des Photons von  $E_\gamma \geq 2m_e c^2$  möglich. Theoretisch ist der Prozess eng mit dem der Bremsstrahlungserzeugung verwandt, seine schematische Darstellung zeigt Abbildung 2.8.



**Abbildung 2.8:** Schematische Darstellung der Paarbildung [11].

Analoge Berechnung wie bei der Bremsstrahlung liefert:

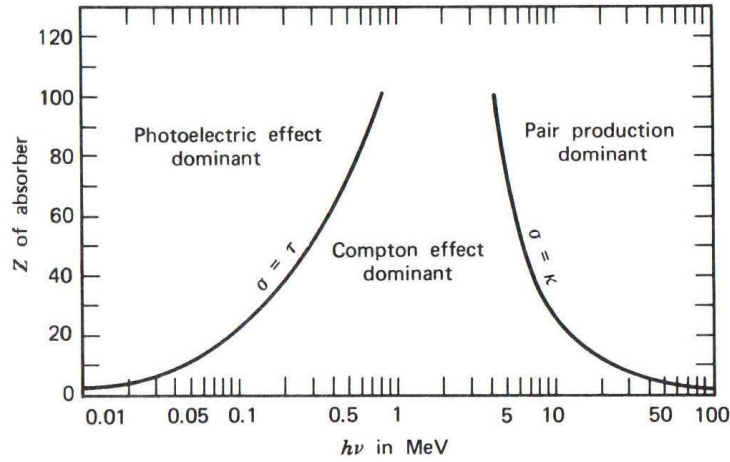
$$\sigma_{pair} \simeq \frac{7}{9} 4Z(Z+1) N r_e^2 \alpha \left( \ln\left(\frac{183}{Z^{1/3}}\right) - f(z) \right) \quad (2.24)$$

Abbildung 2.9 zeigt die Grenzlinien für den jeweils dominierenden Wechselwirkungseffekt in Abhängigkeit von  $Z$  und der Energie  $h\nu$  in einem Diagramm.

### 2.2.5 Schwächung von Gamma-Strahlung beim Durchgang durch Materie

Die Strahlung wird beim Durchgang durch Materie auf Grund von Wechselwirkungen mit selbiger geschwächt. In Luft kann diese in erster Näherung vernachlässigt werden, erst bei Material höherer Dichte tritt diese zu Tage. Die Abschwächung der Strahlung ist somit abhängig vom Material, also von der Absorbermatrix, in der die Quellen eingebettet sind.

Jede Wechselwirkung in der Matrix hat eine feste Wahrscheinlichkeit pro Einheitsweglänge für ihr Auftreten. Findet diese Wechselwirkung statt, wird das Teilchen aus dem Strahl entfernt. Ein Maß dafür sind die Schwächungskoeffizienten  $\mu_i$  für eine Wechselwirkung. Die  $\mu_i$  addieren sich zum gesamten, linearen Schwächungskoeffizient  $\mu$ :



**Abbildung 2.9:** Der Einflussbereich der jeweiligen  $\gamma$ -Wechselwirkung. Die Linien zeigen die  $Z$  und  $h\nu$ , für die das Auftreten benachbarter Effekte gleich wahrscheinlich sind [30],[31].

$$\mu = \mu_{Photoel} + \mu_{Compton} + \mu_{Paarbil.} + \dots \quad (2.25)$$

Die Punkte „...“ in der Gleichung sollen andeuten, dass die hier vernachlässigten weiteren Wechselwirkungsprozesse jeweils auch über ein eigenes  $\mu$  verfügen. Das Verhältnis der transmittierten Photonen  $I$  zu der Anzahl der Photonen ohne Absorber  $I_0$  kann in erster Näherung durch einen exponentiellen Verlauf beschrieben werden, dem Lambert-Beer'schen-Gesetz:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu t} \quad (2.26)$$

Dabei ist  $t$  die Dicke des Absorbers. Der Nutzen des linearen Schwächungskoeffizienten ist dadurch eingeschränkt, dass er mit der Dichte  $\rho$  des Absorbers variiert. Daher definiert man einen Massenschwächungskoeffizienten (mass attenuation coefficient kurz MAC).

$$\text{Mass Attenuation Coefficient (MAC)} = \left( \frac{\mu}{\rho} \right)$$

Es gilt:

$$\mu/\rho = (\mu/\rho)_{Photoel} + (\mu/\rho)_{Compton} + (\mu/\rho)_{Paarbil.} \quad (2.27)$$

Drückt man nun das Schwächungsgesetz mit Hilfe des MAC aus, erhält man:

$$\frac{I}{I_0} = e^{-(\frac{\mu}{\rho})\rho t} \quad (2.28)$$

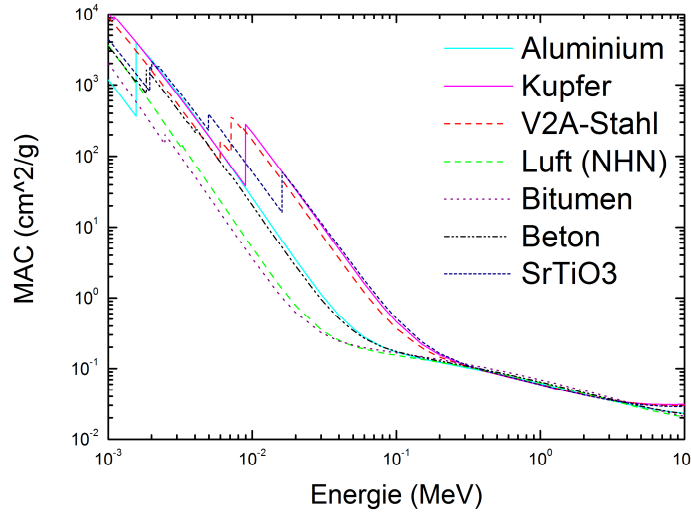
Das Produkt  $\rho t$  wird die Massendicke oder auch Flächendichte des Absorbers genannt.

Hat man eine Mischung aus verschiedenen Elementen, lässt sich dessen MAC wie folgt berechnen:

$$\left( \frac{\mu}{\rho} \right)_{mix} = \sum_i w_i \left( \frac{\mu}{\rho} \right)_i \quad (2.29)$$



Hier ist  $w_i$  der Faktor, welcher den Gewichtsanteil des  $i$ -ten Elements  $i$  entspricht.



**Abbildung 2.10:** Die Massenschwächungskoeffizienten verschiedener Elemente und Verbundstoffe, welche für diese Arbeit verwendet wurden.

Die Formel 2.28 gilt unter der Annahme eines parallel kollimierten  $\gamma$ -Quantenstrahl, der auf den Detektor gerichtet ist. Alle gestreuten Teilchen erreichen den Detektor nicht mehr. In realen Messungen hat man meist einen divergenten Strahl. Auch können durch Streuung zusätzliche Beiträge im Detektor entstehen. Dieser wird wie folgt berücksichtigt:

$$\frac{I}{I_0} = B(t, E_\gamma) e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)\rho t} \quad (2.30)$$

$B(t, E_\gamma)$  wird Buildup Faktor genannt. Der exponentielle Ausdruck bleibt bestehen, um zu verdeutlichen woher die Hauptvariation der Zählrate kommt. Der Buildup Faktor ist eine einfache multiplikative Korrektur. Detaillierte Information sowie eine einfache Abschätzung für  $B(t, E_\gamma)$  unter bestimmten geometrischen Voraussetzungen finden sich in [30].

Die MAC der Materialien, welche in der Arbeit als Absorber verwendeten werden sind in Abbildung 2.10 doppeltlogarithmisch dargestellt. Die Daten für Beton und Bitumen wurden Datenbanken des National Institut for Standards and Technologies (NIST) entnommen. Für Beton sind diese tabelliert in [38]. Bitumen wurde mit Hilfe des Programms Xcom [41], das auf Webseite des NIST zur Verfügung steht berechnet. Dazu wurde ein Bitumen der Marke Shell mit der Bezeichnung Mexphalt R90/40 unterstellt. Seine stoffliche Zusammensetzung wurde [42] entnommen. Bei Xcom kann man alle Einflussfaktoren in  $\mu/\rho$  einzeln ausgeben lassen. Entsprechend kann man sich somit  $\mu/\rho$  auch ohne Rayleigh-Streuung (kohärente) ausgeben lassen, diese wird bei Transport von Gammastrahlung in Materie in der Regel nicht mit einbezogen.

## 2.3 Gamma-Spektrometrie

Für den  $\gamma$ -spektrometrischen Nachweis der Bremsstrahlung werden bevorzugt HPGe-Detektoren (High-purity Germanium-Detektoren) verwendet. Der Nachweis erfolgt analog dem Nachweis

von Röntgen- und  $\gamma$ -Strahlung durch Energieübertrag im Detektorkristall, der von einer nachgeschalteten Elektronik ausgewertet wird [7]. Der Energieübertrag erfolgt im Detektorkristall im Wesentlichen über die drei in Kapitel 2.2.4 beschriebenen Prozesse.

Durch die endliche Ausdehnung des Detektorkristalls sowie der Energieabhängigkeit für die Stärke der drei Prozesse<sup>13</sup> wird das ursprüngliche Bremsstrahlungsspektrum  $S(E)$  weiter "deformiert". Auch Absorption und Streuung in Materialien, die zwischen dem Entstehungsort der Bremsstrahlung und dem Detektor liegen, tragen hierzu bei. Das gemessene Spektrum  $M(E)$  kann somit formal durch eine Faltung des schwächungskorrigierten Bremsstrahlungsspektrum  $S(E)$  mit einer Detektor-Antwort-Funktion  $R(E, E_0)$  beschrieben werden.

$$M(E) = \int R(E, E_0) \left[ \int S(E_1) \exp\left(-\sum_i \mu_i(E_1, E_0) d_i\right) dE_1 \right] dE_0 \quad (2.31)$$

In der Gleichung wurden diskrete, homogene Absorber- bzw. Streuschichten der Dicke  $d_i$  und den linearen Schwächungskoeffizienten  $\mu_i$  unterstellt. Der lineare Schwächungskoeffizient  $\mu_i$  kann durch den tabellierten Massenschwächungskoeffizienten  $(\mu/\rho)_i$  multipliziert mit der Dichte  $\rho_i$  des  $i$ -ten Absorbers ausgedrückt werden. Des Weiteren wurde hier von einer punktförmigen Strahlungsquelle ausgegangen. Für ausgedehnte Quellen ist zusätzlich eine Volumenintegration erforderlich.

### 2.3.1 Effekte im Spektrum

Die endliche Größe und die Form des Detektorkristalls verformt das Spektrum weiter. Dies zeigt sich am besten an den  $\gamma$ -Quanten einer Linie. Diese wird eben nicht nur bei entsprechender Energie im Detektor registriert sondern auch bei niedrigeren Energien, da Teilchen, die zuerst eine Compton-Streuung durchlaufen, bereits nach diesem Prozess den Detektor verlassen können, ohne ihre gesamte Energie abzugeben. So sind eine Vielzahl unterschiedlicher Prozesse möglich, welche alle zum Spektrum beitragen, aber durch die Detektorgröße nicht zum eigentlichen Photopeak. Die wichtigsten sollen hier nur kurz erwähnt werden, detailliert sind diese in [30] beschrieben:

- Single Escape Peaks
- Double Escape Peaks
- Secondary Electron Escape
- Bremsstrahlung Escape
- X-Ray Escape Peaks

Hinzu kommen Effekte im Spektrum, welche nicht durch die Detektorgeometrie verursacht werden. Dazu gehört sekundär Strahlung jeglicher Art, Annihilationsstrahlung, die Rückstreuung (siehe nächster Abschnitt) und die Bremsstrahlung.

Darüber hinaus können unter bestimmten Voraussetzung Summationseffekte (Summenpeaks) beobachtet werden, Details ebenfalls in [30].

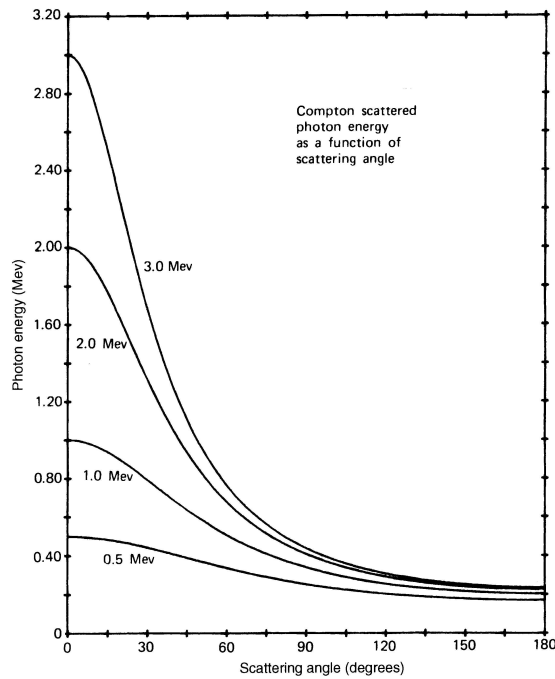
---

<sup>13</sup>Die Stärke wird durch den sogenannten Wirkungsquerschnitt ausgedrückt. Dieser hängt sowohl von der Energie der Strahlung als auch vom Material ab. Diese Werte sind in Datenbanken tabelliert [43].

### 2.3.2 Der Rückstreupeak

Ein Phänomen, welches sich im Untergrund von  $\gamma$ -Spektren wiederfindet, ist der Rückstreupeak. Sein Zustandekommen erklärt sich durch die Tatsache, dass die  $\gamma$ -Strahlung einer Quelle nicht direkt in den Detektor trifft, sondern bevor es diesen erreicht bereits in der Umgebung der Messapparatur an Materie Compton-gestreut wird. Diese rückgestreute Strahlung trifft den Detektor als sekundär Strahlung.

Trägt man die Energie eines Compton-gestreuten Photons in Abhängigkeit vom Streuwinkel auf, zeigt sich, dass unabhängig von seiner ursprüngliche Energie, ab einen Streuwinkel von ca.  $120^\circ$  alle gestreuten Teilchen in etwa gleiche Energien besitzen, vgl. Abbildung 2.11.



**Abbildung 2.11:** Änderung der Energie eines gestreuten  $\gamma$ -Teilchens in Abhängigkeit des Streuwinkels, aus [30].

In der Detektorumgebung gestreute  $\gamma$ -Quanten einer monoenergetischen Quelle liefern viele gestreute  $\gamma$ -Quanten am Detektor ab, deren Energie nahe der (nach Compton) minimalen Energie (Streuwinkel  $\Theta = \pi$ ) ist. Daraus lässt sich die Energie des Rückstreupeaks abschätzen [30]:

$$h\nu' |_{\Theta=\pi} = \frac{h\nu}{1 + (2h\nu/m_0c^2)} \quad (2.32)$$

Nimmt man als ursprüngliche Energie der  $\gamma$ -Quanten einen Wert mit  $h\nu \gg m_0c^2/2$  an, vereinfacht sich obige Gleichung zu:

$$h\nu' |_{\Theta=\pi} \cong \frac{m_0c^2}{2} \quad (2.33)$$

Daraus folgt, dass der Rückstreupeak bei Energien von ca. 255,5 keV oder darunter auftritt.

## 2.4 Zusammenfassung

Im Abschnitt 2.2 wurde das Prinzip des radioaktiven Zerfalls kurz skizziert und die dabei anzutreffenden Strahlungsarten diskutiert. In Tabelle 2.1 sind die Prozesse, welche dabei Röntgenstrahlung freisetzen mit ihren Eigenschaften zusammengefasst.

**Tabelle 2.1:** Die Eigenschaften der verschiedenen Röntgenstrahlungsarten beim radioaktiven Zerfall im Überblick

	$e^-$ -Einfang	In. Konversion	Innere BS	Äußere BS
Diskret	✓	✓	-	-
Kontinuierlich	-	-	✓	✓
Ursprung im Kern	✓	✓	✓	-
Charakteristisch	✓	✓	✓	✓

Drei Arten des  $\beta$ -Zerfalls müssen in Betracht gezogen werden. Wie sich zeigte, ist die Identifikation im Fall des  $e^-$ -Einfangs nur über die charakteristischen Röntgenlinien möglich ist. Beim  $\beta^-$ - bzw. beim  $\beta^+$ -Zerfall muss diese über die Form des Bremsstrahlungsspektrums erfolgen, wobei es für den  $\beta^+$ -Zerfall in  $\gamma$ -Spektren einen zusätzlichen Hinweis durch eine erhöhte Anzahl an Impulsen bei 511 keV (Annihilations-Peak) gibt.

Bei der inneren Konversion findet im Anschluss eine spontane Emission eines Röntgenquants durch Rekombination in den Schalen statt<sup>14</sup>.

In der Praxis werden außer der Bremsstrahlung auch Röntgen- und  $\gamma$ -Quanten im Detektor registriert. Dies führt zu Überlagerungen, die oftmals in (sehr) komplexen Spektren resultieren. Eine einfache direkte Extraktion der Bremsstrahlungsinformation aus dem Spektrum ist somit in der Regel nicht möglich und erfordert weitergehende Schritte.

---

<sup>14</sup>  $^{121m}\text{Sn}$  (vgl. Tabelle 3.1) ist das einzige Nuklid, welches in Kapitel 3 vorgestellt wird, das hauptsächlich durch innere Konversion zerfällt. Bei ihm ist davon auszugehen, dass seinem äußeren Bremsstrahlungsspektrum nicht nur von der spektralen Form seiner Zerfallelektronen, sondern auch durch das auftretende Konversionselektron bestimmt wird

# Kapitel 3

## Relevante Beta-Strahler

Mit dem Begriff „Relevante  $\beta$ -Strahler“ sind die Nuklide gemeint, auf welche das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Verfahren zur Nuklididentifikation mittels Bremsstrahlungsinformation prinzipiell angewendet werden kann. Ein Blick auf die Nuklidkarte [43] zeigt, dass der überwiegende Anteil der bekannten radioaktiven Nuklide über  $\beta$ -Prozesse zerfällt. Eine Analyse von  $\gamma$ -Spektren hinsichtlich der möglicherweise in ihnen enthaltenen Bremsstrahlungsbeiträge wird sich somit deutlich vereinfachen, wenn bereits vorab eine Reduzierung der in Frage kommenden  $\beta$ -Strahler erfolgen kann.

### 3.1 Auswahlkriterien

Eine Identifikation von radioaktiven Nukliden erfolgt in der  $\gamma$ -Spektroskopie bevorzugt über die beim Zerfall entstehenden charakteristischen  $\gamma$ -Linien. D. h. alle  $\beta$ -Strahler, die über entsprechende nachweisbare charakteristische Linien verfügen, brauchen somit in der Regel nicht weiter berücksichtigt zu werden.

Fehlen den Nukliden die zur Identifizierung geeigneten charakteristischen Röntgen- oder  $\gamma$ -Linien, braucht man Auswahlkriterien, ob sie über ihre Bremsstrahlungscharakteristika identifiziert werden können. Die erste Einschränkung bzw. das erste Kriterium berücksichtigt nur Nuklide deren Hauptzerfallsart der  $\beta^-$ -Zerfall<sup>1</sup> ist, da beim Elektroneneinfang, beziehungsweise dem  $\beta^+$ -Zerfall charakteristische Röntgenstrahlen oder eine deutliche Annihilation Hinweise auf enthaltene Nuklide geben sollten. Von den  $\beta^-$ -Nukliden werden im Speziellen nur Nuklide betrachtet, die ohne die Aussendung von  $\gamma$ -Strahlung zerfallen. Diese lassen sich bisher nicht über  $\gamma$ -Spektroskopie identifizieren. Bei Nukliden, welche  $\gamma$ -Linien mit einer geringen Übergangswahrscheinlichkeit besitzen, sind diese im Spektrum oftmals schwer oder gar nicht zu identifizieren. Erfüllen diese Nuklide die hier genannten Auswahlkriterien, werden sie ebenfalls berücksichtigt.

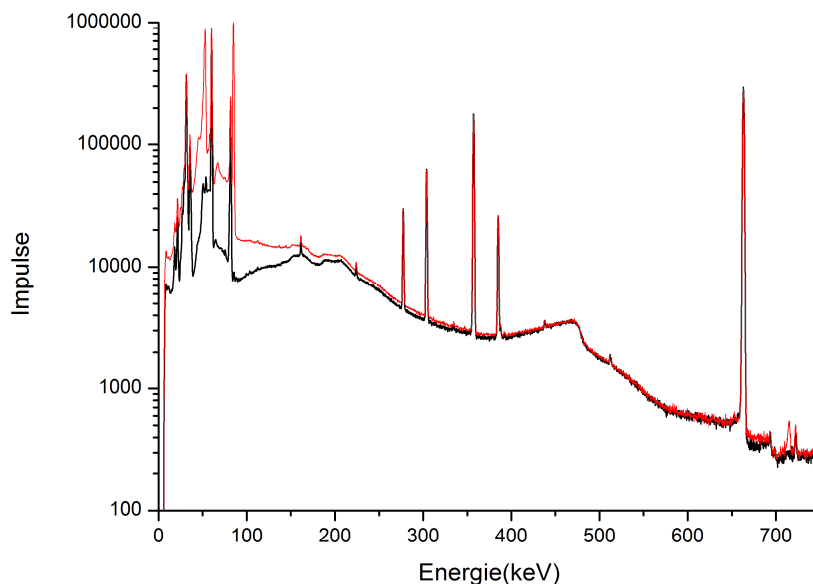
Abfallgebinde mit radioaktivem Inventar werden in der Regel erst nach einigen Tagen bzw. Wochen erstmalig zerstörungsfrei untersucht, d. h. Nuklide mit kurzen Halbwertszeiten sind dann bereits weitestgehend zerfallen und somit nicht mehr nachweisbar. Darüber hinaus spielen sie bei der Lagerung von radioaktivem Abfall keine Rolle. Wird beim  $\beta$ -Zerfall auch  $\gamma$ -Strahlung bei

---

<sup>1</sup>Zerfällt ein Nuklid zu 100% durch innere Konversion und haben die dabei entstehenden monoenergetischen Elektronen eine Energie von mehr als 150 keV, sollten diese ebenfalls wie die hier genannten  $\beta$ -Strahler behandelt werden können. Bei entsprechenden Nukliden sollte die Form des Bremsstrahlungsspektrums leicht zu erfassen sein. Normalerweise sollte durch die Rekombination in der Elektronenhülle und die dadurch entstehende charakteristische Röntgenlinie eine Identifikation möglich sein. In Kapitel 4 wird jedoch darauf hingewiesen, dass aktuell keine diesbezügliche Auswertung stattfindet.

den charakteristischen Energien emittiert, so erfolgt die Identifikation bevorzugt anhand dieser Linien. Voraussetzung hierfür ist eine ausreichend hohe Übergangswahrscheinlichkeit. Hat das Nuklid  $\gamma$ -Linien, deren Übergangswahrscheinlichkeiten über fünf Prozent<sup>2</sup> liegen und ist es in einer ausreichende Konzentration im Abfallgebinde enthalten, sollten seine  $\gamma$ -Linien im Vergleich zum Bremsstrahlungsuntergrund so deutlich sein, dass diese für die Charakterisierung verwendet werden können.

Abbildung 3.1 dient zur Illustration des letzten Kriteriums. Der schwarze und der rote Graph zeigen hierbei zwei Messungen einer Probe. Bei der roten Messung war im Vergleich zur schwarzen Messungen zusätzlich ein  $\beta$ -Strahler vorhanden. Dieser wurde eingebracht um die Auswirkung auf den Spektrumsuntergrund zu untersuchen. Man sieht deutlich, dass bis circa 100 keV sehr viele Röntgenlinien auftreten. Erst bei höheren Energien hebt sich der Bremsstrahlungsuntergrund klar von der Messung ohne  $\beta$ -Strahler ab. Da das Auftreten dieser Röntgenlinien in der Praxis die Regel ist, wird mindestens 150 keV als Endpunktsenergie des  $\beta$ -Strahlers gefordert. Somit ist gewährleistet, dass die Bremsstrahlung oberhalb dieses schwer zu analysierenden Bereiches auswertbar wird.



**Abbildung 3.1:** Das schwarze Spektrum zeigt eine Messung mit den Nukliden  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ ; Rot zeigt den selben Messaufbau, zusätzlich mit  $^{170}\text{Tm}$ . Deutlich erkennbar ist, dass aufgrund der Röntgenlinien im Bereich bis 100 keV keine wirkliche Aussage über Bremsstrahlungsinformationen getroffen werden können.

Die Anzahl der in Frage kommenden Nuklide kann somit durch folgende, empirisch gefundene Kriterien eingeschränkt werden:

- Die Halbwertszeit beträgt mehr als fünf Tage
- Die Übergangswahrscheinlichkeiten der gegebenenfalls vorhandenen charakteristischen  $\gamma$ -Linien liegen unter fünf Prozent
- Die Maximalenergie des Zerfallselektrons ist größer als 150 keV

<sup>2</sup>Diese recht willkürliche Annahme einer Grenze bei 5% basiert auf Erfahrungswerten aus der Charakterisierung radioaktiver Abfälle bei RCM.

## 3.2 Übersicht der Strahler

Diese Kriterien angewandt auf die Nuklidkarte liefern insgesamt 25 Nuklide (Tabelle 3.1), auf welche das zu erarbeitende Verfahren angewendet werden kann. Von diesen 25 Nukliden zerfallen elf ohne Emission von  $\gamma$ -Strahlung, d.h. sie zerfallen direkt in den Grundzustand des Tochterkerns.

**Tabelle 3.1:** Bemerkungen zu den Tabellen: IT=isomerer Übergang nat.=natürlich; NA=Neutronen Aktivierung (thermisch oder schnell); SP=Spaltprodukt; GTR= Schwerionen (geladene Teilchen) Reaktion. Die Daten stammen aus den drei Datenbanken: [5–7]mit Stand vom 27.01.12. Die in der Spalte ÜWmax mit \* gekennzeichneten Nuklide haben keine Gamma-Linien, die Abkürzung steht dabei für Übergangswahrscheinlichkeit. <sup>90</sup>Y als Tochter des in der Praxis wichtigen <sup>90</sup>Sr ist ebenfalls in der Tabelle obwohl es die Kriterien nicht erfüllt.

Mutter	HWZ	Tochter	Zerfallsart	$E_{mittel}$ [keV]	$E_{max}$ [keV]	Entstehung	max. ÜW	Jp	Bemerkung
<sup>10</sup> Be	1.51E6 y	<sup>10</sup> B	$\beta^-$ 100%	202,56	566,00	GTR/NA th.	*	0+	
<sup>14</sup> C	5700 y	<sup>14</sup> N	$\beta^-$ 100%	49,47	156,48	nat./NA th./sch.	*	0+	
<sup>32</sup> P	14.268 d	<sup>32</sup> S	$\beta^-$ 100%	695,03	1710,66	NA th./sch.	*	1+	
<sup>33</sup> P	25.35 d	<sup>33</sup> S	$\beta^-$ 100%	76,43	248,50	NA sch./PR	*	1/2+	
<sup>35</sup> S	87.37 d	<sup>35</sup> Cl	$\beta^-$ 100%	48,76	167,33	NA th./sch.	*	3/2+	
<sup>45</sup> Ca	162.61 d	<sup>45</sup> Sc	$\beta^-$ 100%	76,86	256,80	NA th./sch.	3,00E-06	7/2-	
<sup>79</sup> Se	2.95E5 y	<sup>79</sup> Br	$\beta^-$ 100%	55,80	151,00	NA th./sch.	*	7/2+	unterschiedl. HWZ <sup>3</sup>
<sup>85</sup> Kr	10.756 y	<sup>85</sup> Rb	$\beta^-$ 100%	250,70	687,40	SP/NA th./sch.	2,20E-06	9/2+	<sup>85m</sup> Kr
<sup>87</sup> Rb	4.81E10 y	<sup>87</sup> Sr	$\beta^-$ 100%	81,70	283,30	nat./SP	*	3/2-	
<sup>89</sup> Sr	50.53 d	<sup>89</sup> Y	$\beta^-$ 100%	584,60	1495,10	GTR/NA th./sch.	0,01	5/2+	
<sup>90</sup> Sr	28.79 y	<sup>90</sup> Y	$\beta^-$ 100%	195,80	546,00	SP	*	0+	
<sup>90</sup> Y	64 h	<sup>90</sup> Zr	$\beta^-$ 100%	933,70	2280,10	SP/NA th./sch.	1,40E-06	2-	<sup>90m</sup> Y
<sup>91</sup> Y	58.51 d	<sup>91</sup> Zr	$\beta^-$ 100%	603,20	1544,80	SP/NA sch.	0,26	1/2-	IT; <sup>89m</sup> Y
<sup>99</sup> Tc	2.11E5 y	<sup>99</sup> Ru	$\beta^-$ 100%	84,60	293,50	SP/NA th.	0,0006	9/2+	<sup>99m</sup> Tc
<sup>113m</sup> Cd	14.1 y	<sup>113</sup> In	$\beta^-$ 99,86% IT 0.14%	185,40	585,70	SP/NA th./sch.	0,023	11/2-	<sup>113</sup> Cd
<sup>115m</sup> Cd	44.56 d	<sup>115</sup> In	$\beta^-$ 100%	604,50	1627,00	SP/NA th./sch.	2,0	11/2-	<sup>115</sup> Cd
<sup>115</sup> In	4.41E14 y	<sup>115</sup> Sn	$\beta^-$ 100%	152,00	496,00	nat./SP	*	9/2+	<sup>115m</sup> In
<sup>121</sup> Sn	27.03 h	<sup>121</sup> Sb	$\beta^-$ 100%	115,82	390,60	NA th./sch.	*	3/2+	
<sup>121m</sup> Sn	43.9 y	<sup>121</sup> Sb/ <sup>121</sup> Sn	IT 77.6% $\beta^-$ 22.4%	122,44	359,80	SP/NA th./sch.	*	11/2-	
<sup>135</sup> Cs	2.3E6 y	<sup>135</sup> Ba	$\beta^-$ 100%	75,70	268,70	SP	*	7/2+	
<sup>147</sup> Pm	2.6234 y	<sup>147</sup> Sm	$\beta^-$ 100%	61,93	224,10	SP/NA th./sch.	0,0028	7/2+	
<sup>185</sup> W	75.1 d	<sup>185</sup> Re	$\beta^-$ 100%	126,90	432,50	NA th./sch.	0,019	3/2-	IT; <sup>185m</sup> W
<sup>188</sup> W	69.78 d	<sup>188</sup> Re	$\beta^-$ 100%	99,00	349,00	NA th.	0,402	0+	
<sup>204</sup> Tl	3.78 y	<sup>204</sup> Pb/ <sup>204</sup> Hg	$\beta^-$ 97.1% $\epsilon$ 2.9%	244,05	763,76	NA th./sch.	0,787	2-	
<sup>210</sup> Bi	5.012 d	<sup>210</sup> Po	$\beta^-$ 100%	389,00	1162,10	<sup>226</sup> Ra-Kette	0,000084	1-	$\alpha$ -Zerfall



### 3.3 Praktische Relevanz

In der Praxis radioaktiver Abfälle haben das Nuklid  $^{90}\text{Sr}$ , das eines der häufigst vorkommenden Spaltprodukte überhaupt ist, sowie seine Tochter  $^{90}\text{Y}$ , die größte Relevanz. Der Großteil von  $^{90}\text{Sr}$  entsteht durch mehrfachen  $\beta$ -Zerfall der Spaltprodukte bei der Kernspaltung von  $^{235}\text{U}$ . Die Halbwertszeit des  $^{90}\text{Sr}$  beträgt 28,79 Jahre, die des  $^{90}\text{Y}$  hingegen nur 64 Stunden. Bei den beiden Nukliden findet ein verbotener Übergang statt, der in [44] beschrieben ist. Abbildung 3.2 zeigt die Zerfallsschemata und Abbildung 3.3 die theoretischen Elektronenspektren.

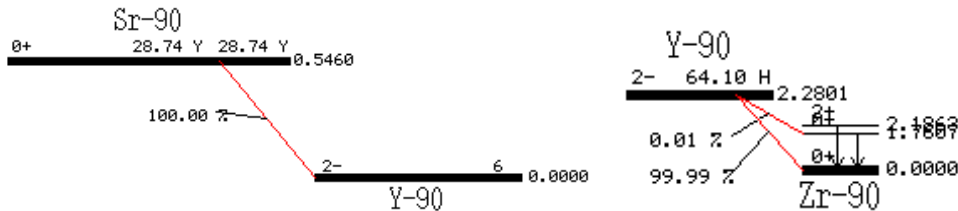


Abbildung 3.2: Darstellung der Zerfallsschemata des  $^{90}\text{Sr}$ , sowie des  $^{90}\text{Y}$ , aus [45]

Aufgrund der wesentlich längeren Halbwertszeit des Mutternuklids befinden sich  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$  in einem säkularen Gleichgewicht, d.h. die beiden Aktivitäten sind gleich.

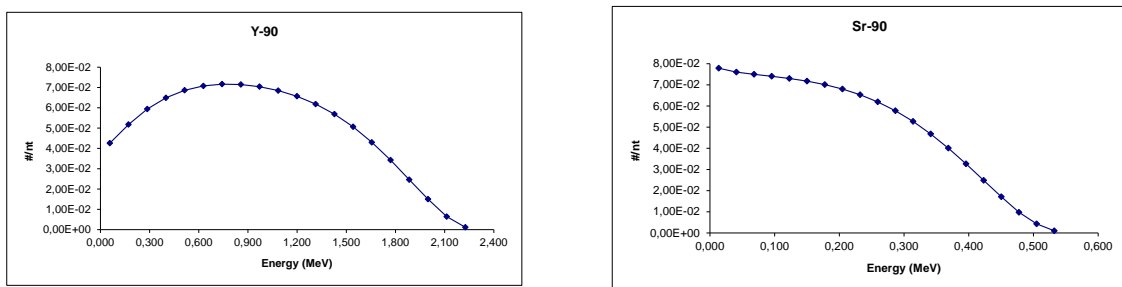


Abbildung 3.3: Theoretische Elektronenspektren von  $^{90}\text{Y}$  und  $^{90}\text{Sr}$ . Quellen: [46] und [47]

Ein weiteres relevantes Nuklid ist  $^{99}\text{Tc}$ . Dieses zerfällt mit einer Halbwertszeit von 211500 Jahren in das stabile  $^{99}\text{Ru}$ . Die Endpunktenergie beträgt 293,7 keV. Das Zerfallsschema zeigt Abbildung 3.4. Es tritt als Spaltprodukt bei der Uranspaltung auf und spielt auf Grund seiner langen Halbwertszeit eine bedeutende Rolle bei der Lagerung radioaktiver Abfälle. Auch tritt es als Abfallprodukt der Nuklearmedizin auf. Dort wird das  $^{99m}\text{Tc}$ , eine Tochter von  $^{99}\text{Mo}$ , für medizinische Zwecke aus  $^{99m}\text{Tc}/^{99}\text{Mo}$  Generatoren gewonnen. Das  $^{99m}\text{Tc}$  zerfällt nach 6 Stunden in  $^{99}\text{Tc}$ .

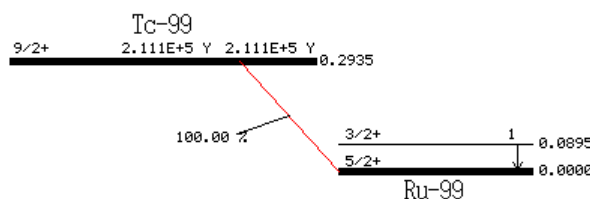


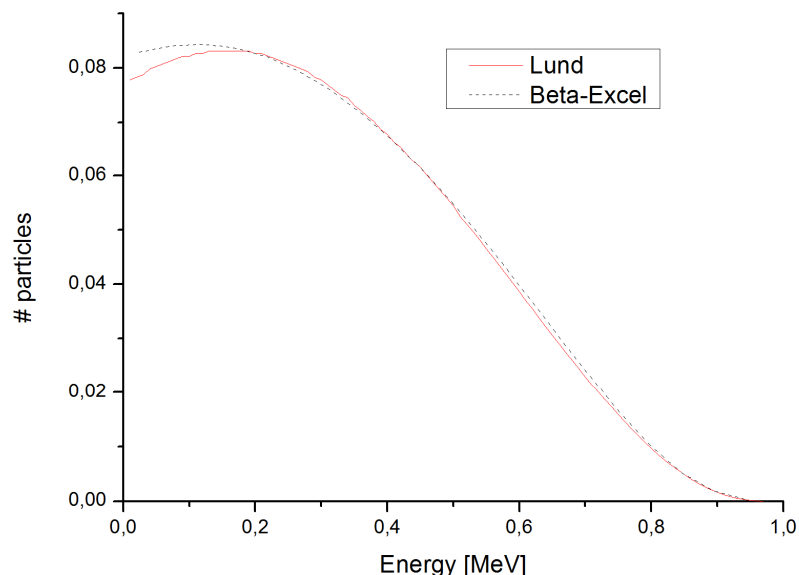
Abbildung 3.4: Zerfallsschema von  $^{99}\text{Tc}$ , nach [45].

Bei der Spaltung von angereichertem Uran in Kernbrennstoffen, treten sieben langlebige Spaltprodukte auf, diese sind  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{129}\text{I}$  und  $^{135}\text{Cs}$ . Zusätzlich zu dem bereits

erwähnten  $^{99}\text{Tc}$  befinden sich noch die beiden Nuklide  $^{79}\text{Se}$  und  $^{135}\text{Cs}$  in Tabelle 3.1.  $^{79}\text{Se}$  wird nur in sehr geringer Rate erzeugt. Im Vergleich zu  $^{99}\text{Tc}$  beträgt seine Zerfallsenergie in etwa 0,2 %.  $^{135}\text{Cs}$  entsteht aus  $^{135}\text{Xe}$ , dies weist jedoch einen sehr großen Neutroneneinfangquerschnitt auf. Daher wird der größte Teil des  $^{135}\text{Xe}$  in  $^{136}\text{Xe}$  umgewandelt. Das aus dem  $^{135}\text{Xe}$  Zerfall resultierende  $^{135}\text{Cs}$  hat im Vergleich zum  $^{99}\text{Tc}$  eine Zerfallsenergie von ca. 1 %. Von diesen drei Nukliden weist das  $^{99}\text{Tc}$  auch die größte  $\beta$ -Endpunktenergie auf, daher sollte dies in Kombination mit seiner vergleichsweise höheren Konzentration im radioaktiven Abfall leichter zu bestimmen sein.

Weitere, nicht langlebige Nuklide, die in Tabelle 3.1 enthalten sind und auch bei der Kernspaltung anfallen, sind das bereits erwähnte  $^{90}\text{Sr}$  sowie  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{113\text{m}}\text{Cd}$  und  $^{121\text{m}}\text{Sn}$ . Krypton ist ein Edelgas, wegen seiner chemischen Trägheit wird das  $^{85}\text{Kr}$  daher in der Regel nicht mehr im Abfall zu finden sein, technisch wird es zur Dichtheitsprüfung eingesetzt.  $^{113\text{m}}\text{Cd}$  hat eine sehr geringe Spaltrate und einen großen Neutroneneinfangquerschnitt. Es spielt daher keine Rolle bei radioaktiven Abfällen, da das meiste  $^{113\text{m}}\text{Cd}$  bereits während des Abbrands zerstört wird.  $^{121\text{m}}\text{Sn}$  hat eine sehr geringe Spaltrate und spielt dadurch ebenfalls keine Rolle beim radioaktiven Abfall.  $^{121}\text{Sn}$  als eine Tochter des  $^{121\text{m}}\text{Sn}$  wird in Tabelle 3.1 nur der Vollständigkeit halber aufgeführt, es zerfällt ebenfalls ohne  $\gamma$ -Emission, jedoch hat es eine HWZ von nur 27 Stunden.

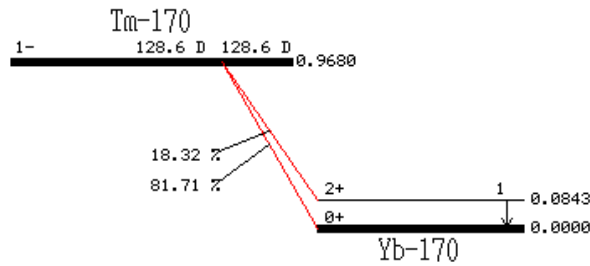
Für diese Arbeit wurde aus praktischen Gründen noch ein Nuklid herangezogen, das sich nicht in der Liste befindet:  $^{170}\text{Tm}$ . Bei Rechercharbeiten wurde eine Veröffentlichung von Dhaliwal [48] gesichtet, die Aufmerksamkeit auf das  $^{170}\text{Tm}$  gelenkt hat. Seine Eigenschaften im Bezug auf die Bremsstrahlung sowie die Tatsache, dass es auch einen schwachen  $\gamma$ -Übergang bei 84,25 keV aufweist, machen es ideal für die Untersuchung. Mit Hilfe der  $\gamma$ -Linie des  $^{170}\text{Tm}$  hat man einen Anhaltspunkt im Spektrum, der auf die Präsenz des Nuklids einen Hinweis geben kann, falls keine Bremsstrahlung auszumachen ist. Dieser Doppelcheck könnte auch in die andere Richtung funktionieren, wenn z.B. durch einen Absorber im Strahlengang die 84,25 keV Linie nicht mehr auszumachen ist und unter Umständen nur höher energetische Bremsstrahlung auszumachen ist.



**Abbildung 3.5:** Vergleich zweier theoretischer Elektronen-Spektren des  $^{170}\text{Tm}$ .

In Abbildung 3.5 sind  $\beta$ -Spektren des  $^{170}\text{Tm}$  aus zwei unterschiedlichen Literatur-Quellen [49] und [46] zu sehen. Das  $^{170}\text{Tm}$ -Nuklid hat eine Halbwertszeit von 128,6 Tagen und  $\beta$ -Zerfälle mit

Endpunktenergien bei 883,75 keV und 968 keV (Übergangswahrscheinlichkeiten 18,3 % bzw. 81,6 %), das zugehörige Zerfallsschema zeigt Abbildung 3.6.



**Abbildung 3.6:** Zerfallsschema von  $^{170}\text{Tm}$ , nach [45].

Weitere in Tabelle 3.1 aufgeführte Nuklide sind:

Das Isotop  $^{10}\text{Be}$  entsteht durch Spaltung mit Hilfe kosmischer Strahlung oder durch eine Reaktion von schnellen Neutronen mit  $^{13}\text{C}$  bei Atombombentests. Es wird in der Geologie bei der Untersuchung von Erdschichten und als Indikator für frühere Kernwaffentest genutzt.

$^{14}\text{C}$  wird auf natürliche Weise in der oberen Atmosphäre durch die durch kosmische Strahlung entstehenden Neutronen produziert. Es kann auch künstlich durch die Bestrahlung von Targets hergestellt werden. Seine Konzentration in der Atmosphäre stieg merklich während der Zeit der überirdischen Kernwaffentests.

$^{32}\text{P}$  wird künstlich hergestellt und dient in der Medizin als Tracer, des weiteren wird es in der Biologie für verschiedene Zwecke eingesetzt. Das selbe gilt für  $^{33}\text{P}$ , jedoch findet dieses keine Verwendung als Tracer in der Medizin.

$^{35}\text{S}$  entsteht ebenfalls durch Spaltung mit Hilfe kosmischer Strahlung, ist das stabilste radioaktive Isotop des Schwefels und findet beim Markieren von Proteinen in der Biochemie Anwendung.

$^{87}\text{Rb}$  ist ein primordiales Nuklid mit einer HWZ die länger ist als das Alter des Universums. Es spielt eine wichtige Rolle bei der Datierung von Gesteinsschichten, hier nicht.

$^{89}\text{Sr}$  wird in der Medizin zur Behandlung von Knochenkrebs eingesetzt. Es ist ein künstlich erzeugtes kurzlebige Nuklid, das bei der Lagerung von radioaktiven Abfällen keine Rolle spielt.

$^{115}\text{In}$  ist ebenfalls ein primordiales Element mit einer HWZ die die des  $^{87}\text{Rb}$  noch um vier Größenordnungen übersteigt. Es ist das am häufigsten vorkommende Isotop des Indiums auf der Erde.

Diese acht hier zuletzt genannten Nuklide spielen im Rahmen dieser Arbeit, also in radioaktiven Abfallgebinden, keine Rolle. Die wichtigsten Nuklide für eine Identifikation über Bremsstrahlung sind also das  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  und das  $^{99}\text{Tc}$ .



# Kapitel 4

## Entwicklung eines Auswerteverfahrens

### 4.1 Allgemeines

In Kapitel 1 wurde auf das Fehlen eines geeigneten Auswerteverfahrens zur Bestimmung von  $\beta$ -Strahlern in  $\gamma$ -Spektren über die in diesen vorhandene Bremsstrahlungsinformation hingewiesen. Nachdem in Kapitel 2 und 3 der grundlegende physikalische Hintergrund aufgezeigt und die dafür in Frage kommenden Nuklide identifiziert wurden, wird in diesem Kapitel das zur Auswertung anzuwendende Verfahren vorgestellt. Es wird an dieser Stelle kurz skizziert werden und baut im Wesentlichen auf den in Kapitel 2 vorgestellten Grundlagen auf.

Der Ausgangspunkt des Auswerteverfahrens ist ein (gemessenes)  $\gamma$ -Spektrum. Aus diesem werden die Informationen über den enthaltenen Bremsstrahlungsanteil extrahiert, die für eine Identifizierung (und Quantifizierung) des  $\beta$ -Strahlers genutzt werden können. In einigen praktischen Vorversuchen, auf die hier nicht eingegangen wird, wurden verschiedene Ansätze untersucht. Es kristallisierte sich letztendlich ein sechs-stufiges Verfahren heraus, welches zur Identifikation und möglicherweise auch zur Quantifikation von  $\beta$ -Strahlern<sup>1</sup> als geeignet erscheint.

### 4.2 Auswerteverfahren

Nachfolgend sind die sechs Schritte des Auswerteverfahrens aufgeführt. Im Anschluss daran folgt eine detailliertere Beschreibung der einzelnen Schritte.

---

<sup>1</sup>Im Wesentlichen der Strahler aus Tab. 3.1. Es können prinzipiell mit dieser Methode aber auch alle anderen  $\beta$ -Strahler bestimmt werden, die ein messbares Bremsstrahlungsspektrum erzeugen.

1. Schritt: Aufnahme des  $\gamma$ -Spektrums des Untergrunds am Ort der Messung
2. Schritt: Aufnahme des  $\gamma$ -Spektrums des Messobjekts
3. Schritt: Analyse des  $\gamma$ -Spektrums
  - Untergrundkorrektur
  - Identifikation der  $\gamma$ -Strahler anhand ihrer charakteristischen Linien
  - Quantifikation des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars
  - Identifikation der Röntgenlinien
4. Schritt: Rekonstruktion des  $\gamma$ -Spektrums auf der Grundlage der identifizierten und quantifizierten  $\gamma$ -Strahler
5. Schritt: Extraktion des Bremsstrahlungsanteils durch Differenzbildung von gemessenem und rekonstruiertem  $\gamma$ -Spektrum
6. Schritt: Interpretation des Bremsstrahlungsspektrums

#### 4.2.1 Aufnahme des Untergrundspektrums

Vor der Aufnahme des  $\gamma$ -Spektrums des Messobjekts ist der  $\gamma$ -Untergrund am Messort zu bestimmen. Die Messgeometrie sollte hierbei weitestgehend identisch mit der unmittelbar daran anschließenden  $\gamma$ -Messung des zu charakterisierenden Objektes sein. Optimalerweise wird ein identisches, aber inaktives Objekt an der Stelle des späteren Messobjektes positioniert. Im Falle von 200 L Fässern könnten dies entsprechende vorgehaltene Kalibrationsfässer sein. Da sich der Detektor bei der Messung derartiger Behälter in unterschiedlichen Höhenpositionen befinden kann [3], sollte bei der Untergrundmessung auch der entsprechende Messablauf mit berücksichtigt werden.

#### 4.2.2 Aufnahme des Gamma-Spektrums des Messobjekts

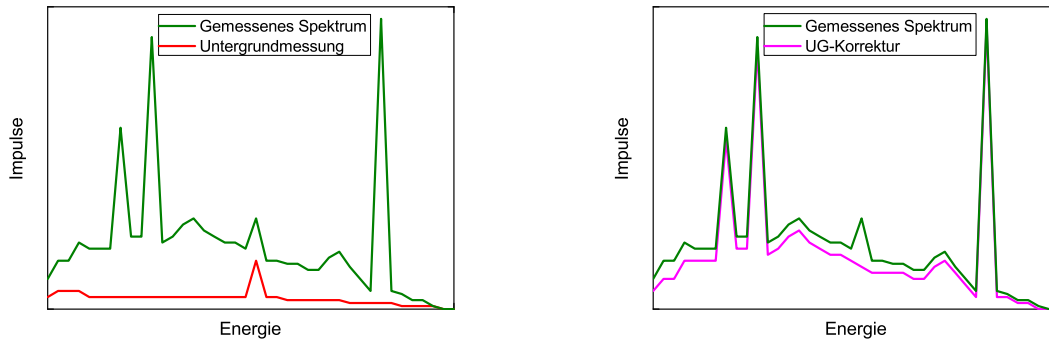
Das  $\gamma$ -Spektrum des Messobjekts wird entsprechend dem gewählten Messverfahren [3] aufgenommen. Neben einer ausreichend langen Messzeit, die für eine gute statistische Auswertung der Daten unbedingt erforderlich ist, ist während der Messung darauf zu achten, dass sich das radioaktive Inventar in der Umgebung gegenüber der Situation während der Messung des Untergrunds nicht ändert.

#### 4.2.3 Analyse des Gamma-Spektrums

Für die Analyse des gemessenen  $\gamma$ -Spektrums des Messobjekts können prinzipiell kommerzielle Auswerteprogramme (z. B. Genie 2000, Canberra) eingesetzt werden. Es hat sich in der Praxis bei RCM allerdings gezeigt, dass bei komplexeren Spektren eine automatische Auswertung nur bedingt zufriedenstellende Ergebnisse liefert und Raum für weitere Entwicklungsarbeit bietet. Alle hier im Rahmen der Arbeit durchgeführten Analysen wurden manuell ausgewertet.

#### Untergrundkorrektur

Der erste Schritt der Analyse stellt die Korrektur des Spektrums bezüglich des Untergrunds dar. Hierbei sind gegebenenfalls unterschiedliche Messzeiten, z. B. hervorgerufen durch Totzeiteffekte bei der Messung des Objekts oder durch zeitlich verkürzte Nachbildung des Messverfahrens bei der Untergrundmessung, zu berücksichtigen. Nach dem entsprechend gewichteten Abzug des Untergrundspektrums vom  $\gamma$ -Spektrum für das Messobjekt kann der nächste Teilschritt der Analyse erfolgen.



**Abbildung 4.1:** Links: Rot das gemessene UG-Spektrum (Verfahrensschritt 1); Grün das gemessene Spektrum (Schritt 2). Rechts: Magenta ist das UG-korrigierte (1. Teil von Schritt 3) Spektrum dem Originalspektrum in grün gegenübergestellt.

Das exemplarische Modell eines gemessenen Spektrums, welches eine Überlagerung aus Untergrund, Röntgen- und  $\gamma$ -Linien mit den zugehörigen Effekten sowie einem  $\beta$ -Strahler ist, ist in Abbildung 4.1 auf der linken Seite in grüner Farbe skizziert, rot zeigt den aufgenommenen Untergrundanteil zu dieser Messung. Rechts sieht man in Magenta das Untergrund-korrigierte Spektrum, dem original aufgenommenen in Grün gegenübergestellt.

Bei dem roten Untergrundspektrum wird angedeutet, dass auch dieses  $\gamma$ -Linien enthalten kann und nicht nur aus statistischem Rauschen besteht. Diese  $\gamma$ -Linien können von in der Nähe gelagerten Proben, von kosmischer Strahlung oder durch die natürlichen Radioaktivität aus der Umgebung entstehen.

Eine Anmerkung zu Untergrundkorrektur: Bei manchen in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurden Differenzspektren gebildet, ohne vorherige UG-Korrektur. Dies war möglich, da die Spektren welche voneinander abgezogen wurden, unter gleichen Bedingungen gemessen wurden und somit die UG-Korrektur bei der Differenzbildung gegenstandslos wird.

### Identifikation der $\gamma$ -Strahler anhand ihrer charakteristischen Linien

Für die Identifikation der  $\gamma$ -Strahler werden geeignete Peaksuch-Algorithmen angewendet [7] und mit Hilfe von Bibliotheken das jeweilige Nuklid bestimmt. Hierbei ist auf die Entfaltung überlagerter Peaks, auf Summen- und Escape-Peaks etc. zu achten. Letztendlich muss jede im Spektrum enthaltene Linie identifiziert worden sein.

### Quantifikation des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars

Auf der Grundlage der Effektivitätskalibrierung für das genutzte Detektorsystem sowie eines geeigneten Auswertemodells (siehe z. B. für das segmentierte  $\gamma$ -Scanning [3]) werden aus den Nettopeakflächen der identifizierten Peaks die zugehörigen Aktivitäten berechnet. Vor allem Nuklide, welche mehrere charakteristische  $\gamma$ -Linien bei unterschiedlichen Energien emittieren (z. B.  $^{152}\text{Eu}$ ) können zur Überprüfung der erzielten Ergebnisse genutzt werden, da die berechneten Aktivitäten für alle Linien innerhalb der Toleranzbereiche übereinstimmen müssen. Gegebenenfalls ist eine Überprüfung und Revision der verwendeten Kalibrationsparameter oder des Modells erforderlich. Bei RCM werden für die Quantifikation die aus der digitalen  $\gamma$ -Radiographie und Tomographie gewonnenen Erkenntnisse bezüglich der materiellen Zusammensetzung des Objekts

(d. h. der Matrix) genutzt. Des Weiteren kann beim segmentierten  $\gamma$ -Scanning auch die Verteilung der Nuklide im Objekt zur Anpassung der Modellparameter herangezogen werden.

## **Identifikation der Röntgenlinien**

Zuletzt sind die identifizierten Röntgenlinien auszuwerten. Sie liefern u. a. Hinweise auf  $\beta$ -Strahler, die durch Elektronen-Einfang zerfallen. Eine weitergehende Nutzung der Informationen von Röntgenstrahlen erfolgt aufgrund fehlender Modelle derzeit nicht.

## **Innere Konversion der identifizierten Nuklide**

Wenn Nuklide identifiziert wurden, bei denen innere Konversion im Zerfallsprozess eine Rolle spielt, sollte die Energie des/ der Konversionselektron(en) überprüft werden, da diese(s) monoenergetische(n) Elektron(en) ebenfalls Bremsstrahlung erzeugt und gegebenenfalls das Spektrum im auswertenden Bereich stören kann. Dies kann eine Identifikation erschweren und die Quantifizierung verfälschen.

### **4.2.4 Rekonstruktion des Gamma-Spektrums auf der Grundlage der identifizierten und quantifizierten Gamma-Strahler**

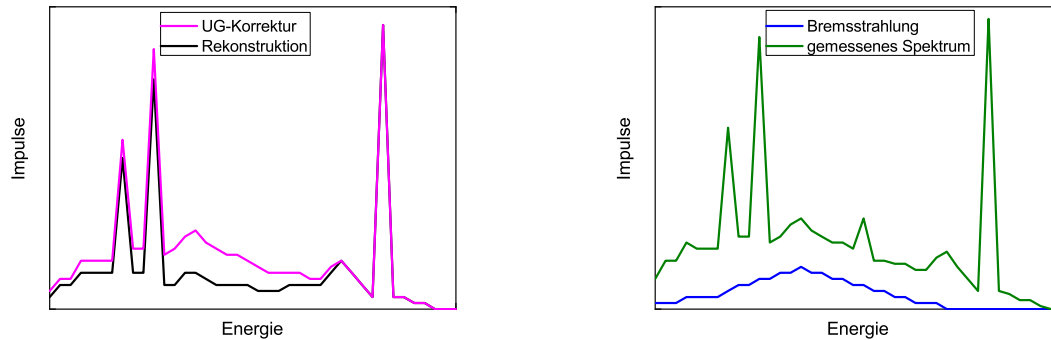
Mit Abschluss des vorangegangenen dritten Schritts liegen alle aus dem gemessenen  $\gamma$ -Spektrum ableitbaren Informationen über die im Objekt enthaltenen  $\gamma$ -Strahler vor. Unter Verwendung der charakteristischen Daten der Messgeometrie, der Messparameter, des Detektorsystems, der Zusammensetzung des Objekts sowie der Aktivitäten und Verteilungen der  $\gamma$ -Strahler im Objekt wird die  $\gamma$ -Messung in einer geeigneten Rekonstruktion, durch Referenzspektren und / oder durch zu Hilfenahme von Simulationsergebnissen nachgebildet.

### **4.2.5 Extraktion des Bremsstrahlungsanteils durch Differenzbildung von gemessenem und rekonstruiertem Gamma-Spektrum**

Das simulierte bzw. rekonstruierte Spektrum sollte nun mit dem gemessenen Spektrum bis auf den durch Bremsstrahlung erzeugten Anteil, der in der Simulation nicht berücksichtigt wurde, übereinstimmen. Durch Subtraktion der beiden Spektren voneinander enthält das resultierende Differenzspektrum nur mehr die Beiträge, die nicht in der Nachbildung berücksichtigt wurden, d. h. bei ausreichend sorgfältiger Rekonstruktion nur noch Beiträge von Bremsstrahlungsspektren.

Dies wird in Abbildung 4.2 visualisiert. Das rekonstruierte Spektrum (links, schwarz) enthält nur Beiträge der identifizierten und quantisierten  $\gamma$ -Strahler. In Magenta ist diesem das UG-korrigierte gemessene Spektrum gegenübergestellt. Subtrahiert man ersteres von letzterem, erhält man das blaue Spektrum, welches rechts in der Abbildung zu sehen ist. Dies ist die Information über die Bremsstrahlung, welche aus dem grünen, hier nochmals zu Veranschaulichung dargestellten, original gemessenen Spektrum gewonnen wurde (vgl. Abbildung 4.1). Das blaue Spektrum ist das Ergebnis des fünften Verfahrensschrittes, welches im sechsten Schritt interpretiert werden muss.





**Abbildung 4.2:** Links: Schwarz das rekonstruierte Spektrum (Schritt 4), in Magenta das UG-korrigierte, gemessene Spektrum. Rechts: Blau zeigt die in Schritt 5 extrahierte Bremsstrahlungsinformation, d. h. das Bremsstrahlungsspektrum. Zum Vergleich ist das ursprüngliche Messspektrum in grün dargestellt.

## MAC-Korrektur

Das Referenzspektrum muss unter Umständen noch korrigiert werden. Dies wird nötig, wenn kein Datensatz mit den bei der Messung bestimmten Absorbern, also das entsprechende Abfallgebilde vorliegt. Dies geschieht mit den zur Abfallmatrix passenden Massenabschwächungskoeffizienten und deren Absorberdicken. Details dazu siehe Kapitel 7.3. Dieser Schritt ist je nach Datenlage vor der Extraktion durchzuführen.

### 4.2.6 Interpretation des Bremsstrahlungsspektrums

Das extrahierte Bremsstrahlungsspektrum bedarf nun weiterer Arbeitsschritte, bevor eine Identifikation und eine spätere Quantifikation möglich sind. Zunächst erfolgt gegebenenfalls eine Korrektur des Spektrums bezüglich der energieabhängigen Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektorsystems, gefolgt von einer Korrektur möglicher Abschirm- und Streueffekte durch das Objekt. Für die anschließende Identifikation des  $\beta$ -Strahlers anhand des „reinen“ Bremsstrahlungsspektrums<sup>2</sup> stehen drei Möglichkeiten zur Verfügung.

Zum einen kann ein Vergleich mit gespeicherten gemessenen oder berechneten Bremsstrahlungsspektren erfolgen. Durch Parameteranpassung kann eine Quantifizierung erfolgen. Die Qualität dieses einfachen Verfahrens hängt sowohl von der Güte der gespeicherten Spektren als auch des extrahierten Bremsstrahlungsspektrums ab<sup>3</sup>.

Alternativ zu voranstehender Methode, kann die Darstellung der Messdaten in Form eines Kurie-Plots erfolgen. Voraussetzung hierfür ist eine vorangegangene Korrektur des Messspektrums bezüglich der Objekt-spezifischen Eigenschaften (Abschirmung, Streuung, Aktivitätsverteilung etc.).

Eine aufwändigere, aber genauere Methode bildet die Auswertung unter Verwendung (vereinfachter) mathematischer Modelle, wie sie z. B. im Kapitel 5.2.2 diskutiert werden. Hier können die Objekt-spezifischen Eigenschaften direkt berücksichtigt werden. Des Weiteren bestehen auch

<sup>2</sup>Es wird im Weiteren von einem einzigen  $\beta$ -Strahler ausgegangen, d. h. einem „eindeutigen“ Bremsstrahlungsspektrum. Prinzipiell sollten aber auch überlagerte Bremsstrahlungsspektren von mehreren  $\beta$ -Strahlern ausgewertet werden können.

<sup>3</sup>Anwendungen vergleichbarer Methoden in der Auswertung von  $\gamma$ -Spektren von NaI-Detektoren, wie sie z. B. in einigen kommerziell erhältlichen Systemen implementiert sind, zeigten in umfangreichen Testmessungen zum Teil drastische Abweichungen zwischen Realität und Praxis.

Vorteile für die Einbindung in bestehende Analysealgorithmen zur  $\gamma$ -Spektrometrie.

Ein effektives automatisiertes Auswerteprogramm für Identifikation und Quantifikation wird vermutlich auf dem kombinierten Einsatz aller drei Methoden basieren. So könnte eine Identifikation mittels des Kurie-Plots erfolgen, eine Quantifikation durch Einsatz der Modellbeschreibung. Zur Verifikation der erzielten Ergebnisse könnte die Parameteranpassung für gespeicherte Bremsstrahlungsspektren herangezogen werden.

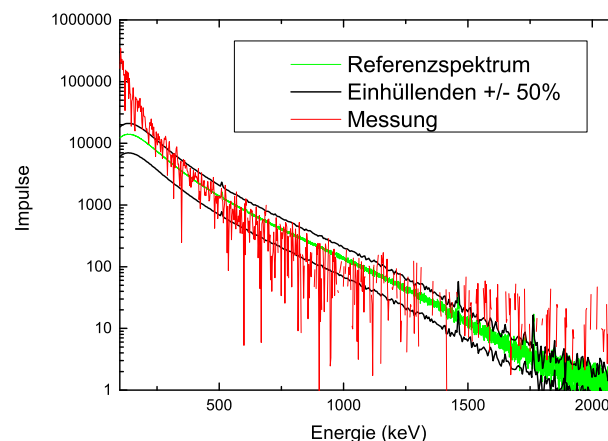
Eine weitere Möglichkeit wäre theoretisch die Entfaltung des Spektrums, diese wird bei der Messung mit  $\gamma$ -Scanner nicht zu realisieren sein. Eine kurze Erläuterung liefert Kapitel 5.

Weitere Details zu dem Auswerteverfahren, sowie ein Test des selbigen unter einfacher Zuhilfenahme von Referenzspektren findet sich nach dem praktischen Teil in Kapitel 7.6.

### Qualität der Rekonstruktion

Es zeigte sich, dass die Differenzbildung in der Praxis nicht trivial sein wird und viele Fehlerquellen hat. So ist zum Beispiel bei kleiner Variation des Proben-Detektor-Abstands bei  $\gamma$ -Strahlern bei angepassten Peakflächen, ein Unterschied der Zählrate in bestimmten Bereichen des Compton-Untergrunds von einem Faktor bis 2,5 beobachtet worden (Kapitel 7.2), um nur eine Gefahr zu nennen. Daher ist davon auszugehen, dass das Differenzspektrum in seiner Form von dem tatsächlichen Spektrum des enthaltenen Bremsstrahlers abweichen wird. Es muss also ein geeignetes Kriterium gefunden werden ab welchem Grad an Übereinstimmung von einer Identifikation ausgegangen werden kann.

Ein einfache Idee wäre ein Einhüllende (äquidistant auf logarithmischer Skala) um das tatsächliche Bremsstrahlerspektrum zu legen, so wie in Abbildung 4.3. Grün ist die Referenzkurve. Rot das aus Messungen gewonnen Differenzspektrum.



**Abbildung 4.3:** Die Einhüllende (beide schwarze Kurven) um das Referenzspektrum (grün) bestimmt die Güte. Liegen viele Punkte des Differenzspektrums (rot) in diesem Bereich, gilt dies als Indiz für die Identifikation. In der Abbildung entspricht der Bereich zwischen den beiden schwarzen Kurven  $\pm 50\%$ .

Ein Kriterium für die Identifikation kann beispielsweise lauten: Es sollen mindestens 51 % der Punkte der roten Kurve zwischen den beiden schwarzen, einhüllenden Kurven liegen, damit das Nuklid als identifiziert gilt. Oder es müssen mindestens 51 % der Punkte im jeweiligen Abschnitt darin liegen, sollte man nur Teilabschnitte untersuchen. Ein endgültiges Auswahlkriterium lässt sich an dieser Stelle noch nicht treffen.

Warum äquidistant auf logarithmischer Skala?

Es wird von einem Messfehler mit der Größenordnung der Wurzel seiner Impulse pro Kanal ausgegangen, dies ist eine üblicherweise getroffene Abschätzung. Trägt man diesen Fehler auf, wird seine relative Größe bei großen Impulszahlen sehr klein. Bei der logarithmischen Einhüllenden werden, die Fehler relativ zu den Zählraten hin zu niedrigen Energien größer. In diese Richtung nehmen auch die Fehler bei der Rekonstruktion zu, da auch die Überlagerungen der verschiedenen Strahlungseffekte zunehmen.

Für den Gütebereich gilt: Je schmaler desto besser. Je exakter die Rekonstruktion umgesetzt wird, desto schmaler kann der Bereich gewählt werden.

Sollte sich in der Routine zeigen, dass die Spektren bei Energien von unter 255 keV bzw. unterhalb der größten je nach Nuklidinventar zu erwartenden Rückstreupeakenergie die größten Abweichungen haben, sollte dies als Indiz für Probleme bei der Rekonstruktion der Rückstreuung in Betracht gezogen werden.

Nachweis oder Erkennungsgrenzen lassen sich über das Peak zu Compton Verhältnis des Detektors abschätzen. Dies ist für viele Detektoren zumindest für den 1332 keV Peak des  $^{60}\text{Co}$  angegeben und ist eine charakteristische Detektoreigenschaft<sup>4</sup>. Sie gibt das Zählraten Verhältnis zwischen Photopeak und den Kanälen unmittelbar vor der Compton-Kante an, bei idealen Messbedingungen, d. h. Streueffekte außerhalb des Detektor sind vernachlässigbar. Dies muss bei einer Abschätzung berücksichtigt werden.

---

<sup>4</sup>ANSI/IEEE Standard 325-1986, Test Procedures for Germanium Gamma Ray Detectors (1986).



# Kapitel 5

## Simulationswerkzeuge

### 5.1 Allgemeines

Im vorigen Kapitel wurde das sechs-stufige Verfahren vorgestellt, welches die Charakterisierung von  $\beta$ -Strahlern ermöglicht. Handelt es sich bei den beiden ersten Schritten rein um Messungen, verlangt der dritte Schritt die Analyse des  $\gamma$ -Spektrums, eine fundierte Kenntnis der  $\gamma$ -Spektroskopie. Ist dieser erfolgreich abgeschlossen folgt Schritt 4, der in Abschnitt 4.2.4 nur ganz grob skizziert wurde. Jedoch ist dieser mit der Herausforderung, da nur mit einer exakten Rekonstruktion der  $\gamma$ -Anteile des aufgenommenen Spektrums, ein Differenzspektrum (Schritt 5) gebildet werden kann, das die tatsächliche Information über die Bremsstrahlung enthält. Ist das rekonstruierte Spektrum fehlerhaft, wird auch der letzte Schritt, die Interpretation der Bremsstrahlungsinformation, fehlerhaft sein.

Ein Mittel der Wahl für solch eine Rekonstruktion ist die Simulation mit geeigneten Computerprogrammen.

Die Simulation ist prinzipiell ein wichtiges Instrument, um Messergebnisse zu verifizieren. Auch kann die Simulation eine Idee davon geben, was als Messergebnis zu erwarten wäre. So kann es möglich sein, dass Messungen, welche der Rekonstruktion dienen, nicht zu realisieren sind, beispielsweise wenn entsprechende radioaktive Quellen oder Gebinde nicht verfügbar sind. Anderes herum kann mit einer realen Messung überprüft werden, wie gut die Theorie hinter der Simulation ist, wenn man die Ergebnisse beider vergleicht.

Eine Art der Simulation, die sich für  $\gamma$ -Spektren eignet, ist die Monte-Carlo Simulation. Im Falle der  $\gamma$ -Spektroskopie muss von sehr vielen quantenmechanischen Teilchen ausgegangen werden, über deren Verhalten sich nur statistische Aussagen treffen lassen. Beim Zerfall entstehen Elektronen und Photonen sowie weitere Teilchen unterschiedlichster Energien. Diese wechselwirken auf unterschiedlichste Art (vgl. Kapitel 2.2) mit unterschiedlichen Wahrscheinlichkeiten mit ihrer Umgebung. Ist diese das Detektormaterial, wird dort durch diese Wechselwirkungen das Spektrum geformt (vgl. Kapitel 2.3). Die Monte-Carlo Simulation, deren Namensgeber die gleichnamige Spielbank in Monaco ist, liefert Verteilungseigenschaften von Zufallsvariablen als Ergebnis, d. h. mit ihrer Hilfe wird statistisches Verhalten simuliert. Ebenso verhalten sich quantenmechanische Teilchen. Für ein einzelnes Teilchen lassen sich in der Quantenmechanik keine konkreten Aussagen zu dessen Geschichte treffen, sondern nur Wahrscheinlichkeiten angeben, welche davon eintreffen könnte. Somit ist das Verhalten einer großen Anzahl quantenmechanischer Teilchen ein statistisches Problem. Bestes Beispiel ist der radioaktive Zerfall, wo nicht angegeben kann, welches konkrete Teilchen wann zerfällt, sondern nur wie viele Teilchen in einer bestimmten Zeit zerfallen, vgl. Kapitel 2.2.1.

Die durchgeführten Simulationen hatten zwei Ziele:

- Für  $\gamma$ -Strahler, die in den Messspektren identifiziert wurden, sollte das zugehörige  $\gamma$ -Spektrum mit all seinen Modifikationen aufgrund von Compton-Streuung, Rückstreuung etc. simuliert werden um die Rekonstruktion zur ermöglichen.
- Für vorgegebene  $\beta$ -Strahler, d. h. für gegebene Elektronen-Spektren, sollten die von ihnen erzeugten  $\gamma$ -Spektren simuliert werden. Diese Untersuchungen sollen zum Vergleich mit den Ergebnissen aus realen Messungen herangezogen werden.

## 5.2 Das Simulationsprogramm EGSnrc

### 5.2.1 Grundsätzliches zu EGSnrc

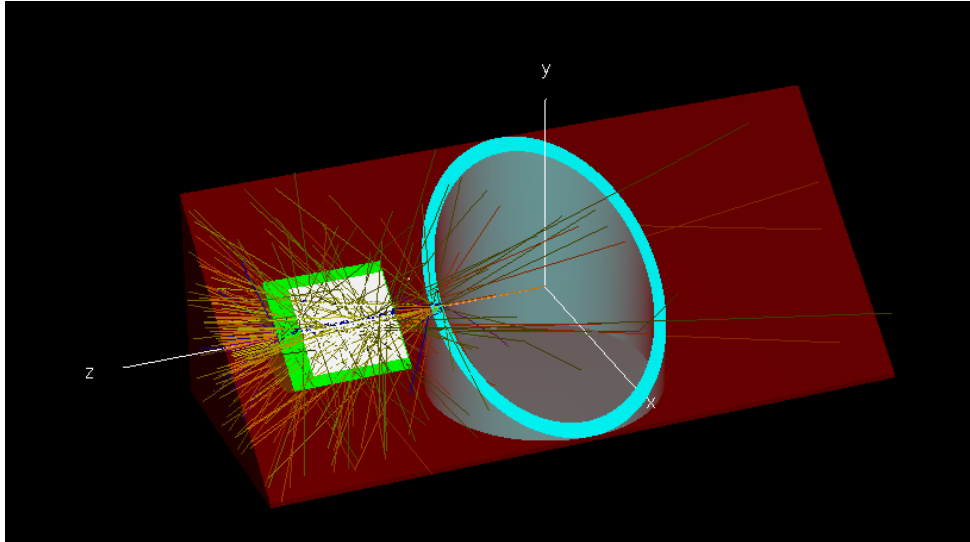
Für die Durchführung der Simulationsrechnungen wurde auf das frei erhältliche Programm EGSnrc (Electron-Gamma Shower) in der Version 4 des National Research Council of Canada (NRC) zurückgegriffen [50]. EGSnrc beruht auf EGS4, welches vom Stanford Linear Accelerator Centers (SLAC), Stanford University, und dem NRC entwickelt wurde.

Es handelt sich hierbei um ein flexibles Softwarepaket zur Simulation des Transports gekoppelter Elektronen und Photonen mit Energien zwischen 1 keV bis zu 10 GeV in nahezu beliebiger Geometrie. Obwohl EGSnrc prinzipiell auch auf einem Desktop-PC installiert und genutzt werden kann, wurde aus Performancegründen auf das Linux-Cluster am Leibniz-Rechenzentrum (LRZ) zurückgegriffen. Hierdurch konnten der zeitliche Aufwand für die Durchführung der Simulationen reduziert und somit die Anzahl der durchgeführten Simulationen entsprechend erhöht werden, bzw. war es auch möglich mehrere Berechnungen gleichzeitig an das Cluster zu übermitteln.

Für fast alle hier durchgeführten Simulationen wurde ein spezieller User Code von EGSnrc verwendet: DOSRZnrc in Revision 1.55. Diese Bezeichnung steht für „Cylindrical-geometry dose-scoring EGSnrc user-code“. Dieser Code unterliegt der Einschränkung, dass sich nur Geometrien darstellen lassen, welche rotationssymmetrisch sind. Ein großer Vorteil gegenüber dem Rest des EGSnrc Pakets ist, dass es eine vorgefertigte Routine für die "pulse height distribution"(PHD) gibt. Damit ist die direkte Ausgabe des Detektorsignals möglich. Auch ist die Verwendung dieses User-Codes im Vergleich zur Programmierung eines eignen Codes in EGSnrc einfacher, da im Wesentlichen nur ein passendes Input File, mit der zu simulierenden Geometrie, generiert werden muss. Des Weiteren benötigt man eine spezielle Datei, das die Information über die Strahlungsquellen beinhaltet. Diese enthält Energien und Übergangswahrscheinlichkeiten bzw. Intensitäten. Bei den anderen User Codes muss zum Teil jeder einzelne Schritt, der in der Simulation stattfinden soll, in der EGS eigenen Programmiersprache Mortran programmiert werden. Auch sind eine Vielzahl von Transportoptionen einfach zuschaltbar bzw. mehrere Algorithmen für einzelne Optionen wählbar. Darunter befinden sich u. a. Triplett Produktion, Bound Compton Scattering, Rayleigh Streuung. Details zu den einzelnen Optionen finden sich im EGSnrc Manual [50].

Eine der wenigen Simulationen, die nicht mit DOSRZnrc berechnet wurden, ist in Abbildung 5.1 gezeigt. Es ist eine nicht maßstabgetreue Darstellung eines luftgefüllten Fasses, das eine monochromatischen  $\gamma$ -Quelle (Parallelstrahl) im Zentrum enthält und einem einfachen Detektormodell, einem in Aluminium eingefassten Ge-Zylinder, besteht.

Diese Simulation diente lediglich dem Versuch Teilchentrajektorien mit EGSnrc darzustellen. Alle für die Simulation benötigten Materialkonstanten (Wechselwirkungsquerschnitte, Stopping Power und dergleichen) stammen aus dem 521ICRU Datensatz, welcher mit EGSnrc (PEGS

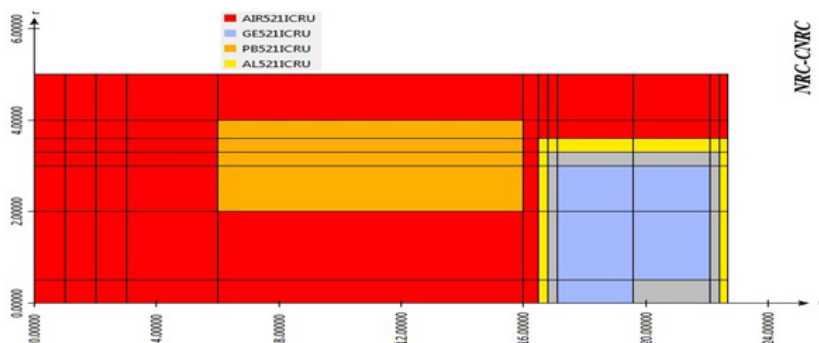


**Abbildung 5.1:** Schematische 3D-Darstellung einer Messgeometrie mit Detektor (links) und leerem 200 L Fass (rechts), in dessen Zentrum (Ursprung des Koordinatensystems) eine monochromatische, entlang der z-Achse parallel strahlende  $\gamma$ -Quelle sitzt. Zusätzlich mit eingezeichnet sind verschiedene Teilcentrajektorien, gelb die der  $\gamma$ -Quanten und blau die Bahnen der Elektronen. Eisen ist hellblau, Germanium weiß, Aluminium grün und Luft rot dargestellt.

Preprocessor for Electron Gamma Shower) ausgeliefert wird. Dieser enthält für die meisten Elemente und viele Mischmaterialien entsprechende Parameter und wird häufig bei Simulationen von Partikeltransport eingesetzt (vgl. z.B. [51], [52]). Er wird von der International Commission on Radiation Units & Measurements (ICRU) bereitgestellt und wurde in allen Simulationen verwendet.

### 5.2.2 Beispiele für Simulationen mit EGSnrc

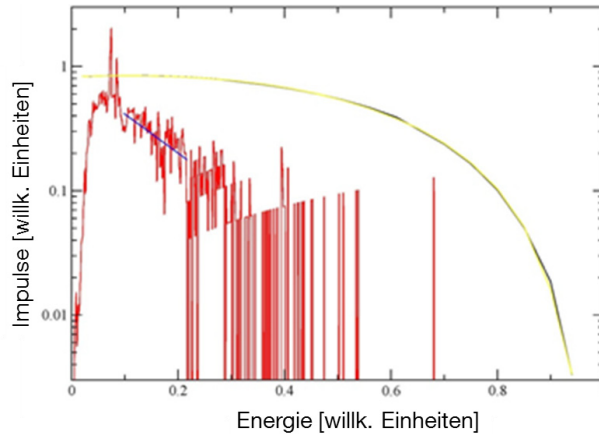
In diesem Abschnitt werden für die beiden Simulationsziele (Rekonstruktion der  $\beta$ - sowie der  $\gamma$ -Strahlung, vgl. Abschnitt 5.1) jeweils ein mit EGSnrc gewonnenes Ergebnis präsentiert. Als radioaktive Quellen für einen  $\gamma$ -Strahler dient  $^{133}\text{Ba}$ , für den  $\beta$ -Strahler wurde  $^{170}\text{Tm}$  ausgewählt. Für diese Beispiele wurde nur der HPGe-Detektor mit einem Blei-Kollimator in der Simulation nachgebildet, um ein Spektrum des  $^{170}\text{Tm}$  zu gewinnen, Abbildung 5.2 zeigt das einfache Detektormodell.



**Abbildung 5.2:** Schematische Darstellung des rotationssymmetrischen Aufbaus eines kollimierten Germanium-Detektors. Die Zahlenangaben entsprechen den Abständen in Zentimetern.

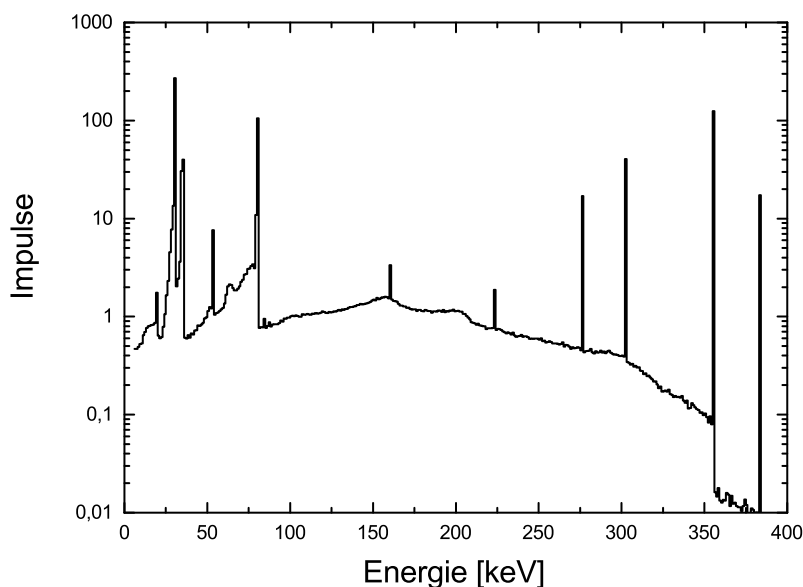
Abbildung 5.3 zeigt das theoretische Elektronenspektrum aus der Lund-Datenbank [49] (schwarz). Dieses schwarze Spektrum war das Input-Spektrum für die Simulation, gelb ist ein daran ange-

passte Polynomfunktion. Das resultierende Simulationsergebnis ist das Detektorsignal (rot) mit Fit (blau). Dieser blaue Fit ist eine Vorarbeit zu Kapitel 7.5.1.



**Abbildung 5.3:** Simuliertes  $\gamma$ -Spektrum (rot) für das  $\beta$ -Spektrum (schwarz) von  $^{170}\text{Tm}$ . Eine (gelb dargestellte) Polynomfunktion dritten Grades wurde an das  $\beta$ -Spektrum approximiert und verläuft deckungsgleich mit diesem. Die blaue Linie zeigt einen einfachen Fit an einen Teilbereich des  $\gamma$ -Spektrum.

Neben den in Abbildung 5.3 und Abbildung 5.4. gezeigten einfachen Simulation wurden zahlreiche weitere Simulationen durchgeführt. Dieser Vorversuch war ein Test der zeigen sollte, dass aus einem vorgegebenen Elektronen-Spektrum ein Detektorsignal, also ein Bremsstrahlungsspektrum, erzeugt wird.



**Abbildung 5.4:** Simulation des Nuklids  $^{133}\text{Ba}$ .

Abbildung 5.4 zeigt das Ergebnisse einer Simulation von  $^{133}\text{Ba}$ . An diesem Spektrums erkennt man die Photopeaks des  $^{133}\text{Ba}$  und den dazugehörigen Compton-Untergrund sehr gut. Weitere im Spektrum enthaltene Details wie die Rückstreuung werden im Vergleich mit den Messergebnissen in Kapitel 6.4 und Kapitel 7 diskutiert.

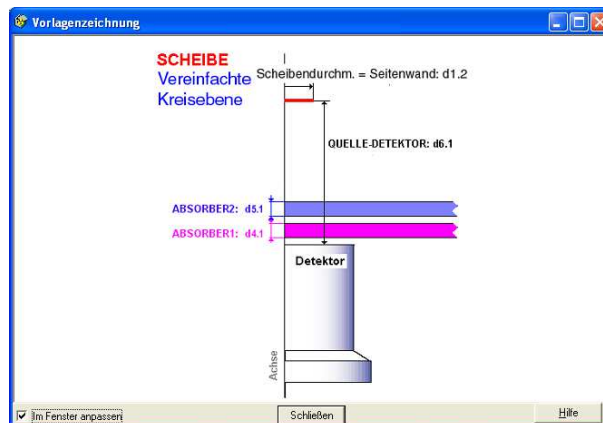


## 5.3 Weitere Berechnungen

Zusätzlich zu den Simulationsberechnungen mit EGSnrc, wurden noch weitere Berechnungen mit den Programmen MATLAB und ISOCS bzw. LABSOCS durchgeführt.

In Kapitel 2.2.3 wurde mit Hilfe der Formeln 2.16 und 2.18 ein Methode vorgestellt, mit deren Hilfe man das Elektronen-Bremsstrahlungsspektrum  $S(k)$  für dicke Absorber berechnen kann. Im Folgenden wird dieser Rechenweg meist nur noch als  $S(k)$ -Rechnung bezeichnet. Die mit MATLAB erzielten Ergebnisse dieser Rechnungen werden in Kapitel 7.5.2 gegeben.

Diese Ergebnisse werden mit den Messergebnissen verglichen. Dafür wird die Effizienz  $\varepsilon_{Eff}$  des entsprechend kalibrierten Detektors benötigt. Diese lassen sich, den entsprechenden Detektor vorausgesetzt, mit dem Programm ISOCS berechnen. ISOCS (In Situ Object Counting Systems) bzw. LABSOCS (Laboratory Sourceless Calibration Software) bilden ein Programmpaket der Firma Canberra. Mit ihm kann unter anderem, bei entsprechend von Canberra zertifizierten Detektoren, durch Modellierung der Messung sehr einfach die Effizienz  $\varepsilon_{Eff}$  von Detektoren berechnet werden. Für einen zertifizierten Detektor wird im Werk mit Hilfe der Monte-Carlo Software MCNP [53] und umfangreichen Kalibrationsmessungen ein genaues Modell der Effizienzen und weitere Parameter berechnet. Dieses Modell liegt der Canberra Software zugrunde. In der Software lässt sich mit einem, an die Oberfläche von CAD-Programme angelehnten, Editor die Effizienz für eine bestimmte Geometrie mit verschiedenen Messobjekten berechnen. Abbildung 5.5 zeigt eine Übersichtsskizze des Modells für die in Abbildung 7.38 gezeigten Spektren benötigten Effizienzen.



**Abbildung 5.5:** Geometriemodell in ISOCS. Absorber 1 war ein Probenhalter aus Plexiglas. Absorber 2 war je nach Fall Cu, Al oder gar nicht mit Material belegt.



# Kapitel 6

## Experimentelle Untersuchungen

### 6.1 Allgemeines

Die experimentellen Untersuchungen dienten als wichtigstes Instrument zur Lösung der Fragestellung aus Kapitel 1. Mit ihrer Hilfe konnte die Grundlagen geschaffen werden, wie Bremsstrahlung von  $\beta$ -Strahlern in  $\gamma$ -Spektren verschiedener Messsysteme auftritt und wie sich die Änderung von Messparametern auf die Spektren auswirkt. Dies führte letzten Endes zur Entwicklung des in Kapitel 4 vorgestellten Auswerteverfahrens. Vergleiche mit Simulationsrechnungen lieferten wichtige Hinweise darauf, wie sich der Einfluss der Messgeometrie auf die Form des Spektrums auswirkt. Die Messungen wurden an verschiedenen Messplätzen und mit unterschiedlichen Quellen durchgeführt. Diese werden in den nachfolgenden Abschnitten beschrieben.

### 6.2 Messplätze

Es kamen drei unterschiedliche Messsysteme zum Einsatz, die in den folgenden Abschnitten vorgestellt werden.

#### 6.2.1 Stationärer HPGe-Messplatz

Das stationären HPGe-Detektorsystem nutzt einen mit flüssigem Stickstoff gekühlten HPGe-Detektor der Fa. Ortec. Er besitzt ein Eintrittsfenster aus Aluminium von etwa 1 mm Dicke. Mit einer Kristallgröße von 74,9 mm Durchmesser und 91,3 mm Länge besitzt er eine relative Effektivität von etwa 91,5% (bei 1332 keV). Seine Halbwertsbreite bei 1332 keV ist 2,3 keV. Der in Aufwärtsrichtung betriebene Detektor ist von unten in eine Blei-Burg eingebracht (Abbildung 6.1).

Als Hochspannungsversorgung dient das Model 659 der Firma Ortec. Das  $\gamma$ -Spektrum wird mit einem digitalen Signalprozessors (Model 9660 der Fa. Canberra) registriert. Die Datenerfassung erfolgte mit dem Programm Genie 2000 (Fa. Canberra), welches auf einem Windows XP Rechner installiert ist.

Zur Vermeidung der Röntgenfluoreszenz-Linien der 10 cm dicken Bleiabschirmung, ist die Innenseite der Blei-Burg mit einer 4 mm starken Lage aus Kupfer-Blech ausgekleidet. Auf dieses folgt eine weitere 4 mm starke Plexiglas-Schicht. Durch diese Sandwichstruktur wird die Auswirkung



**Abbildung 6.1:** Links: Foto des stationären HPGe-Detektorsystems mit geöffneter Blei-Abschirmung, mit der RCM-internen Bezeichnung Det 31. Rechts: Auf die Detektorendkappe aufgesetzter Probenhalter. Auf diesem liegen zwei Amersham-Punktquellen nebeneinander und darauf ein doppelt in Folie eingeschweißtes Tm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Pulver.

der im Blei entstehenden Röntgenstrahlung auf das gemessene  $\gamma$ -Spektrum minimiert. Zusammen mit der Abschirmwirkung des Bleis gegenüber der Umgebungsstrahlung des Messplatzes ist somit eine sehr sensitive Untersuchung der Messproben möglich. Die Proben können in der Blei-Burg in exakt definierter Geometrie auf einem Probenhalter aus PE-Kunststoff positioniert werden (Abbildung 6.1 rechts).

An den Beinen des Probenhalters können in kleine Bohrungen auf unterschiedlichen Höhen kurze Plastik-Clips eingesteckt werden. Diese dienen als Halter und Höhenverstellung für den Probenteller, eine Polyurethan(PU)-Scheibe mit einer Stärke von 3 mm (Abbildung 6.1).

## 6.2.2 Mobiler HPGe-Messplatz

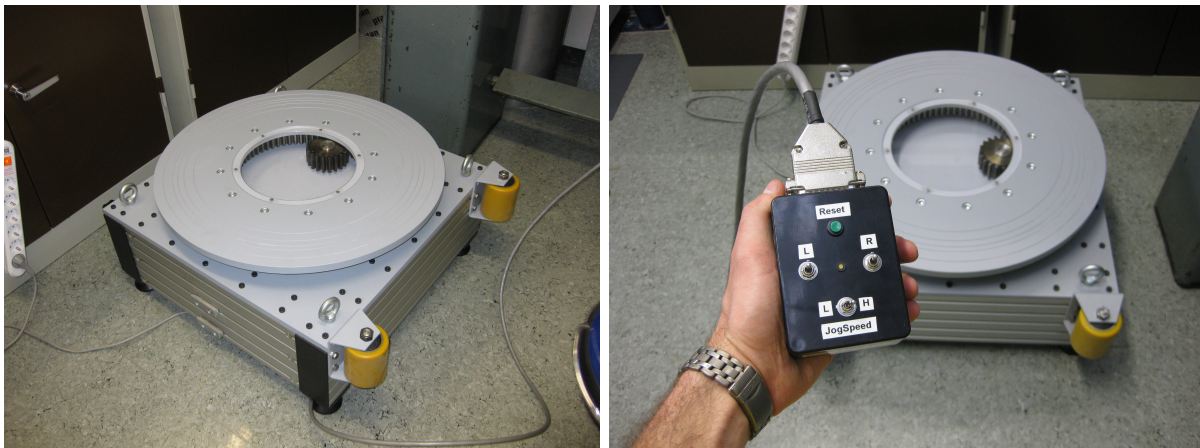
Für weitere Messungen stand der mobile elektrokühlte und batteriebetriebene HPGe-Detektor Falcon 5000 der Fa. Canberra zur Verfügung (Abbildung 6.2 links). Dieser BEGe-Detektor (Broad Energy Germanium) weist einen Messbereich von ca. 10 keV bis ca. 7 MeV auf und kann für mehr als 6 Stunden netzunabhängig betrieben werden. Aufgrund der äußerst niedrigen Mikrofonie der elektrischen Kühlung wird eine hervorragende Energieauflösung über den gesamten Energiebereich erreicht. Seine relative Effektivität bei 1332 keV beträgt 21 % bei einer Halbwertsbreite von 1,7 keV.

Der Detektor kann auf einem höhenverstellbaren Stativ positioniert werden (Abbildung 6.2 rechts). Unterhalb des Tisches befindet sich ein Fach für das dem Detektor zugehörige Netzteil. Auf der vorderen Seite des Tisches sind Halterungen angebaut, die Sonden für Ortsdosisleistungsmessungen aufnehmen können.



**Abbildung 6.2:** Links: Foto des mobilen HPGe-Detektors Falcon 5000. Rechts: Im hinteren rechten Teil des Bildes ist der Falcon 5000 auf seinem Sativ montiert.

Zusätzlich existiert für dieses System eine mobile Drehtellereinheit, welche für 200 L Fässer geeignet ist (Abbildung 6.3). Seine Rollen können zum Messen festgelegt werden, sodass die Dreheinheit stabil steht und gegen ein Verrutschen gesichert ist.



**Abbildung 6.3:** Links: Drehteller Rechts: Steuereinheit des Drehtellers.

In der Mitte des Drehtellers ist eine abnehmbare Plexiglas-Platte eingefasst, um Zugriff auf den freien Innenraum zu erhalten. So können hier kleinere Messinstrumente (Dosisleistungsmesssonden u.a.) integriert werden. Angetrieben wird der Drehteller von einem Schrittmotor der Firma Phytron. Für die einfache Ansteuerung der Drehachse bzw. des Drehtellers ist eine Handfernbedienung vorgesehen. Sie erlaubt ein gleichmäßiges Drehen des Drehtellers in beide Richtungen, mit zwei anwählbaren Geschwindigkeiten.

### 6.2.3 Mobiler Gamma-Scanner

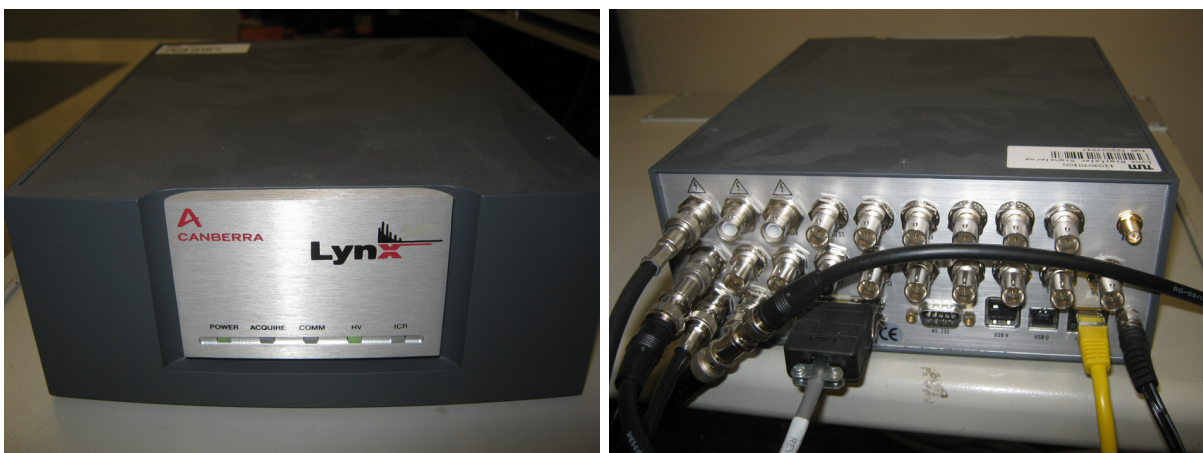
Mit die wichtigsten Messgeräte für die zerstörungsfreie Charakterisierung von radioaktiven Abfällen in Behältern sind bei RCM die mobilen  $\gamma$ -Scanner (MGS). Abbildung 6.4 zeigt exemplarisch

den bereits seit über 20 Jahren im routinemäßigen Einsatz befindlichen MGS-1 [3].



**Abbildung 6.4:** Links: Foto des mobilen  $\gamma$ -Scanners MGS-1 während der Messung eines 200 L Fasses. Das Foto zeigt noch den alten Stickstoff-gekühlten HPGe-Detektor. Rechts: Foto des neuen Detektorsystems des mobilen  $\gamma$ -Scanners MGS-1. Komponenten von rechts nach links: Steuereinheit für den elektrogekühlten HPGe-Detektor, HPGe-Detektor und zylinderförmiger Blei-Kollimator.

Der MGS-1 wurde im Zeitraum der Erstellung dieser Arbeit mehrfach modernisiert. In dem linken Foto der Abbildung ist er noch mit einem Stickstoff-gekühlten HPGe-Detektor zu sehen, der zwischenzeitlich durch einen elektrogekühlten Detektor des Typs GX4018 mit einem Transistor Reset Vorverstärker 2101 und einer Elektro-Kühlung Cryo-Pulse 5 der Firma Canberra ersetzt wurde (Abbildung 6.4 rechtes Foto).



**Abbildung 6.5:** Foto des digitalen Signalprozessors Lynx. Links: Vorderansicht; rechts: Rückansicht mit Vielzahl an Anschlussmöglichkeiten.

Die Kristallgröße des aktuellen Detektors beträgt 61 mm im Durchmesser und 62,5 mm in der Länge. Dies liefert eine Auflösung von 1,8 keV bei einer Detektoreffizienz von 43 % bei 1332 keV.

Weiterhin wird ein Lynx der Firma Canberra als Hochspannungsquelle eingesetzt. Die Daten werden mit Hilfe eines Ortec 92x VKA mit 8192 Kanälen erfasst. Zur Datenaufnahme dient ein Windows 3.11 PC mit Software von INTERGAMMA.

Im Gegensatz zu den beiden bisher vorgestellten Messplätzen bietet der Scanner verschiedene Aufbereitungen der Messdaten. In der Regel wird, wenn ein großvolumiges Objekt gescannt wird, ein Gitterscan vollzogen, d. h. es werden in einer Ebene (Höhenposition) mehrere Spektren aufgenommen. Zwischen den einzelnen Spektren wird dabei die Probe immer ein Stück weiter gedreht bis  $360^\circ$ , d. h. eine vollständig Umdrehung des Objekts, erreicht ist. Daraufhin wird die Höhenposition verfahren und die nächste Ebene vermessen. Dies geschieht so lange, bis das Messobjekt vollständig erfasst ist. In jeder Messposition wird ein eigenes Spektrum erfasst. Visualisiert wird in der Regel das Summenspektrum, welches das Ergebnis der Addition aller einzelnen Spektren ist. Die Spektren in Abbildung 1.1 aus Kapitel 1 sind beispielsweise derartige Summenspektren. Es können auch die einzelnen Spektren ausgegeben werden. Mit ihrer Hilfe ist es auch möglich Ortsverteilungen zu erstellen. In Abschnitt 7.7.2 finden diese eine Anwendung. Für die Ortsverteilung wird anhand der Zählraten in bestimmten „Regions of Interest“ (ROI) der einzelnen Spektren eine Karte erstellt, die das Auftreten der Zählraten auf dem Fassmantel zeigt. Dabei werden verschiedenen Zählraten unterschiedliche Farben zugewiesen.

## 6.3 Quellen

Für die messtechnischen Untersuchungen wurden verschiedene  $\gamma$ - und  $\beta$ -Strahler benötigt. Erstere waren zum größten Teil bei RCM vorhanden, letztere wurden zum Teil an der Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) der Technischen Universität München (TUM) mittels Neutronenaktivierung produziert.

Ein wichtiger Punkt bei den verwendeten Quellen war die genaue Kenntnis der Nuklidzusammensetzung und der jeweiligen Aktivitäten, da sonst die Interpretation zu falschen und / oder inkonsistenten Schlussfolgerungen für das zu entwickelnde Analyseverfahren führen könnte.

Für die Labormessungen wurde soweit möglich auf bei RCM vorhandene zertifizierte Punktstrahler der Fa. Amersham zurückgegriffen. Abbildung 6.6 zeigt vier der verwendeten Punktstrahler. Die beiden Nuklide  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  repräsentieren typische  $\gamma$ -Strahler aus Kernkraftwerksabfällen,  $^{241}\text{Am}$  ist ein niederenergetischer  $\gamma$ -Strahler, der oftmals in Abfällen aus kerntechnischen Anlagen, wie z. B. Forschungsinstituten, enthalten ist, und  $^{133}\text{Ba}$  ist ein Nuklid mit mehreren  $\gamma$ -Linien im Bereich bis 385 keV (Tab. 6.1).

Da die Effizienzkurven vieler Detektorsysteme im Bereich von 100 keV bis 150 keV einen Knick in ihrem Verlauf zeigen [7], kann mit  $^{133}\text{Ba}$  die korrekte Effizienzkorrektur gut verifiziert werden.

Als  $\beta$ -Strahler wurde speziell für die Labormessungen am stationärem HPGe-System das Nuklid  $^{170}\text{Tm}$  eingesetzt. Dieses besitzt eine Halbwertszeit von 128,6 Tagen und Endpunktenergien bei 883,7 keV und 968,0 keV für die beiden  $\beta$ -Zerfälle mit den zugehörigen Übergangswahrscheinlichkeiten von 18,3 % und 81,6 % [54] sowie 0,1 % für den Zerfall durch Elektronen-Einfang. Zusätzlich weist es eine schwache  $\gamma$ -Linie bei 84,3 keV auf. Das Nuklid wurde eigens für das Vorhaben von RCM am FRM II erzeugt. Hierfür wurde das stabile  $^{169}\text{Tm}$ , welches in Form von  $\text{Tm}_2\text{O}_3$  vorlag, mit Neutronen bestrahlt und in  $^{170}\text{Tm}$  umgewandelt. Das Pulver wurde in zwei Teilproben mit einer Aktivität von  $1,0 \cdot 10^7$  Bq bzw.  $8,0 \cdot 10^7$  Bq aufgeteilt und jeweils in Folie eingeschweißt (Abb. 6.7).

Des Weiteren wurde  $^{90}\text{Sr}$  für Messungen eingesetzt. Dieser  $\beta$ -Strahler ist in der Regel immer im säkularen Gleichgewicht mit seiner Tochter  $^{90}\text{Y}$ . Letztere besitzt eine vernachlässigbar schwache



**Abbildung 6.6:** Foto eines Sets mit vier Punktstrahler. Von oben links nach unten rechts:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{133}\text{Ba}$ .

**Tabelle 6.1:** Charakteristische Linien von  $^{133}\text{Ba}$  [54].

Energie in keV	Übergangswahrscheinlichkeit in %	Strahlungsart
4,3	17,1	X-Ray
30,6	34,6	X-Ray
31,0	64,0	X-Ray
35,0	23,0	X-Ray
53,2	2,1	Gamma
79,6	2,6	Gamma
81,0	32,9	Gamma
160,6	0,6	Gamma
223,2	0,4	Gamma
276,4	7,2	Gamma
302,9	18,4	Gamma
356,0	62,1	Gamma
383,8	8,9	Gamma



**Abbildung 6.7:** Foto der eingeschweißten  $\text{Tm}_2\text{O}_3$ -Probe mit dem aktivierten  $\beta$ -Strahler  $^{170}\text{Tm}$ .

$\gamma$ -Linie bei 2186 keV (Übergangswahrscheinlichkeit ca.  $10^{-6}$  %).  $^{90}\text{Sr}$  lag sowohl in gelöster Form (Volumenquelle) als auch in Form von 25 hochradioaktiven Stäben (Abb. 6.8) und als Kalibrationsstrahler vor.





**Abbildung 6.8:** Foto der  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquelle während der Präparation in der Heißen Zelle.

Die Volumenquelle ist eine Lösung von  $^{90}\text{Sr}$  in  $\text{H}_2\text{O}$  mit einem Gewicht von 11,35 g in einem Kunststoff Vial. Abbildung 6.13 zeigt das Vial positioniert für eine Messung. Die Stäbe bestehen aus  $\text{SrTiO}_3$  und sind mit V2A Stahl ummantelt<sup>1</sup>. Die  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquelle hat eine Aktivität von  $2,04 \cdot 10^{12}$  Bq und war in allen Messungen die selbe.

Die Kalibrationsstrahler wurden vom Bundesamt für Strahlenschutz zur Verfügung gestellt. Dabei handelte es sich um zwei baugleiche Punktquellen, mit einer Aktivität von jeweils  $1,5 \cdot 10^7$  Bq zum Zeitpunkt der Messungen. Abbildung 6.9 zeigt den Aufbewahrungsbehälter eines der beiden Strahler. Das  $^{90}\text{Sr}$  sitzt auf einer Erhöhung im Deckel.



**Abbildung 6.9:** Foto des Aufbewahrungsbehälter mit  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationspunktquelle.

Eine weiterer Satz an radioaktiven Quellen war an der RCM verfügbar und diente ursprünglich ebenfalls als Kalibrationsstrahler. Es handelt sich um ca. 7 cm lange Kunststoff-Röhrchen mit ca. 1 cm Durchmesser, gefüllt mit radioaktiven Trägermaterialien. Diese Quellen sind mononuklid und enthalten z. B.  $^{60}\text{Co}$  oder  $^{152}\text{Eu}$ . Abbildung 6.10 zeigt exemplarisch eine der  $^{60}\text{Co}$ -Quellen.



**Abbildung 6.10:** Foto einer  $^{60}\text{Co}$ -Stabquelle.

Der Einfluss von Absorbern wurde u.a. unter Verwendung eines  $^{99}\text{Tc}$ -Strahlers untersucht. Hierbei handelt es sich um einen reinen  $\beta$ -Strahler ohne Emission von charakteristischen  $\gamma$ -Linien. Das  $^{99}\text{Tc}$  wurde aus einem Generator gewonnen und lag als Lösung in einem Vial vor. Bei der Quelle

<sup>1</sup>Skizze mit Abmessungen in Diplomarbeit von Herbert Conrad, Radiochemie München, 1969

handelte es sich um eine  $^{99}\text{Tc}$ -Standard-Lösung mit einer spezifischen Aktivität von 353413 Bq/g (am 01.06.99) in einer Glasflasche.

Des weiteren kam eine Lösung in einem Vial des  $\beta$ -Strahlers  $^{36}\text{Cl}$  zum Einsatz. Mit den verwendeten Proben wurde ein Aktivitätsbereich vom oberen kBq-Bereich bis hin zu TBq abgedeckt.

## 6.4 Messungen

### 6.4.1 Allgemeines

An allen in Abschnitt 6.2 vorgestellten Messapparaturen wurden mehrere unterschiedliche Messreihen aufgenommen, um das Auswerteverfahren zu entwickeln und zu verifizieren. Zu Beginn der Arbeiten wurden mit den Punktquellen und verschiedenen  $^{170}\text{Tm}$ -Proben unterschiedlichste Messungen durchgeführt um eine erste Idee davon zu bekommen. Diese Messungen werden nicht im einzelnen vorgestellt, sondern es werden nur die davon relevanten an passender Stelle zur Diskussion herangezogen. Mit einigen Messungen wurde der Einfluss des Untergrunds untersucht, siehe dazu den nachfolgenden Abschnitt 6.4.2. Festgestellte Unterschiede in den Spektren zwischen Simulation und Messung führten zu einer eigenen Messreihe, bei der der Einfluss der Messgeometrie auf das Spektrum untersucht wurde. In einer weiteren Messreihe wurde der Einfluss verschiedener Absorbermatrizen auf das Spektrum studiert. Des weiteren wurden viele Spektren als Referenzspektren aufgenommen, die der Rekonstruktion dienen und die Grundlage einer Datenbasis schaffen sollten, um diese mit den Simulationen zu vergleichen. An manchen der Messungen wurde auch eine Quantifizierung, sprich eine Bestimmung der Aktivitäten vorgenommen. Generell werden in diesem Kapitel die experimentellen Aufbauten beschrieben die verwendete wurden, um die Aufgabenstellung dieser Arbeit umsetzen zu können. Dazu wurden geeignete Strahler gewählt und zum Teil selbst hergestellt. Diese wurden an den unterschiedlichsten der RCM zur Verfügung stehenden  $\gamma$ -Messsystemen untersucht. Dabei wurden wichtige Einblicke in die Detektorantwort auf verschieden Geometrieinflüsse gewonnen. Darüber hinaus konnten durch verschiedene Absorbermatrizen geschwächte Spektren ineinander übergeführt werden.

### 6.4.2 Untergrund-Messungen

Ein wichtiger Aspekt bei der späteren qualitativen und quantitativen Auswertung der gemessenen Spektren ist die korrekte Berücksichtigung des bei der Messung vorherrschenden Untergrunds, d. h. der Beiträge im Spektrum, die auch ohne die Anwesenheit der eigentlichen Messprobe registriert werden. Diese Effekte versucht man durch geeignete Untergrundmessungen vor und nach der Probenmessung zu erfassen. Abb. 6.11 zeigt exemplarisch den Messaufbau für die Bestimmung des Untergrundbeitrags für den MGS-1, der aus dem Bereich hinter dem Detektor stammt.

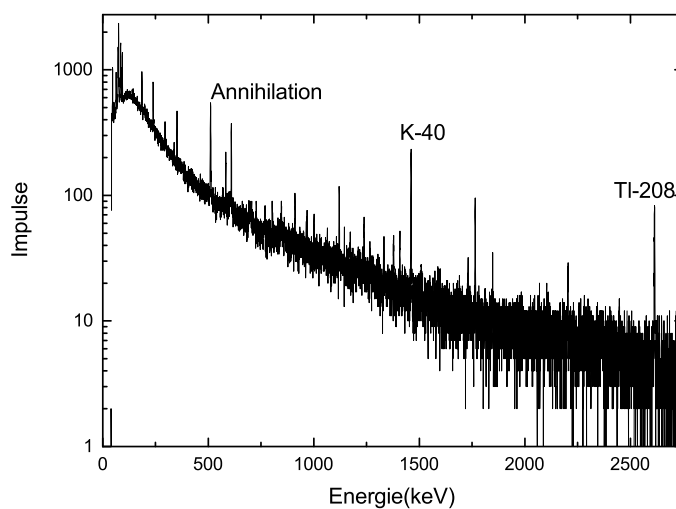
Hierfür wurde vor dem Blei-Kollimator eine 10 cm dicke Blei-Wand aufgebaut, die den von vorne auf den Detektor kommenden Strahlungsbeitrag abschirmt. Das Ergebnis der Messung für diesen Aufbau zeigt Abb. 6.12. Um den relativ schwachen Untergrundbeitrag gut zu erfassen, wurde eine extrem lange Messzeit von 60 Stunden gewählt. Nur dann sind die Beiträge der natürlichen Zerfallsreihen, die z. B. in den hinter dem Detektor befindlichen Betonwänden enthalten sind eindeutig anhand ihrer charakteristischen Linien zu identifizieren. Auf analoge Weise können weitere Untergrundbeiträge aus anderen Raumrichtungen bestimmt werden.

Bei der Messung großvolumiger Proben ist zu berücksichtigen, dass die Probenmatrix selbst bereits für eine Reduzierung des von vorne in den Detektor einfallenden Untergrundbeitrags sorgen



**Abbildung 6.11:** Foto des Messaufbaus für die Messung des Untergrundbeitrages mit dem MGS-1. Durch die Blei-Wand vor dem Kollimator wird in dieser Messung nur der Anteil, der den Detektor von hinten trifft, berücksichtigt.

kann. In diesem Fall sind bevorzugt Untergrundmessungen mit inaktiven Kalibrationsobjekten gleicher Zusammensetzung durchzuführen, die sich an derselben Position wie das spätere Messobjekt befinden. Da es sich aber oftmals um Objekte mit unbekanntem Inhalt handelt (z. B. 200 L Abfallgebinde aus kerntechnischen Einrichtungen), sind die vorab bestimmten Informationen aus der digitalen  $\gamma$ -Radiographie bzw. Tomographie dieser Objekte ein wichtiger Bestandteil bei RCM für die Auswahl eines geeigneten Kalibrationsobjekts.



**Abbildung 6.12:** Gemessenes Untergrundspektrum für die Messanordnung in Abb. 6.11. Die Messzeit betrug 60 Stunden. Einige charakteristische Linien sind exemplarisch beschriftet.

### 6.4.3 Untersuchung von Geometrie Effekten

#### Allgemeines

Zwei Geometrieinflüsse auf die Form der Spektren wurden untersucht. Einmal der Einfluss des Proben-Detektor-Abstands (PDA). Hier wurde die Proben entlang der Detektorachse in unterschiedlichen Abständen zum Detektor platziert und die dabei gewonnenen Spektren verglichen. Zum anderen wurde der Einfluss bei unterschiedlicher Exzentrizität untersucht. Dabei wurde die Probe bei gleichbleibenden PDA in unterschiedlichen Abständen zur Detektorachse vermessen. Dabei ist die Detektorachse gleichbedeutend mit der Symmetrieachse des Detektorkristalls. Durch die Auslenkung aus selbiger war es mit dem verwendeten EGSnrc Code nicht möglich, diese Messungen zu simulieren.

Die Messungen fanden am stationären HPGe-Messplatz und am mobilen  $\gamma$ -Scanner statt. Bei ersterem wurden generelle Beobachtungen zum Einfluss der Messgeometrie gemacht. Bei letzterem wurde der Spezialfall einer sich drehenden Probe untersucht.

Am mobilen HPGe-Messplatz wurden keine Geometrieeffekte untersucht, das hat zweierlei Gründe:

Erstens zeigte sich bei der Auswertung (vgl. Abschnitt 7.2.2) der Daten des stationären HPGe-Messplatzes, dass die gemachten Beobachtungen auf die Rückstreuung (Kapitel 2.3.2) zurückzuführen sind. Diese ist in der Abschirmung größer als bei dem frei im Raum platzierten mobilen HPGe-Messplatz. Daher ist der dabei zu beobachtende Effekte kleiner und durch die fehlende Abschirmung äußere störenden Einflüsse größer. Zweitens ist der erwähnte Spezialfall der sich drehenden Probe in der Praxis beim mobilen  $\gamma$ -Scanner die Regel und am mobilen HPGe-Messplatz eher die Ausnahme.

#### Stationärer HPGe-Messplatz

An  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$  (Punktquellen Amersham) wurde der Einfluss des Proben-Detektor-Abstands auf das  $\gamma$ -Spektrum untersucht. Dazu wurden die Spektren für die einzelnen Nuklide in der Bleiburg in unterschiedlichen Höhenpositionen gemessen.

**Tabelle 6.2:** Probe-Detektor-Abstand (PDA) der einzelnen Höhenpositionen im „Labor“-System.

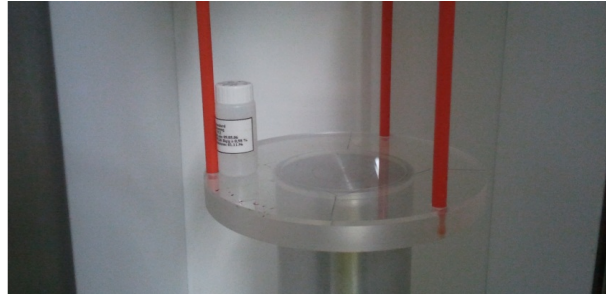
Höhenposition	H0	H1	H2	H3	H4	H5	H6
PDA [cm]	0,6	1	2	5	10	15	20

Im Text und in den Grafiken wird ein bestimmter PDA häufig durch ein großes H mit entsprechender Ziffer abgekürzt, z. B. steht H5 für eine PDA von 15 Zentimetern (vgl. Tabelle 6.2). Die Quelle befand sich auf der Symmetrieachse des Detektors.

Bei  $^{137}\text{Cs}$  wurde neben der Höhe auch der Abstand der Probe zur Detektorachse, also der Einfluss der Exzentrizität gegenüber der Symmetrieachse des Detektors gemessen. Dabei wurde auf dem Probenhalter das  $^{137}\text{Cs}$  in vier unterschiedlichen Abständen zur Detektorachse in den definierten Höhenpositionen gemessen.

Entsprechende Untersuchungen wurden ebenfalls an einem reinen  $\beta$ -Strahler ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ) durchgeführt. Hierfür wurde die  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Volumenquelle eingesetzt, Abbildung 6.13 zeigt den Versuchsaufbau mit maximaler Exzentrizität in der Höhenposition 0, d. h. bei minimalen PDA.

Zwei weitere Messungen untersuchten die Geometrieeffekte bei gleichzeitiger Messung von  $\beta$ -



**Abbildung 6.13:** Position des Vials, welches die  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Lösung enthält, für die Exzenter-Messung in der Höhenposition 0, entspricht einem PDA von ca. 6 mm, exakt 6,4 mm.

und  $\gamma$ -Strahler. Hierfür wurde eine Kombination der Strahler  $^{90}\text{Sr}$  (Standard-Lösung) und  $^{60}\text{Co}$  (Amersham-Punktquelle) in zwei Positionen gemessen (Abbildung 6.14).



**Abbildung 6.14:**  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{60}\text{Co}$ , einmal war das  $^{60}\text{Co}$  auf, das andere Mal unter dem  $^{90}\text{Sr}$ -Vials platziert.

### Mobiler Gamma-Scanner

Die im Kapitel 6.3 in Abbildung 6.9 und 6.10 gezeigte  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle und die  $^{60}\text{Co}$ -Stabquelle wurden am mobilen  $\gamma$ -Scanner in zwei unterschiedlichen Arten gemessen. Einmal wurde eine Punktmessung der einzelnen Quellen durchgeführt. Dabei wurden die Quellen jeweils im Zentrum des Drehtellers positioniert. Dies geschah in der Weise, dass die  $^{60}\text{Co}$ -Stabquelle senkrecht positioniert war, die  $^{90}\text{Sr}$  Quelle zeigte nach oben. Beide Quellen wurden auf einem kleinen Holzquader positioniert, um die Öffnung des 40 mm Kollimators einige cm zusätzlich über den Drehteller zu heben, um keine Abschirmung oder Streuung durch diesen zu erfahren. Die Höhe des Detektorsystems wurde jeweils so gewählt, dass das Zentrum der Quellen mit der Detektorachse bzw. Kollimatorachse zusammen fiel.

Die zweite Position der Quellen auf dem Drehteller war 27 cm entfernt von seinem Zentrum. Das entspricht in etwa der Position die eine Quelle direkt an der Innenseite der Fasswand einnehmen kann. Die Detektorhöhe und die Aufstellung der Quellen war ansonsten identisch. Statt Punktmessungen wurden Rotationsscans durchgeführt. Ein Rotationsscan mit der Quelle im Zentrum

des Drehtellers würde keine Veränderung im Spektrum im Vergleich zur Punktmessung zeigen, daher wurde bei den entsprechenden Messungen darauf verzichtet. Hier sollte jedoch der reale Zustand einer Messung nachgeahmt werden. Es wurde die maximale in einem 200 L Fass mögliche Exzentrizität untersucht, da davon auszugehen ist, dass hierbei die Auswirkung auf die Form des Spektrums am größten ist.

#### 6.4.4 Einfluss von Absorbern auf das Gamma-Spektrum

##### Allgemeines

Eine Voraussetzung für die Durchführbarkeit der Bestimmung von  $\beta$ -Strahlern über ihren Bremsstrahlungsbeitrag in gemessenen  $\gamma$ -Spektren, ist eine ausreichend genaue Korrektur der in der Praxis immer vorhandenen Schwächungseinflüsse. Die Durchführbarkeit einer derartigen Korrektur wurde u. a. am Beispiel der  $\beta$ -Strahler  $^{170}\text{Tm}$  und  $^{99}\text{Tc}$  überprüft.

##### Stationärer HPGe-Messplatz

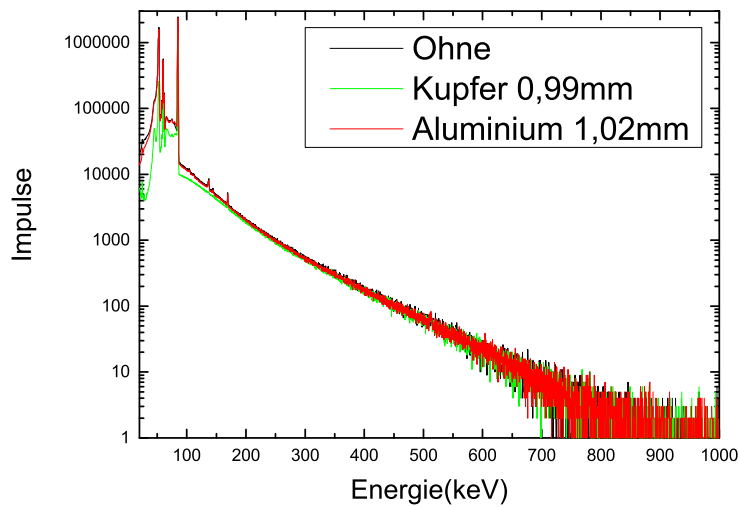
Eine Messreihe fand mit  $^{99}\text{Tc}$  statt. Auf Grund ihrer geringen Aktivität wurden die Quellen direkt auf der Detektor-Endkappe positioniert. Somit sollte die größtmögliche Ausbeute der Zählrate erhalten werden. Die verwendeten Absorber waren Kupfer und Aluminium, jeweils als scheibenförmige Platten. Zwei Kupfer-Platten mit der Stärke 0,993 und 2,993 mm sowie eine Aluminium-Platte mit 1,02 mm Dicke als Absorber zwischen Quelle und Detektor wurden einzeln gemessen. In einer weiteren Messung (Abbildung 6.15) wurde das dünnere Kupferstück zusammen mit der Aluminiumscheibe als Absorber verwendet.



**Abbildung 6.15:** Das Glasfläschchen mit der  $^{99}\text{Tc}$ -Lösung auf der Detektor-Endkappe stehend. Zwischen Endkappe und Fläschchen sind die Aluminium- und die Kupferplatte platziert.

Die pulverförmige  $^{170}\text{Tm}$ -Quelle wurde ebenfalls untersucht. Die Messanordnung ist analog zu der in Abbildung 6.1. In dieser Position wurde zusätzlich eine Messung mit der dünnen Kupferscheibe und der Aluminiumscheibe unternommen. Abbildung 6.16 zeigt die original aufgenommenen Spektren.

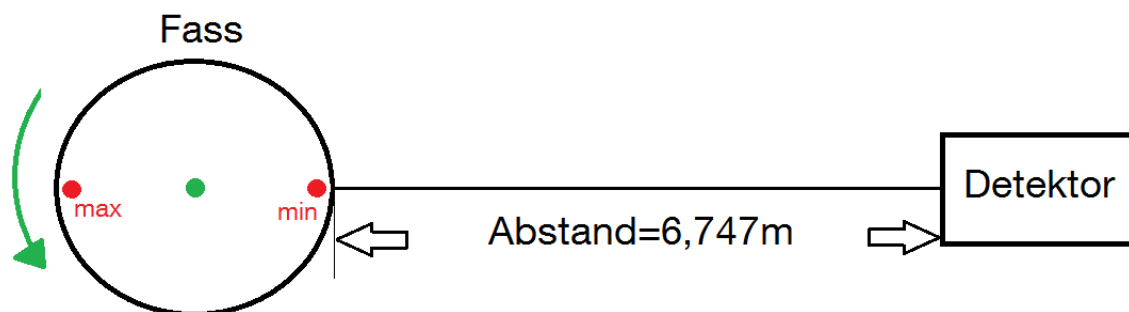
Der  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  Versuchsaufbau ist analog zu den oben beschriebenen des  $^{99}\text{Tc}$  und des  $^{170}\text{Tm}$ . Der PDA betrug 2 cm. Zu den bekannten Absorbern kam eine 5,04 mm dicke Alu-Platte, sowie ein 0,5 mm starkes V2A-Blech hinzu.



**Abbildung 6.16:**  $^{170}\text{Tm}$  Spektren ohne und mit den beiden dünnen Absorberblechen aus Aluminium und Kupfer.

### Mobiler HPGe-Messplatz

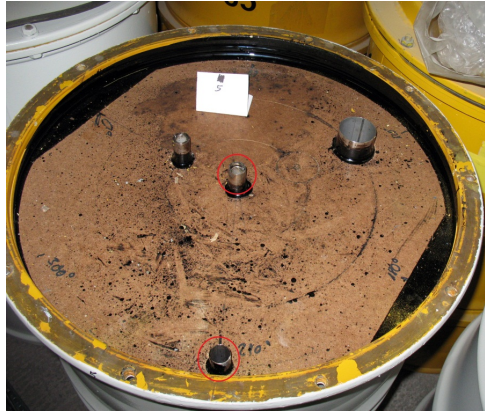
Ein mit Bitumen sowie ein mit Beton befülltes Kalibrationsfass wurden mit einer der  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquellen gemessen. Die Draufsicht der Versuchsanordnung ist schematisch in Abbildung 6.17 gezeigt, der PDA betrug 6,747 Meter. Als Detektor kam der Falcon 5000 ohne Kollimator, in offener Geometrie zum Einsatz. Die Fässer wurden auf dem mobilen Drehteller positioniert. Die Höhe des Detektors wurde auf die mittlere Fasshöhe justiert.



**Abbildung 6.17:** Der schematische Messaufbau von oben gesehen. Rot gibt die beiden Positionen der statischen Messungen am Bitumen Fass an. Grün markiert ist der Drehsinn der Rotationsscans. Ebenfalls in Grün ist die zentrale Messposition eingezeichnet.

Als Dichte wurde für Bitumen  $1 \text{ g/cm}^3$  und für Beton  $2 \text{ g/cm}^3$  angenommen. Genaues Vermessen und Wiegen der Fässer könnte leicht abweichende Werte bringen, ist auf Grund der Bohrungen und Öffnungen in den Fässern aber sehr aufwendig. Die beiden Kalibrationsfässer sind homogen befüllt, was bei realen Fässern nicht immer der Fall ist. Jedoch wird nach aktuellem Stand der Auswertung bei der Bestimmung der Aktivität von einer homogenen Befüllung ausgegangen. Dies liefert bei der praktischen Anwendung einen größeren Fehler als die hier vorliegende Abschätzung. Für die Korrektur der Abschwächung wurden als Absorberdicken 28 cm (halber Innendurchmesser, Quelle zentriert) für das Beton-Fass und 56 cm (maximaler Abstand der Quelle) für das Bitumen-Fass verwendet (vgl. Abschnitt 7.3.3).

Am bituminierten Fass wurden vier Messungen durchgeführt. Zwei Rotationsscans, einer mit der Quelle im Zentrum, der andere mit der Quelle am Rand positioniert (Abbildung 6.18). Zusätzlich zu den Rotationsscans wurden mit der Quelle in der äußeren Position zwei statische Messungen (d. h. ohne Rotation) vollzogen. Dabei wurden der maximale und der minimale Quellen-Detektor-Abstand verwendet (vgl. rote Marker in Abb. 6.17).



**Abbildung 6.18:** Das geöffnete Bitumen Fass. Mit roten Kreisen sind die beiden Messpositionen markiert.

Das mit Beton gefüllte Fass, welches in der Mitte ein Bohrloch mit großem Durchmesser enthält, auf dessen Boden die Probe positioniert war, wurde zweimal in Rotation gescannt. Diese beiden Scheibenscans unterscheiden sich dadurch, dass bei einer der Messungen eine Blei-Platte zur Abschirmung nach oben auf das Bohrloch gelegt wurde, während beim anderen auf selbige verzichtet wurde. Abbildung 6.19 zeigt einen Blick in das Fass mit innen liegender Quelle, sowie das mit der Bleiplatte verschlossene Fass.



**Abbildung 6.19:** Betonfass mit Bohrloch. Links: Am unteren Ende der blauen Schnur ist die  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquelle befestigt. Rechts: Bleiplatte als Deckel für das Bohrloch.

Tabelle 6.3 zeigt eine Zusammenfassung der durchgeführten Messreihe und die dabei registrierten Totzeiten.

Betrachtet man die Totzeiten aus Tabelle 6.3, sieht man, dass diese teils deutlich über den als akzeptabel zu bezeichnenden Werten liegt. Daher werden nur die beiden Messungen im Beton-Fass und die Messung mit maximalem Quellen-Detektor-Abstand des Bitumen-Fass ausgewertet. Die Spektren der anderen Messungen zeigten deutliche Totzeiteffekte und wurden deshalb nicht zur Auswertung herangezogen.



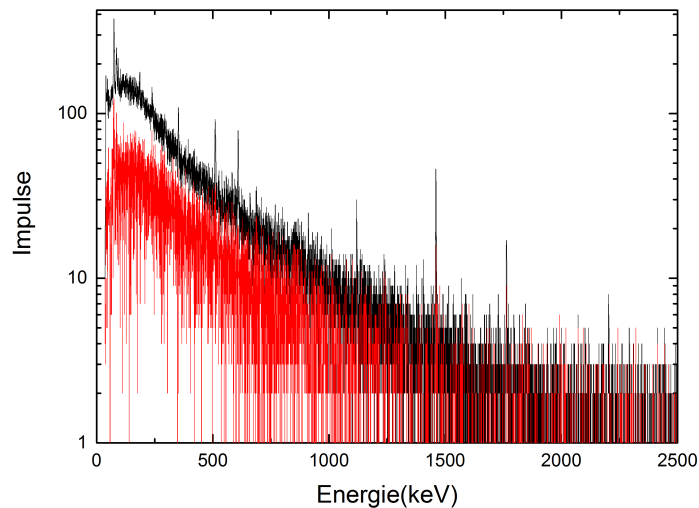
**Tabelle 6.3:** Überblick der einzelnen Messungen und ihrer mittleren Totzeiten.

Bezeichnung der Messung	Mittlere Totzeit [%]
Beton offen	8,59
Beton mit Bleideckel	7,89
Bitumen maximaler Abstand	17,54
Bitumen minimaler Abstand	96,42
Bitumen Rotation zentriert	39,03
Bitumen Rotation exzentrisch	63,26

## 6.5 Messungen an 200 L Gebinden am mobilen Gamma-Scanner

Es wurden Messungen mit den beiden Kalibrationsfässern gefüllt mit Beton und Bitumen durchgeführt. Als Quellen wurden die  $^{60}\text{Co}$ -Stabquellen und die  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationspunktquellen eingesetzt. Andere  $\beta$ -Strahler standen hier zur Verfügung, da in der Halle in welcher sich der mobile  $\gamma$ -Scanner befindet nur mit geschlossenen Strahlern gearbeitet werden darf. Diese Anforderung erfüllt keine der sonst verfügbaren  $\beta$ -Quellen.

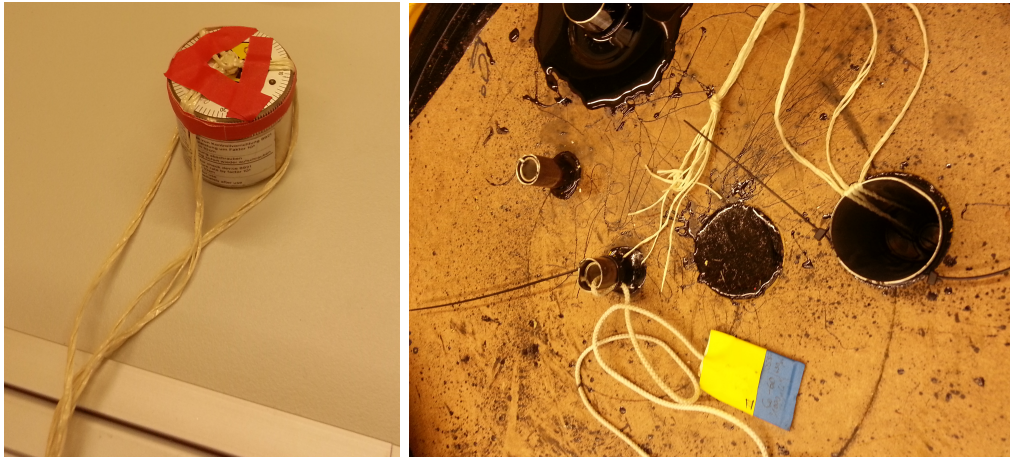
Das gezeigte Resultat in Abbildung 6.20 ist das Ergebnis eines „konventionellen“  $\gamma$ -Scans des Betonfasses, in dessen Bohrloch (analog zu Abbildung 6.19) die beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquellen im  $180^\circ$  Winkel zueinander positioniert waren, d. h. beide Strahler zeigten von der Fassmitte aus senkrecht auf die Fasswand. Auf Grund der starken Abschirmung des Betons und der relativ geringer Aktivität der Quellen ( $2 \times 1,45 \cdot 10^7$  Bq) ist die Zählrate des Summenspektrums relativ gering. Dies zeigt auch der Vergleich mit einer Untergrundmessung des unbefüllten Fasses, welche zusätzlich in Abbildung 6.20 dargestellt ist.



**Abbildung 6.20:** Summenspektren des  $^{90}\text{Sr}$  (schwarz) und des Untergrunds (rot) gemessen mit dem mit Beton gefüllten Kalibrationsfass.

Bei einer weiteren Messung am MGS-1 wurden in das mit Bitumen gefüllte Fass die beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquellen sowie eine  $^{60}\text{Co}$ -Stabquellen eingebracht. Bei der hier gezeigten Messung war das  $^{60}\text{Co}$  ( $2,55 \cdot 10^{10}$  Bq Stand 1986) in dem zentralen Rohr bis auf den Boden abgelassen. Die beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Quellen wurden in das große exzentrische Rohr eingebracht (Abbildung 6.21 rechte Seite). Dabei wurde diese so positioniert, dass die Strahler zueinander zeigen und einen Abstand von 1 cm haben. Die  $^{90}\text{Sr}$ -Quellen befanden sich dabei an drei Fäden aufgehängt (Abbildung

6.21 linke Seite) frei schwebend im Rohr, so dass die Kante der oberen Quelle 2 cm unterhalb der Füllgrenze des Fasses lag.



**Abbildung 6.21:** Links ist die  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle mit den angebrachten Schnüren als Halterung zu sehen. Rechts ist diese in das Fass eingebracht. Aus dem zentralen Bohrloch führt die Schnur der  $^{60}\text{Co}$ -Stabquelle heraus.

Diese Messung wurde mit nur einer nach oben zeigenden  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle wiederholt. Bei einer weiteren Messung wurde ebenfalls nur eine  $^{90}\text{Sr}$ -Quelle verwendet. Diese war wie das  $^{60}\text{Co}$  auf halber Fasshöhe, jedoch etwas oberhalb des  $^{60}\text{Co}$  positioniert. Dabei war das  $^{60}\text{Co}$  wieder im zentralen Rohr positioniert, das  $^{90}\text{Sr}$  im exzentrischen. In einer weiteren Messung wurde nur die  $^{60}\text{Co}$ -Stabquelle auf halber Fasshöhe eingesetzt.

# Kapitel 7

## Auswertung und Diskussion

### 7.1 Allgemeines

In diesem Kapitel werden die beschriebenen Arbeiten ausgewertet und diskutiert und das Auswerteverfahren getestet.

Den Anfang machen die Ergebnisse der Untersuchung der Geometrieeffekte. Es wird ausgearbeitet welcher Unterschied zwischen  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlern besteht und wie deren Einflussnahme auf das Spektrum, bei der Rekonstruktion, begegnet werden kann.

Der nächste Punkt ist eine Analyse der Schwächungseinflüsse und eine Korrektur eben dieser, von den schwachen Kalibrationspunktquellen bis hin zu starken Quellen in realen Abfallgebinden. Die dabei verwendeten Absorber umfassen reine Elemente sowie komplexe Verbundmaterialien, wie Beton und Bitumen.

Zwei Möglichkeiten der Simulation von Quellen, die aus mehreren  $\gamma$ -strahlenden Nukliden bestehen, werden vorgestellt und die jeweiligen Vorteile ausgearbeitet. Es folgt ein Vergleich von simulierten und gemessenen Spektren. Die dabei auftretenden Unterschiede werden diskutiert und Strategien für Alternativen aufgezeigt.

Ein weiterer Abschnitt stellt kurz zwei mögliche Arten der Beschreibung von, durch  $\beta$ -Strahler verursachte, Bremsstrahlungsspektren vor und gibt einen Ausblick, wie diese statt Referenzspektren bei der Identifikation nutzbar sind.

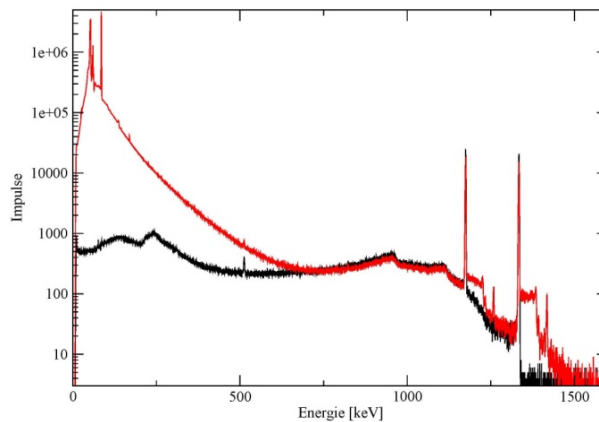
Im Anschluss daran findet ein ausführlicher Test des sechs-stufigen Auswerteverfahrens, anhand von Messungen am stationären HPGe-Messplatz, statt. Es werden zwei unterschiedliche Verfahren getestet. Bei einem wird die Rückstreuung mit einem eigenen Referenzspektrum, anhand der Ergebnisse aus Abschnitt 7.2 korrigiert, beim anderen wird dies ignoriert. Dies geschieht mit je zwei Cut-Off Energien. Die Trefferquote bei der Erkennung des Vorhandenseins von  $\beta$ -Strahlern wird getestet und eine Übersicht erstellt welches Nuklid dabei identifiziert wurde.

Der nächste Punkt betrifft die Quantifizierung, also die Aktivitätsbestimmung, der identifizierten Proben. Diese ist ein wichtiger Punkt bei der praktischen Anwendung des Auswerteverfahrens.

Abschließend wird mit einer Untersuchung der Ortsverteilungen des mobilen  $\gamma$ -Scanner diskutiert ob diese zum Auffinden von  $\beta$ -Strahlern in Fassmessungen genutzt werden können.

Eine kurze Vorbemerkung zu den durchgeführten Messungen bleibt noch zu machen. In Kapitel 2.3.1 sind verschiedene Effekte beschrieben, die im einem  $\gamma$ -Spektrum enthalten sein können.

Dazu gehören unter anderem alle Arten von Escape-Peaks. Keiner der dort beschriebenen Effekte wurde bei den durchgeführten Messungen beobachtet. In einer einzigen Messung wurde ein Summationseffekt beobachtet, bei dem Peak plus Bremsstrahlung in Summe aufgetreten ist, wie in Abbildung 7.1 dargestellt.



**Abbildung 7.1:** Summationseffekt an den Peaks des  $^{60}\text{Co}$  zeigt sich angelagert die Bremsstrahlung von  $^{170}\text{Tm}$ , rote Kurve. In schwarz ist die Messungen nur von  $^{60}\text{Co}$  gezeigt.

## 7.2 Geometrie-Effekte

### 7.2.1 Allgemeines

Die Fragen die, durch die in Abschnitt 6.4.3 beschriebene Messungen beantwortet werden sollten, sind:

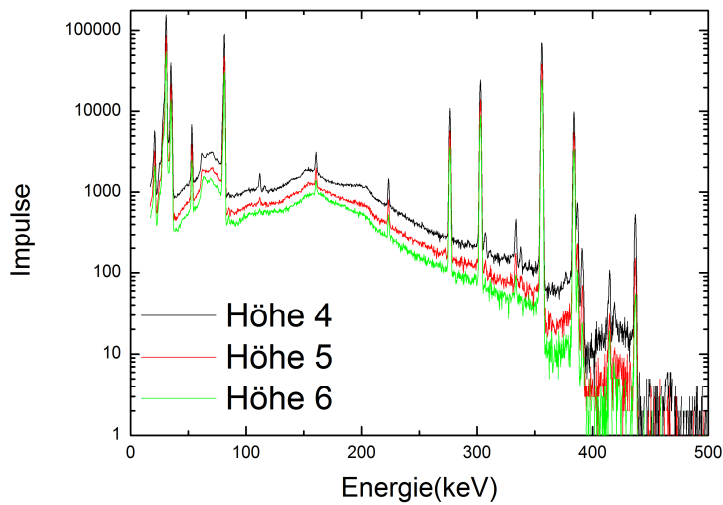
- Welche Auswirkungen auf das Spektrum hat die Messgeometrie bei einem  $\gamma$ -Strahler?
- Zeigt sich eine analoge Beobachtung bei gleicher Variation der Geometrie-Einflüsse auch bei  $\beta$ -Strahlern?

Im folgenden wird kurz das generelle Vorgehen anhand der Messungen des  $^{133}\text{Ba}$  am stationären HPGe-Messplatz beschrieben. Dieses Vorgehen ist sowohl bei den Messungen mit PDA Variation als auch mit Variation der Exzentrizität an beiden Messsystemen gleich.

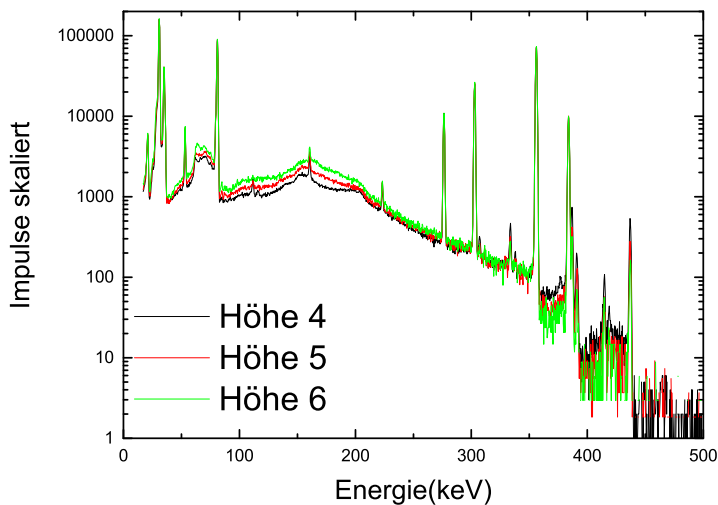
Die  $^{133}\text{Ba}$ -Punktquelle wurde in drei unterschiedlichen Höhenpositionen mit identischer Messzeit (Livetime) gemessen. Stellt man diese Kurven in einem gemeinsamen Diagramm dar, erwartet man, dass ein größerer Abstand eine geringere Zählrate bedeutet, d. h. die Netto-Peakflächen werden kleiner. Dieses Ergebnis zeigt sich in Abbildung 7.2.

Skaliert man (hier mit Hilfe des Peaks bei 383,8 keV) die Messungen so, dass ihre Peakflächen übereinstimmen und stellt sie in einer gemeinsamen Grafik (vgl. Abbildung 7.3) dar, sieht man, dass der Untergrund relativ zu den Peaks bei größerem Proben Detektor-Abstand zunimmt. Generell wurde für die Normierung bei den  $\gamma$ -Nukliden, auf Grund der Zählrate und -statistik, immer die Peakfläche des Peaks mit der höchsten Übergangswahrscheinlichkeit verwendet.

Um die Unterschiede im „Untergrund“, d. h. im Bereich zwischen den charakteristischen Peaks der  $\gamma$ -Strahler dieser Messungen zu sehen, zieht man nun die normierten Spektren voneinander ab und erhält die in Abbildung 7.4 gezeigten Differenzspektren.

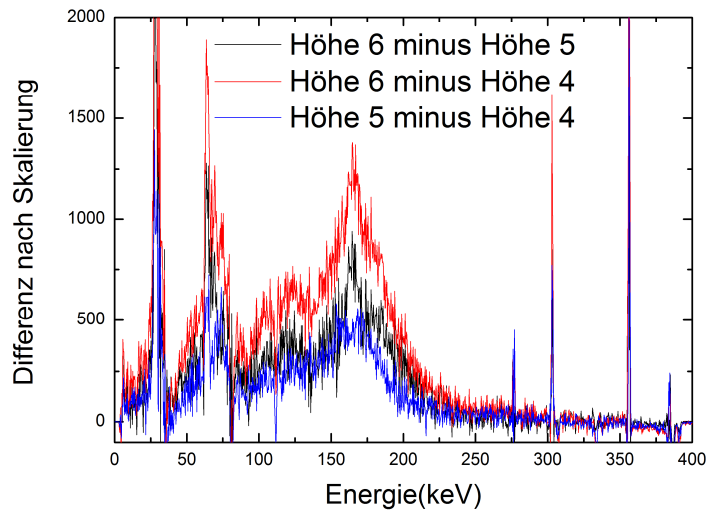


**Abbildung 7.2:** Gegenüberstellung von Messungen des  $^{133}\text{Ba}$  mit drei unterschiedlichen Probe-Detektor-Abständen.



**Abbildung 7.3:** Gegenüberstellung der  $^{133}\text{Ba}$  mit unterschiedlichen Probe-Detektor-Abständen, skaliert auf die Peakfläche des 383,8 keV Peaks der Messung mit dem geringsten Abstand.

Bei der Bildung der Differenzspektren wurde jeweils das Spektrum mit der niedrigeren Zählrate im Untergrund von dem mit höherer Zählrate abgezogen. Diese Reihenfolge wurde gewählt, damit keine negativen Zählraten entstehen. In allen Fällen stieg bei den normierten Spektren die Zählrate im Untergrund mit größer werdendem PDA. Dies ist darauf zurück zu führen, dass bei größerem Abstand die Intensität der Linien abnimmt, während der Anteil der gestreuten Teilchen die den Detektor erreichen, auf Grund der Bleiburg, sich nicht merklich ändert. Analog erfolgte die Bildung der Differenzspektren bei der Auslenkung aus der Detektorachse. Auch hier stieg bei den normierten Spektren mit zunehmender Exzentrizität die Zählrate im Untergrund im Vergleich zu den Peakflächen. Bei einem Test des Auswerteverfahrens (Abschnitt 7.6) wurden solche Differenzspektren als zusätzliche Fitparameter zu den Referenzspektrum des  $^{133}\text{Ba}$  in die



**Abbildung 7.4:** Differenzspektrern der unterschiedlichen Höhenpositionen des  $^{133}\text{Ba}$ , mit deutlichen Rückstreupeaks. An den tatsächlichen Peaklagen der Gamma-Linien treten Artefakte auf die aus der Subtraktion stammen.

Routine übergeben.

Anzumerken ist, dass bei dem kontinuierlichen Spektrum eines reinen  $\beta$ -Strahlers keine einem Peak oder einer Peakfläche vergleichbaren Anhaltspunkt gibt, um die unterschiedlichen gemessenen Spektren einander anzupassen und dadurch die Diskrepanzen, analog zu oben, herauszuarbeiten. Daher sind hier quantitative Aussagen schwierig zu treffen und die Ergebnisse können nur schwer mit dem der  $\gamma$ -Strahler verglichen werden. Bei dem zu untersuchenden Photonen-Spektrum handelt es sich um ein Spektrum, welches durch ein kontinuierliches Elektronen-Spektrum erzeugt wird. Dies wird im Kapitel 7.5.2 über die  $S(k)$ -Berechnung veranschaulicht. Charakteristische Kenngrößen des zugrundeliegenden  $\beta$ -(Elektronen)-Spektrums sind die Endpunktsenergie ( $E_0$ ), Energie des Maximums ( $E_{modal}$ ),  $E_{rms}$  und die mittlere Energie ( $E_{avg}$ ). Die Wahl einer geeigneten Größe für die Anpassung der Spektren zueinander fiel auf die mittlere Energie  $E_{avg}$  des Elektronen-Spektrums. Die Werte für  $E_{avg}$  sind zusätzlich zu den Endpunktsenergien  $E_0$  in entsprechenden Datenbanken wie LUND [49] oder NNDC [55] verfügbar.

Die Endpunktsenergie  $E_0$  ist, obwohl sie, wie schon Evans [31] zeigte, im Elektronen- und Photonen-Spektrum identisch ist, ungeeignet. Dies wird am Beispiel bei  $^{90}\text{Y}$  deutlich, dessen  $E_0$  bei 2280 keV liegt. Die Endpunktsenergie kann aus einem gemessenen Spektrum nicht bestimmt werden, wie man später an den Untergrund-korrigierten Messungen sehen kann.  $E_0$  zu bestimmen, ist eine Möglichkeit der Identifikation, die mittels Kurie-Plot geschehen könnte.

Dass die Endpunktsenergie nicht gemessen werden konnte, liegt unter realen Messbedingungen zumeist an der Messzeit: Veranschaulicht wird das in Abbildung 7.34 an Messungen mit den  $^{170}\text{Tm}$ -Quellen. Das Anwachsen des Spektrums muss man als Parallelverschiebung entlang der Impulsachse, bei logarithmischer Skala, hin zu positiver Zählrate sehen, d. h. wächst aus der Energieachse heraus, dabei verschiebt sich die maximal gemessene Energie mit Erhöhung der Messzeit immer weiter Richtung  $E_0$ . Umso flacher dabei das Spektrum hin zu  $E_0$  verläuft desto mehr Messzeit (relativ zur Aktivität) muss man aufbringen, um das vollständige Spektrum bis hin zu  $E_0$  zu messen.

Nachfolgend wird die mittlere Energie  $E_{avg}$  des  $^{90}\text{Sr}$  verwendet. Ihr wurde auf Grund der Zählraten der Vorzug gegenüber der  $^{90}\text{Y}$   $E_{avg}$  gegeben. [49] gibt diese mit 196,4 keV und [55] mit 195,8 an, obwohl beide auf [56] referenzieren. Es wurde  $E_{avg} = 195,8$  keV verwendet.

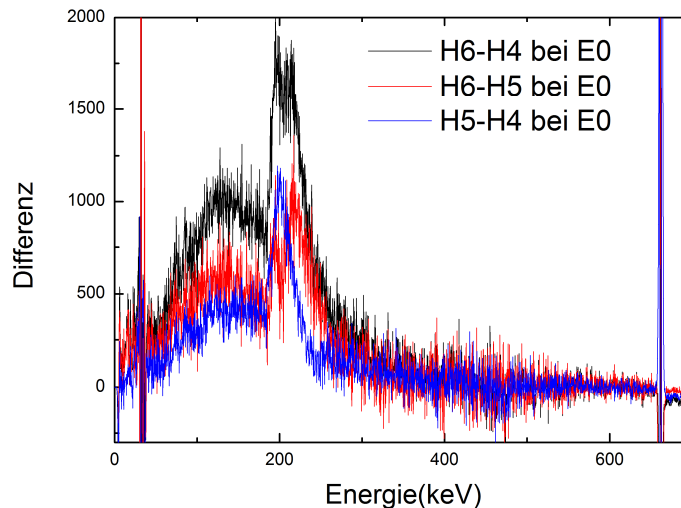
## 7.2.2 Stationärer HPGe-Messplatz

Im vorangegangenen Abschnitt wurden in Abbildung 7.4 die Differenzspektren des  $^{133}\text{Ba}$  für Variationen des PDA gezeigt. Die Energiebereiche mit der größten Differenz in den Zählraten lassen sich durch Rückstreuereffekte (Formel 2.32) erklären. Die Lage der beobachteten Rückstreupeaks für die entsprechenden Linien des  $^{133}\text{Ba}$  zeigt Tabelle 7.1.

**Tabelle 7.1:** Lage der Peaks (mit ihren Übergangswahrscheinlichkeiten ÜW) und der dazugehörigen Rückstreupeaks bei  $^{133}\text{Ba}$ .

Peak [keV]	ÜW [%]	Rückstreupeak [keV]
80,9	32,9	61,5
356,01	62,1	148,75
383,85	8,9	153,40

Analog wurden die Messungen mit  $^{137}\text{Cs}$  ausgewertet. Auch bei diesem Nuklid zeigt sich bei zunehmender Höhe relativ zum Peak mehr Untergrund (vgl. Abbildung 7.5) bzw. Streustrahlung. Die maximale Differenz der Spektren liegt um 185 keV, der Lage des zur 661 keV Linie passenden Rückstreupeaks.

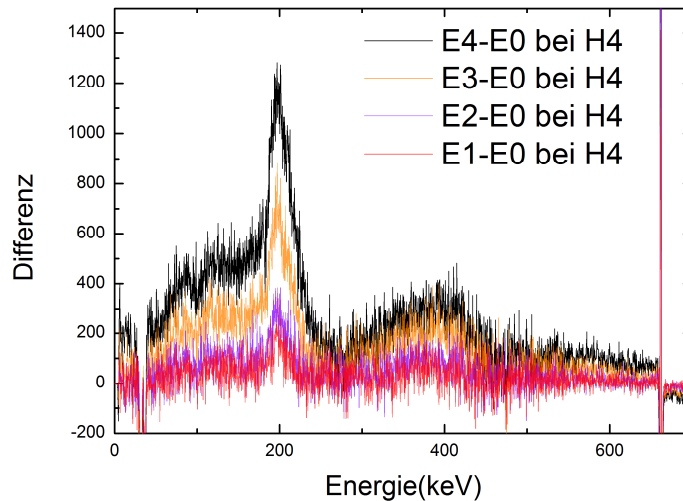


**Abbildung 7.5:** Unterschied in der Impulszahl bei verschiedenen Höhenpositionen des  $^{137}\text{Cs}$ . Zur Bildung der gezeigten Relativspektren wurden bei den ursprünglichen Messungen die Peakflächen des 661 keV Peaks aneinander angepasst.

Auffallend ist sowohl bei  $^{133}\text{Ba}$  als auch bei  $^{137}\text{Cs}$ , dass die tatsächliche Lage des Rückstreupeaks im Vergleich zur seiner berechneten Lage leicht zu höheren Energien verschoben ist. Das bedeutet, dass ein großer Teil der Photonen die Rückstreuung erfahren unter Winkeln keiner als  $180^\circ$  gestreut wird. Beim  $^{137}\text{Cs}$  liegt das Maximum des tatsächlich beobachteten Peaks bei ca. 200 keV (anstatt bei 185 keV für  $180^\circ$ ). Das entspricht einem Rückstreuwinkel von ca.  $140^\circ$ . Beim

$^{137}\text{Cs}$  zeigt sich auch eine Differenz im Energiebereich unterhalb des Rückstreupeaks, diese ist auf mehrfache Streuung der Photonen zurückzuführen.

Im Nachfolgenden wurden bei gleichbleibender Höhe die Exzentrizität der  $^{137}\text{Cs}$  Probe, d. h. ihre Auslenkung aus der Symmetrieachse des Detektors variiert. Bei unterschiedlicher Exzentrizität zeigt sich bei den Differenzspektren ein ähnliches Bild, wie bei obigen Differenzspektren der unterschiedlichen Höhenpositionen (vgl. Abbildung 7.6).



**Abbildung 7.6:** Differenzspektren von  $^{137}\text{Cs}$  Messungen. Die gezeigten Spektren wurden alle in der gleichen Höhenposition (H4) gemessen und sind Relativspektren zur Messung ohne Exzentrizität (E0).

Auffällig ist, dass hier ein zusätzlicher Beitrag zwischen 300 und 450 keV auftritt. Dieser ist auf eine veränderte Compton-Streuung zurück zu führen, da er nicht über die Lage der Compton-Kante bei 477 keV hinaus reicht.

Exemplarisch ist in Abbildung 7.6 nur eine Höhe dargestellt, jedoch wurde die Auslenkung der Probe in mehreren Höhenpositionen untersucht. Je höher die Probe positioniert war, desto geringer wurde der Effekt der Exzentrizität, da sich die gleiche Exzenterposition unter einem kleinerem Winkel zur Detektorachse zeigt.

Die Ergebnisse der Messungen mit dem reinen  $\beta$ -Strahler ( $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ ) sollen im Folgenden diskutiert werden.

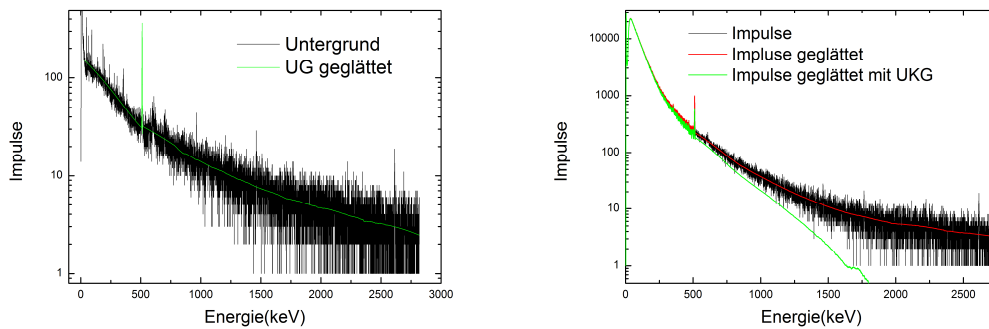
Um eine Untergrund-Korrektur durchzuführen, wurde ein Untergrundspektrum mit 18 Stunden Live-Time aufgenommen. Da dieser starkes statistisches Rauschen aufweist, wurde mit Origin 8.5 eine Glättung durchgeführt. Diese wurde bei den Spektren der  $\gamma$ -Nuklide nicht durchgeführt. Dafür wurden die Originaldaten in drei Teilbereiche zerlegt und zusätzlich beschnitten.

Aufgrund von Artefakten in der Messung wurden alle Impulse der Kanäle 1-74 verworfen, dies liegt daran, dass der Detektor erst ab circa 20 keV Ereignisse registrieren kann. Die Messdaten zwischen 25,7 keV und 506 keV sowie ab 516 keV werden in Origin mittels Savitzky-Golay-Methode mit 1500 Punkten geglättet. Der Bereich um den Annihilationspeak wurde unverändert übernommen.

Für die Untergrundkorrektur erfolgte die Anpassung zwischen Untergrund- und Messspektrum anhand der Live-Time. Eine Gegenüberstellung zwischen Untergrundmessung und geglättetem

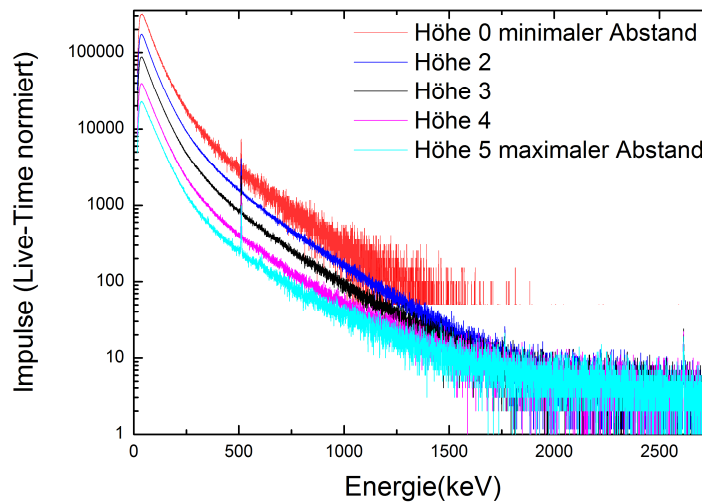


Spektrum zeigt die linke Seite der Abbildung 7.7. Auf der rechten Seite ist von einer Messung das Originalspektrum, das geglättete und das UG-korrigierte Spektrum zu sehen.



**Abbildung 7.7:** Links: Das Untergrundspektrum in Schwarz als Originalmessung und in Grün die geglättete Version. Rechts: Vergleich der Messung mit 20 cm Proben-Detektor-Abstand mit und ohne Glättung sowie mit Untergrund-Korrektur.

In Abbildung 7.8 sind analog zu Abbildung 7.2, die Messungen für die unterschiedlichen Höhenpositionen der Quellen dargestellt.

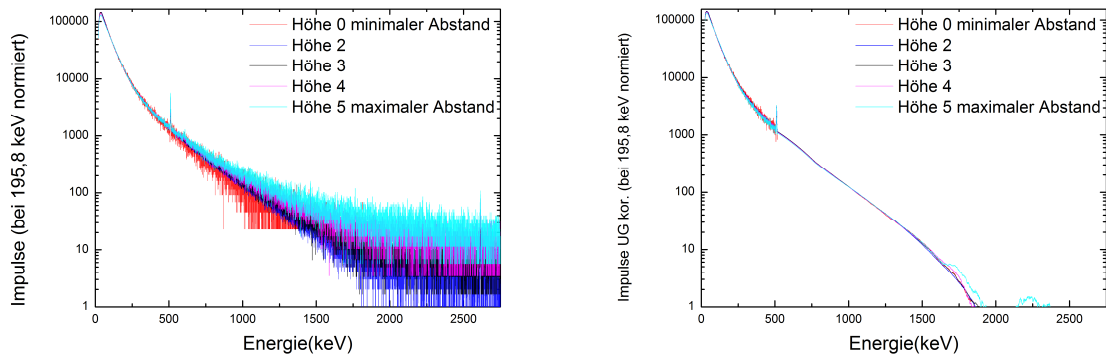


**Abbildung 7.8:**  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Messungen in fünf unterschiedlichen Höhenpositionen.

Bei den Messdaten des  $^{90}\text{Sr}$  zeigt sich je nach Messzeit zumindest im hochenergetischen Ende des Spektrums ebenfalls zum Teil deutliches Rauschen. Daher wurde bei ihnen ab dem Anihilationspeak auch eine Glättung, analog der des Untergrunds durchgeführt. Die Darstellung der Ergebnisse in den Graphen wird dadurch klarer.

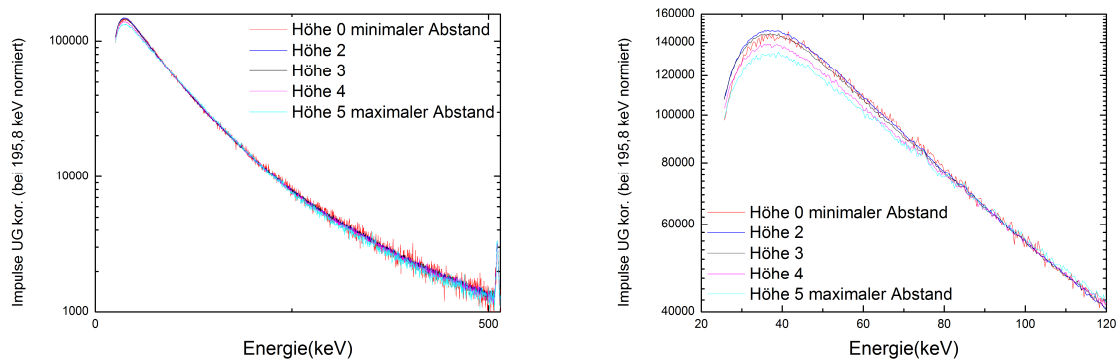
Je geringer der Proben-Detektor-Abstand war, desto mehr Teilchen wurden bei gleicher Messzeit (bzw. nach Messzeitkorrektur) im Detektor registriert. Abbildung 7.9 zeigt die Messungen aus Abbildung 7.8 auf die mittlere Energie  $E_{avg}$  des  $^{90}\text{Sr}$  normiert.

Vergleicht man den linken mit dem rechten Graphen aus Abbildung 7.9 zeigt sich, dass hier die Glättung und Untergrundkorrektur der Spektren erheblich die Darstellung verbessern und den Vergleich vereinfachen.



**Abbildung 7.9:** Untersuchung des Einflusses unterschiedlicher Probe-Detektor-Abstände auf das  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ -Spektrum. Die Kurven wurden anhand ihrer Mittelwerte über die drei der  $E_{avg} (^{90}\text{Sr})$  am nächsten liegenden Energiekanäle angeglichen. Links die Spektren ohne und rechts mit Untergrund-Korrektur.

Die Verlauf der Spektren ist über fast den gesamten Energiebereich der selbe (Abbildung 7.9 rechts). Unterschiede zeigen sich jedoch in dem Bereich unter 80 keV, vergleiche Abbildung 7.10.



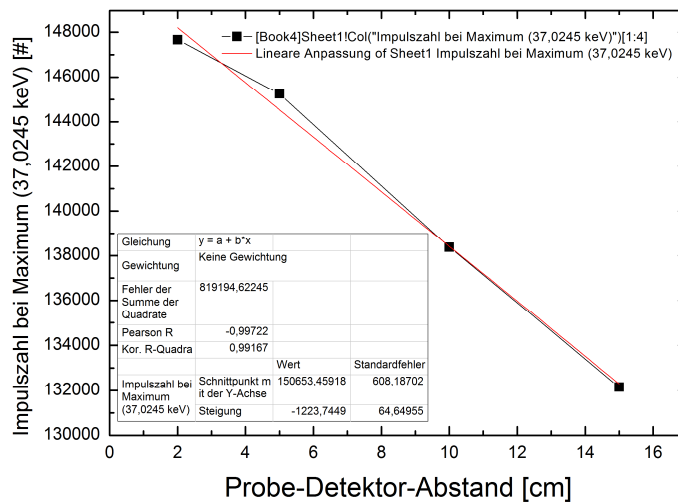
**Abbildung 7.10:** Vergrößerter Ausschnitt der Spektren aus Abbildung 7.9. Links der Energiebereich von 0-515 keV, rechts der Bereich von 20-120 keV.

Bei der geplanten Auswertung wird eine Cut-Off Energie zur Anwendung kommen, die der fehlenden Auswertung der Röntgenlinien geschuldet ist. Daher macht die hier beobachtet Abweichung bei einer späteren Auswertung der Daten keine Probleme. In diesem Energiebereich ist, je kleiner der Proben-Detektor-Abstand ist, die relative Zählrate größer. Dies entspricht dem Verhalten, welches generell über den gesamten Energiebereich ausgemacht wurde, nur ist hier der Zuwachs größer<sup>1</sup>.

Einzigste Ausnahme ist hier die Messung in Höhenposition 0, diese hatte nur 1/50 Messzeit der anderen Messungen. Hier beruht der Effekt wohl auf der Zählstatistik. Schließt man das Resultat von Höhe 0 auf Grund des Rauschens aus, zeigt sich für die übrigen Messungen, dass die Impulszahl indirekt proportional zum Probe-Detektor-Abstand zunimmt (vgl. Abbildung 7.11 und Tabelle 7.2). Das Maximum der Kurve liegt bei allen fünf (bzw. vier) Höhenpositionen um 37 keV.

Das beobachtet Verhalten könnte man als eine Art Dämpfung bezeichnen. Setzt man die Impulsrate gleich der Intensität der radioaktiven Quelle, müsste das  $1/r^2$ -Gesetz gelten. Dessen Anwendung erklärt das Beobachtete nicht. In Abbildung 7.12 wird das Lambersche-Gesetz für

<sup>1</sup>Reichweite bei kleinen Energien.



**Abbildung 7.11:** Die Impulszahl am Maximum aufgetragen gegen den Probe-Detektor-Abstand.

**Tabelle 7.2:** Gegenüberstellung des Probe-Detektor-Abstands zur Zählrate am Maximum (37 keV) bei Anpassung an  $E_{avg}({}^{90}\text{Sr})$ . Für die Bestimmung der Impulszahl wurden die Kurven mit 10 Punkten geglättet (20 Punkte bei Höhe 4).

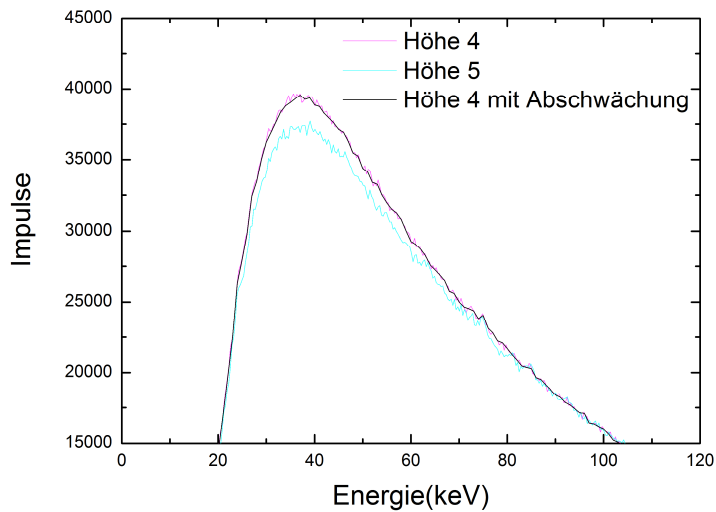
Höhenposition	P-D-Abstand [cm]	Impulszahl bei 37 keV
2	2	147670
3	5	145249
4	10	138381
5	15	132154

Luft angewandt, dies liefert auch keine Erklärung. Der Massenabschwächungskoeffizient für Luft wurde bereits in Abbildung 2.10 gezeigt.

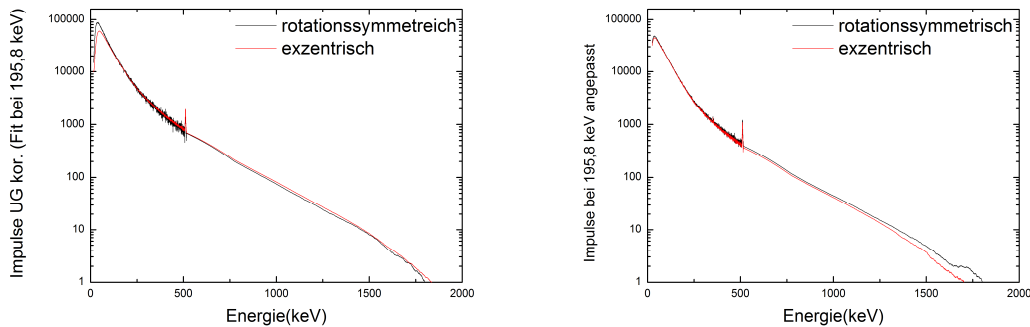
Andere geometrische Effekte, wie der unbestimmte Öffnungswinkel der Quelle können zum Tragen kommen. Im Prinzip handelt es sich durch die Grundfläche des Vials um einen Parallelstrahler mit einer relativ großen Divergenz. Eine Veränderung des Verhältnisses von parallel-strahlender zur divergierende Komponente, die den Detektor trifft, könnte eine mögliche Erklärung sein.

Wo bei den  $\gamma$ -Strahlern bei größerem PDA mehr im Untergrund gemessen wurde (Rückstreuung), wird hier bei entsprechender Abstandsänderung, bei Normierung auf die mittlere Energie  $E_{avg}$ , weniger gemessen. Obwohl im Bereich niedriger Energien eine Abschwächung stattfindet, kann bei dem untersuchten  ${}^{90}\text{Sr}/{}^{90}\text{Y}$ -Strahler das Fazit gezogen werden, dass sie die Form und Qualität des Spektrums über einen sehr großen Energiebereich nicht ändert. Veränderung in der Form des Spektrums treten am gezeigten Beispiel erst bei so niedrigen Energien auf, welche durch einen Cut-Off in der Auswertung gar nicht zum tragen kommen.

Im Folgenden soll der Einfluss der Exzentrizität analog zu  ${}^{137}\text{Cs}$  mit Hilfe des gleichen  ${}^{90}\text{Sr}/{}^{90}\text{Y}$ -Strahlers auf dessen Bremsstrahlungsspektrum untersucht werden. In Abbildung 7.13 sind links für den minimalen und rechts für den maximalen Probe-Detektor-Abstand die Spektren für die exzentrisch und die rotationssymmetrische Geometrie aufgetragen. Die Skalierung erfolgte ebenfalls auf die mittlere Energie  $E_{avg}$  des  ${}^{90}\text{Sr}$ .



**Abbildung 7.12:** In Rot und Grün Messungen von  $^{90}\text{Sr}$ , mit 10 respektive 15 cm PDA. Die schwarze Kurve zeigt die Absorber-Korrektur durchgeführt für 5 cm Wegstrecke in Luft.



**Abbildung 7.13:** Vergleich zwischen rotationssymmetrischer und exzentrischer Messgeometrie der untergrundkorrigierten Spektren. Links: Höhen 0; Rechts: Höhen 5.

Wie erwartet zeigt sich bei einem höheren Wert für das Verhältnis von Auslenkung zu PDA ein größerer Unterschied zwischen den Spektren mit und ohne Auslenkung. Abbildung 7.14 zeigt für alle gemessenen Probe-Detektor-Abstände die Spektren der Exzenter-Messungen. Der rechte Graph der Abbildung 7.14 zeigt den Energiebereich bis 150 keV, man erkennt, dass hier im Gegensatz zu Abbildung 7.10 das Maximum der Kurve wandert und zwar mit steigendem EXZ/PDA-Verhältnis hin zu größeren Energien.

Abbildung 7.15 zeigt die Lage der Maxima aufgetragen gegen EXZ/PDA. Auch nimmt hier bei steigendem EXZ/PDA-Verhältnis die Zählrate ab. Ausnahme bildet das Ergebnis der fünften Höhenposition. Dort ist die Anzahl der Impulse niedriger als bei Höhenposition 4 und läuft entgegen dem angedeutetem Trend. Hier war jedoch analog zu Abbildung 7.10 bei Höhenposition 0 die Messzeit kürzer und somit das Rauschen größer. Tabelle 7.3 gibt eine Übersicht über die Lage der Maxima und Impulsanzahl bei den einzelnen Messpositionen.

Eine Kombination aus  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahler, in Form des  $^{90}\text{Sr}$  als Standard-Lösung und der  $^{60}\text{Co}$ -Punktquelle, wurde, wie in Abbildung 6.14 dargestellt, in zwei Positionen gemessen. Einmal

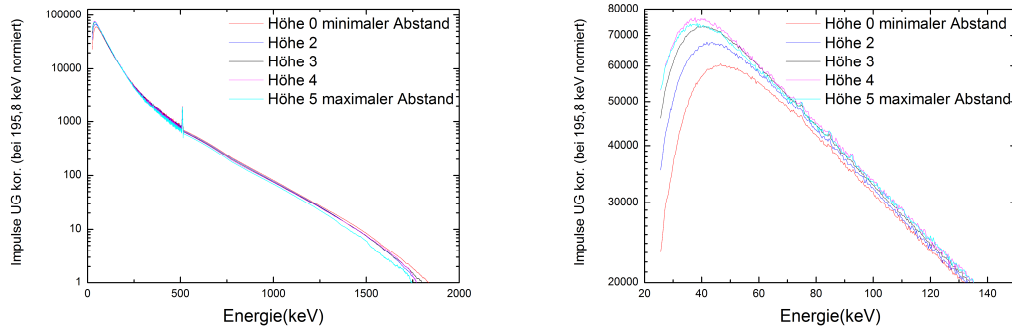


Abbildung 7.14: Darstellung aller fünf Höhenpositionen mit exzentrischer Messgeometrie

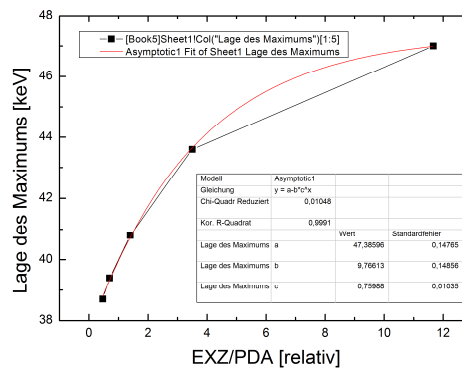


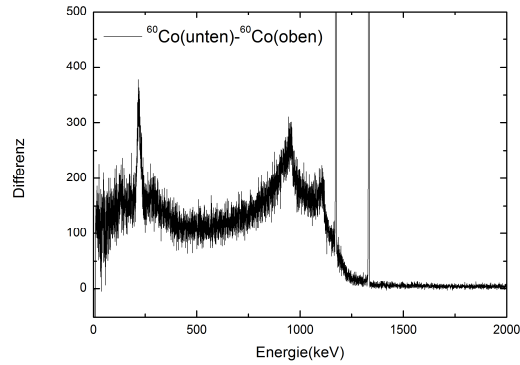
Abbildung 7.15: Lage der Maxima aufgetragen gegen EXZ/PDA.

lag die  $^{60}\text{Co}$ -Punktquelle auf dem Vial, das andere Mal drunter. Obige Ergebnisse zeigen, dass das Spektrum der  $^{90}\text{Sr}$ -Quelle relativ unempfindlich bei Höhenänderung reagiert. Daher kann behauptet werden, dass hier die Probe aus  $^{60}\text{Co}$  und  $^{90}\text{Sr}$  für die beiden Messpositionen einmal auf den Kopf gestellt wurde, obwohl die Flüssigkeit mit der  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität natürlich am Boden des Vial verweilte. Das Differenzspektrum zwischen den beiden Messungen ist Abbildung 7.16 zu entnehmen.

Im Gegensatz zu der Messung mit  $^{170}\text{Tm}$  (vgl. Abbildung 7.35) wurde für die Bildung der in Abbildung gezeigten 7.17 Differenz-Spektren, keine extra Messung mit getrennten Strahlern, in exakter Messposition durchgeführt. Sondern es wurde für das  $^{60}\text{Co}$  auf bereits vorhandene Daten zurückgegriffen. Die beiden der Messgeometrie (für  $^{60}\text{Co}$  oberhalb des  $^{90}\text{Sr}$ ) am nächsten

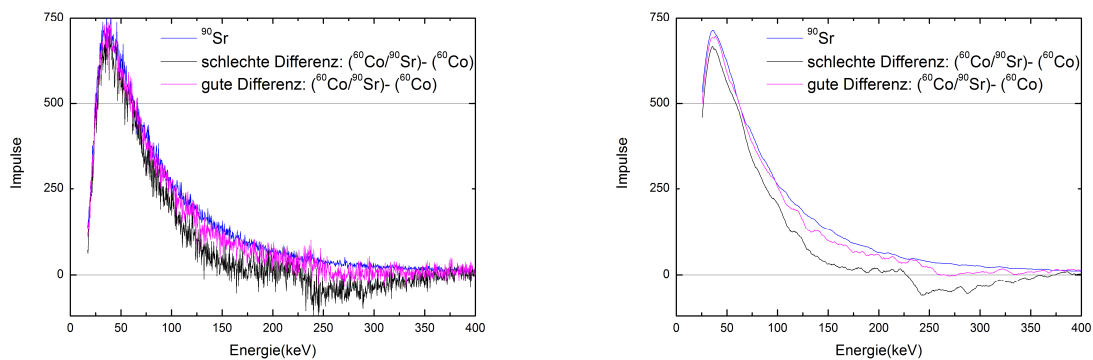
Tabelle 7.3: Zusammenfassung der Maxima-Lagen und der zugehörigen Exzentrizitäten

Höhenposition	Lage des Maximums	Impulszahl	Verhältnis EXZ/PDA
0	47,0	60142	7/0,6
2	43,6	67307	7/2
3	40,8	73065	7/5
4	39,4	76013	7/10
5	38,7	74046	7/15



**Abbildung 7.16:** Differenz-Spektrum zwischen den beiden in Abbildung 6.14 gezeigten Proben-Platzierungen.

kommenden Datensätze wurden zur Differenz-Spektren-Bildung herangezogen.



**Abbildung 7.17:** Differenz-Spektren mit guter und schlechter  $^{60}\text{Co}$  Geometrie. Das Vial, welches nicht in den Referenzmessungen vorhanden war zeigt sich im Spektrum nicht zu erkennen, was an seiner geringen Dichte und den hohen  $\gamma$ -Energien des  $^{60}\text{Co}$  liegt. Die Originaldaten sind links, selbige geglättet rechts gezeigt.

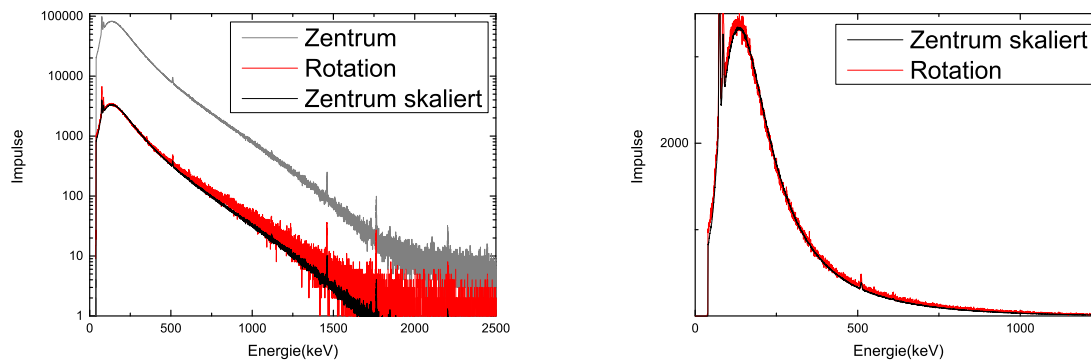
Beachtet man, dass sich in der Lösung des  $^{90}\text{Sr}$  dieses im radioaktiven Gleichgewicht mit seiner Tochter  $^{90}\text{Y}$  befindet, kann man das Beta-zu-Gamma-Aktivitätsverhältnis berechnen. Dies beträgt im Falle der  $^{60}\text{Co}$ -Messung 19,72. Dies entspricht einem Verhältnis der Teilchenzahlen von 53,89 Sr- und Y-Atomen pro Co-Atom.

Die Differenzspektren wurden nach dem Angleichen der Peakflächen gebildet. Vergleicht man diese Differenzspektren mit dem gemessenen  $^{90}\text{Sr}$ -Spektrum, ist der Trend des  $^{90}\text{Sr}$  beim Abzug der „richtigen“,  $^{60}\text{Co}$ -Messung deutlich erkennbar. Diese Ergebnis ist ein kleiner Vorgriff und soll andeuten, wie mit Referenzspektren die Bremsstrahlungsinformation extrahiert werden kann. Das zum Tragen kommende Beta-zu-Gamma-Aktivitätsverhältnis erlaubt deutlich eine Extraktion.

Die Stellen in den Differenzspektren der größten Abweichung zum Bremsstrahlungsspektrum stimmen mit den Lagen der Rückstreupeaks überein. Eines der beiden  $^{60}\text{Co}$  Referenzspektrum liegt mit seinem Proben-Detektor-Abstand nahe an dem tatsächlichen Proben-Detektor-Abstand des Mischspektrums. Dies liefert eine deutlich bessere Übereinstimmung zwischen Differenzspektrum und  $^{90}\text{Sr}$  Referenzspektrum, im Vergleich zu der anderen, in Abbildung 7.17 zu sehenden Kurve, welche eine Identifikation schwerer zulässt. Dies untermauert die schon erwähnte und in Kapitel 7.6.2 eingeführte Rückstreupeakkorrektur.

### 7.2.3 Mobiler Gamma-Scanner

In Abbildung 7.18 sind die beiden Messungen (Punkt- und Rotation) für das  $^{90}\text{Sr}$  zum Vergleich in einem Diagramm aufgetragen. Die Anpassung der Spektren erfolgte wieder anhand der mittleren Energie des  $^{90}\text{Sr}$ .



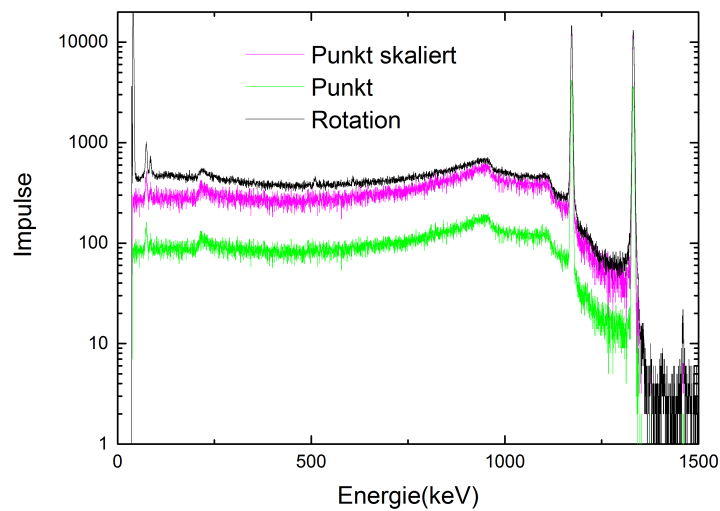
**Abbildung 7.18:** Vergleich der Rotationsmessung des exzentrisch positionierten  $^{90}\text{Sr}$  mit der zentrierten Punktmessung. Links in logarithmischer Darstellung (in grau die unskalierte Punktmessung, rechts mit linearer Impulse-Achse).

Die Messzeit der Punktmessung betrug 214658 Sekunden live time. Daher ist hier das Signal zu Rausch Verhältnis sehr gut, vgl. dazu die graue Kurve in Abbildung 7.18 links. Die Rotationsmessung hat bei 70 Umdrehungen eine Dauer von 38271 Sekunden. Die Überlagerung der beiden Messungen (schwarze und rote Kurve) zeigt dass keine Änderung der Spektrenform auftritt. Bei der roten Kurve zeigt sich hin zu größer werdenden Energien ein schlechter werdendes Signal zu Rausch Verhältnis, was sich im Graphen dadurch äußert, dass die Kurven der beiden Spektren scheinbar auseinander laufen, jedoch folgt die schwarze Kurve genau dem unteren Rand des Rauschens der roten Kurve. In der rechten Seite der Abbildung 7.18 sind die Spektren mit linearer Zählratenachse dargestellt, dort erkennt man die Übereinstimmung der Kurven besser.

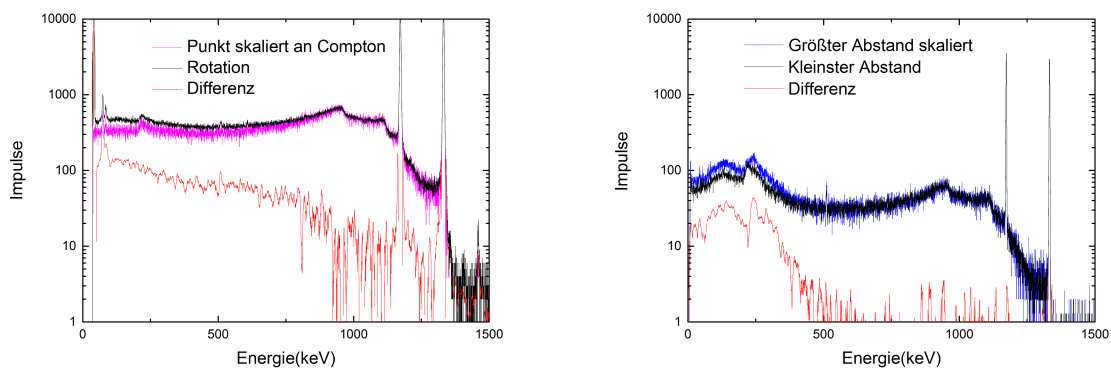
Beim  $^{60}\text{Co}$  zeigt sich ein anderes Verhalten, dies ist jedoch analog dem, der am stationären HPGe-Messplatz untersuchten  $\gamma$ -Strahler. Das Verhältnis der Peakflächen des 1173 keV zum 1332 keV Peak, liegt sowohl bei der Punktmessung als auch beim Scheibenscan bei 1,1, dies entspricht dem Wert der auch im Laborsystem am  $^{60}\text{Co}$  bei unterschiedlichen PDAs gemessen wurde.

Ein Unterschied zwischen der Punkt- und der Rotationsmessung ist eine Veränderung des Peak zu Compton Verhältnisses. Erkennbar ist dies an dem magentafarbenen skalierten Spektrum in Abbildung 7.19 wo nach dem Angleichen der Peakflächen zum schwarzen Spektrum, die zu 1173 keV gehörenden Compton-Kanten nicht ganz deckungsgleich sind, d. h. ihre Zählraten unterscheiden sich. Zwischen den beiden Messungen ist das Verhältnis der Peakflächen 1 zu 3,2, das der Compton-Kanten 1 zu 3,75. Bei der Abstandsvariation des  $^{60}\text{Co}$  im Laborsystem war davon nicht auszumachen, wobei dort Messungen mit unterschiedlichen Exzentrizitäten am  $^{60}\text{Co}$  nicht durchgeführt wurden. Vergleiche hierzu die rechte Seite der Abbildung 7.20. Bei  $^{137}\text{Cs}$  im Laborsystem hatte der Unterschied den Faktor 1,77 bei den Peakflächen, bei der Compton-Kante war er 1,76.

Für das links in Abbildung 7.20 gezeigte Differenzspektrum, wurde das Spektrum erneut skaliert, diesmal an der Compton-Kante, Da es hier um die qualitative Differenz geht.



**Abbildung 7.19:** Vergleich der Rotationsmessung des exzentrisch positionierten  $^{60}\text{Co}$  mit der zentrierten Punktmessung.



**Abbildung 7.20:** Links: Hier sind die Messungen an der Compton-Kante des 1173 Peaks angeglichen. In Rot zeigt sich hier die Differenz der beiden Spektren. Rechts: Die beiden Messungen im Laborsystem.

## 7.2.4 Zusammenfassung

Bei den reinen  $\gamma$ -Strahlern mit diskreten Linien-Spektren zeigt sich, dass die Rückstreuung bzw. generell die Streuung in der Messumgebung einen deutlichen Einfluss auf die Form des Spektrums hat. Dies trifft sowohl bei der Versuchsreihe mit PDA-Variation zu, als auch bei der mit Variation der Exzentrizität. Tabelle 7.4 zeigt für die untersuchten  $\gamma$ -Strahler die maximalen Abweichungen im Untergrund. Der Tabelle ist zu entnehmen, dass im untersuchten „Untergrund“ Zählratenänderungen von über 100% auftraten, d.h. der Faktor der Abweichungen im Compton-Untergrund nimmt eine Größe von bis zu 1,7 bei den untersuchten Messgeometrien an.

Hingegen zeigt sich bei der Kombination der beiden  $\beta$ -Strahler  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$  dieses Verhalten nicht. Wie die Messungen zeigen, ist die Form des Spektrums bei den untersuchten Proben gegen Variation der Geometrie sehr unempfindlich. Zwischen den Messungen mit und ohne Auslenkung aus der Symmetrieachse zeigt sich ein unterschiedliches Abschwächungs-Verhalten.

Bei der PDA-Variation unter Rotationssymmetrie zeigt sich eine Abschwächung bei größeren



**Tabelle 7.4:** Unterschiede der Zählraten der verschiedenen Geometrien relativ zueinander, an den Stellen der größten Differenz.

Nuklid	Zählrate bei ma- ximaler Höhe	Zählrate bei dar- unter liegender Höhenpo- sition	Lage der Größten Differenz	Unterschied aus Diff- Spektrum (geglättet)	Abweichung in %	Verhältnis EXZ/P- DA
$^{137}\text{Cs}$	3673	2365	ca. 200 keV	1618	155%	0
$^{133}\text{Ba}$	4505	2745	ca. 64 keV	1771	164%	0
$^{60}\text{Co}$	220	155	ca. 243 keV	66	142%	0
EXZ bei $^{137}\text{Cs}$	EXZ <sub>max</sub> : 3700	EXZ <sub>0</sub> : 2583	ca. 196 keV	1117	143%	7/0,6

Abständen. Dabei ändert sich jedoch die Lage des Maximums nicht.

Bei den Messungen mit Auslenkung aus der Symmetrieachse zeigt sich, dass je größer das Verhältnis EXZ/PDA wird, die Tendenz zu einer Abnahme der Impulszahl führt. Mit ihr geht eine Verschiebung des Maximums hin zu größeren Energien einher.

Über einen größeren Energiebereich ab  $E_{avg}$  (Punkt der Normierung) bis hin zur höchsten detektierten Energie um 2000 keV zeigen alle Messungen der beide  $^{90}\text{Sr}$  Versuchsreihen qualitativ das gleiche Spektrum. In realen Abfallgebinden fällt der Bereich der größten Abweichung mit den unterschiedlichen (Blei)-Röntgenlinien zusammen. Da dieser Bereich bei der Auswertung noch nicht berücksichtigt wird, sollte ein möglicher Einfluss der Messgeometrie auf das extrahierte Bremsstrahler-Spektrum keine Rolle spielen.

Insgesamt bleibt anhand der hier durchgeführten Untersuchungen festzustellen, dass der Einfluss der Geometrieeffekte bei reinen  $\beta$ -Strahlern<sup>2</sup> einen verschwindend geringen Einfluss auf das gesuchte Auswerteverfahren zu haben scheint. Bei den  $\gamma$ -Strahlern müssen manche Effekte, z. B. unter zu Hilfenahme eines Korrekturterms berücksichtigt werden.

## 7.3 Einfluss von Absorbern auf das Spektrum

### 7.3.1 Allgemeines

Die verwendeten MACs stammen alle vom NIST, jedoch gibt es dort unterschiedliche Datenbanken für reine Elemente oder Verbundmaterialien, siehe Kapitel 2. Für die Verbundmaterialien im Rahmen der vorliegenden Arbeit benötigte MAC sind: V2A-Stahl, Bitumen und Beton.

Die Schwierigkeit exakte MACs für diese Materialien zu bekommen, liegt an den Eigenschaften der Materialien selbst. Kein Beton gleicht dem anderen, mal enthält er z.B. mehr Zement dafür weniger Sand. Bei Bitumen verhält es sich ähnlich, jede Charge hat ihre eigene Zusammensetzung. Auch bei Stahl ist es schwer, genaue Angaben über die Element-Zusammensetzung zu erhalten.

<sup>2</sup>Auf Grund des kontinuierlichen Spektrums der  $\beta$ -Strahlern können keine diskreten Rückstreupeaks entstehen. Die Anhäufung von Zählrate bei niedrigen Energien ist jedoch ein Indiz, dass sich dort Rückstreuung sammeln kann.

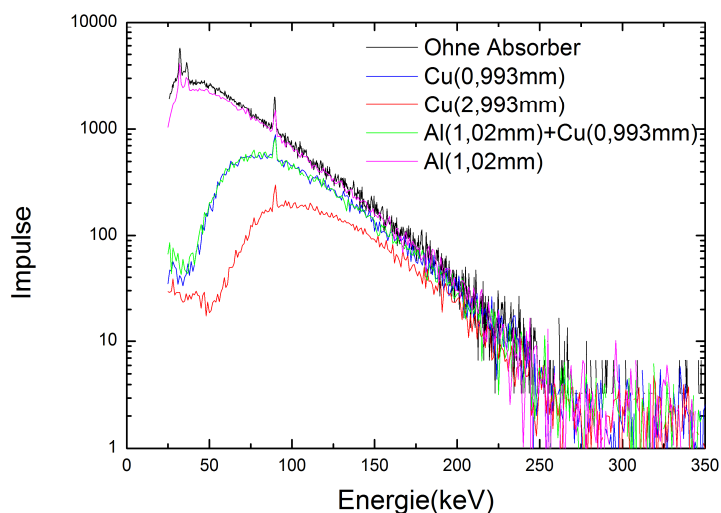
Bei dem vorliegenden V2A-Stahl wurde als Grundlage der Zusammensetzung X5CrNi18-10 mit 18% Cr und 9% Ni unterstellt. In Abbildung 2.10 wurden die verwendeten MACs gezeigt. Mit den gezeigten MAC und den zugehörigen Dichten sowie der jeweiligen Absorber-Dicke wurden die Spektren korrigiert. Dies geschah relativ zueinander, d. h. Effekte die auf zwei zu vergleichenden Spektren gleich wirkten, wurden nicht berücksichtigt.

Die Vereinfachung ging soweit, dass der Buildup-Faktor B in den Rechnungen ignoriert wurde und zur Berechnung der Abschwächung die Formel 2.28 statt Formel 2.30 verwendet wurde. Da die unterschiedlichen Messungen nur relativ zueinander betrachtet werden und sich die gesamte Messapparatur sowie der Messaufbau nur durch die Absorber unterschieden haben, sollte diese Annahme zulässig sein. Bei den an dem stationärem HPGe-Detektorsystem durchgeführten Messungen hatten die Absorber auch eine vergleichbare Dicke, so dass die Probenposition maximal um 2,99 mm variierte, bei ansonsten exakt gleichen Messbedingungen. Bei der Messung mit dem Falcon 5000 unterschied sich der Abstand der Proben um 25 cm, allerdings bei einem Abstand von 7 m zum Detektor.

Die Korrektur erfolgte in allen Fällen unter der Annahme einer einfachen exponentiellen Schwächung. So wurde der Faktor der Absorption stets mit der Formel 2.28 (vgl. Abschnitt 2.2.5) mit den oben angegebene MACs berechnet und entsprechend auf die Spektren angewandt.

### 7.3.2 Stationärer HPGe-Messplatz

Die zu erwartende Beobachtung bei allen Quellen war: Die Reduzierung der Impulszahlen wirkt sich umso stärker aus, je dichter das Material und je niedriger die Energie ist. Bei der  $^{99}\text{Tc}$  Probe ist beispielsweise der Unterschied zwischen den Spektren mit Absorption durch Kupfer und Kupfer plus Aluminium nahezu vernachlässigbar, da Kupfer der dominierende Bestandteil für die Absorption ist. Abbildung 7.21 zeigt die messzeitkorrigierten<sup>3</sup> Spektren mit deutlichen Unterschieden in der Form des Spektrums.

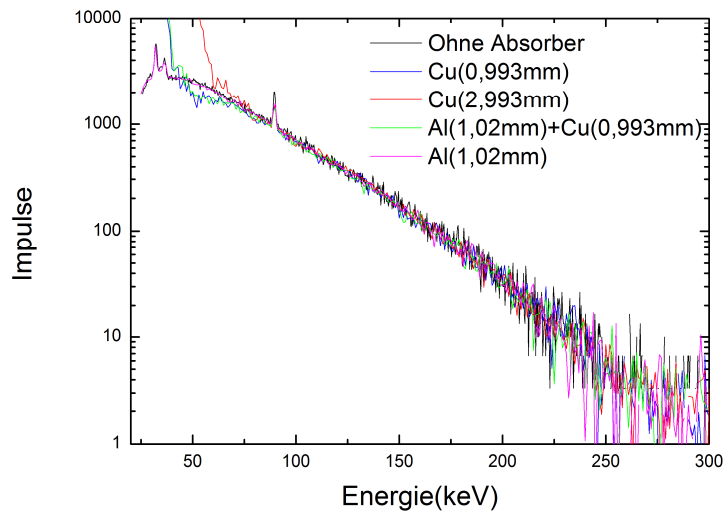


**Abbildung 7.21:** Die Originalspektren des  $^{99}\text{Tc}$  vor der Absorber-Korrekturrechnung.

Führt man die Absorber-Korrektur durch zeigt sich das Ergebnis in Abbildung 7.22. Die Form der Spektren hat sich deutlich einander angenähert. Zumindest gilt dies für den Energiebereich ab 65

<sup>3</sup>Die längste Messzeit hatte die Messung mit dem dickem Kupfer Absorber.

keV (Kupfer mit 2,993 mm Stärke) bis zu  $E_0=293,7$  keV. Im darunterliegenden Energiebereich weichen die Kupfer-Daten deutlich von der tatsächlichen Messung hin zu großen Zahlen ab.



**Abbildung 7.22:**  $^{99}\text{Tc}$  nach der Absorber-Korrekturrechnung.

Beginnend bei etwa 65 keV ergeben sich in allen Fällen nahezu identische Verläufe für das korrigierte Spektrum, d. h. für diesen Bereich wurde die Richtigkeit der Korrektur bezüglich der Absorption demonstriert. Die Abweichung unterhalb von 65 keV ist vermutlich auf unzureichend genaue Massenschwächungskoeffizienten zurückzuführen.

Die Absorptionskante im MAC des Kupfers liegt bei 8,9 keV. Durch eine Interpolation des MAC über diese Kante hinweg zeigt der MAC bis knapp 15 keV eine leichte Abweichung von dem Verlauf in Abbildung 2.10. Dies kann hier nicht als Erklärung herangezogen werden<sup>4</sup>. Der MAC des Aluminium bereitet zumindest bei der Dicke, des hier vorliegenden Absorbers keine Probleme, bei der Absorptionskorrektur.

Analoges zeigt das Ergebnis der Absorptionskorrektur beim  $^{170}\text{Tm}$  in Abbildung 7.23

Zwischen den Spektren ohne Absorber und mit Aluminiumscheibe ist ein kleiner Unterschied in der Zählrate zu sehen. Dieser ist nach der Korrektur verschwunden. Beim Kupfer zeigt sich ein analoges Verhalten wie schon bei  $^{99}\text{Tc}$  beobachtet, was hier sogar zu einer leichten Überkorrektur führt.

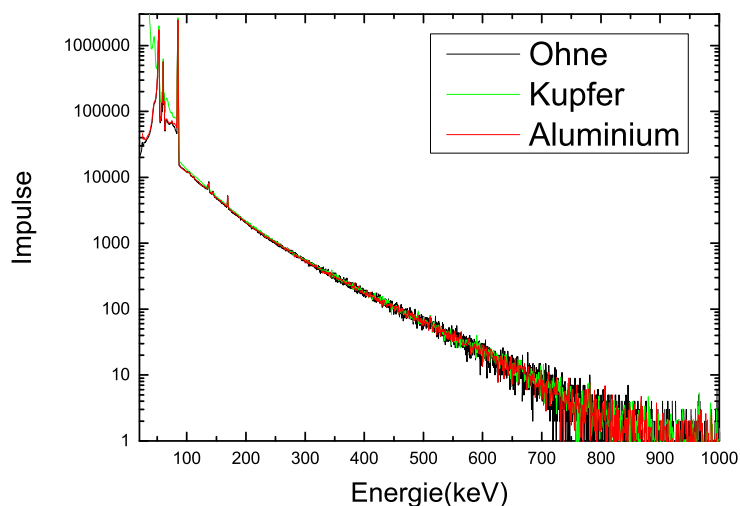
Die Messungen und die Ergebnisse der Korrektur des Schwächungseinflusses des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  sind in Abbildung 7.24 dargestellt. Bei den korrigierten Spektren zeigt Kupfer, wie schon bei den beiden anderen Nukliden, die größte Abweichung, gleich auf ist die Diskrepanz bei V2A<sup>5</sup>.

### 7.3.3 Mobiler HPGe-Messplatz

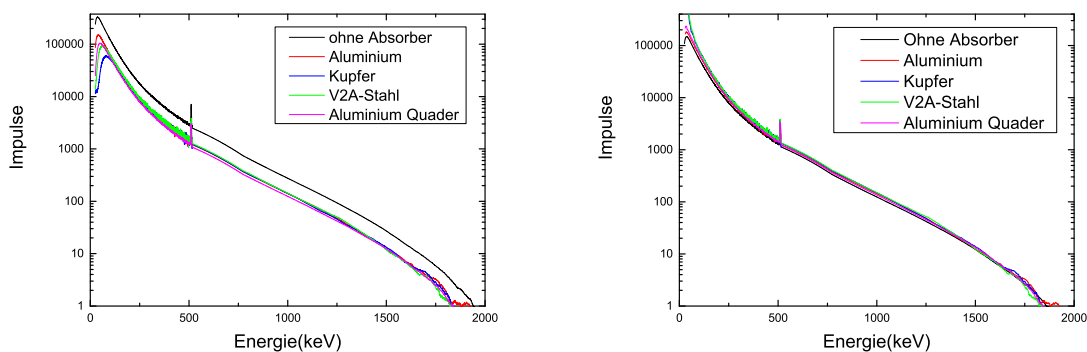
Abbildung 7.25 zeigt das Beton-Fass-Spektrum dem Bitumen-Spektrum gegenübergestellt, dabei wurde die Messzeiten (Live Time) angepasst. Es wurden nur die zwei Messungen verwendet, deren

<sup>4</sup>Anmerkung: Man sollte eine Gegenrechnung mit Werten einer anderen Datenbank, als der des NIST unternehmen.

<sup>5</sup>Die korrigierten Spektren der Beiden steigen unterhalb ca. 80 keV deutlich an. Je größer  $\rho$  des Absorber desto schwieriger die Korrektur. Für V2A wurde eine Dichte  $7,9 \text{ g/cm}^3$  angenommen



**Abbildung 7.23:**  $^{170}\text{Tm}$  nach Absorber-Korrekturrechnung. Original Spektren vgl. Abbildung 6.16.

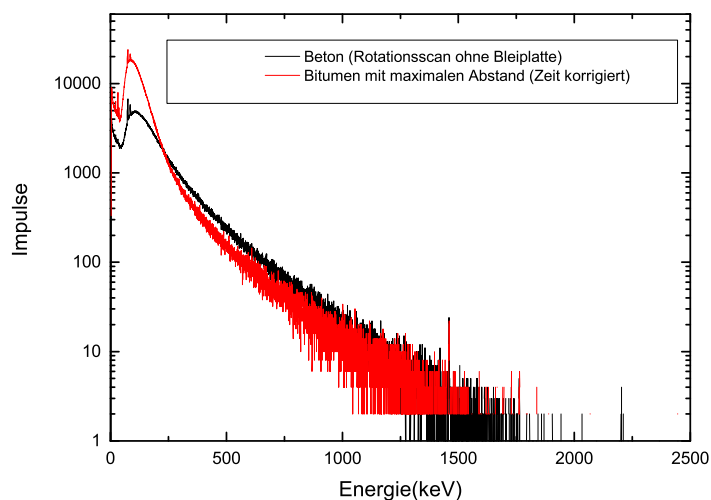


**Abbildung 7.24:**  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  links vor und rechts nach der Absorber-Korrekturrechnung. Dabei wurde auf der linken Seite bereits der Untergrund sowie die Messzeit korrigiert.

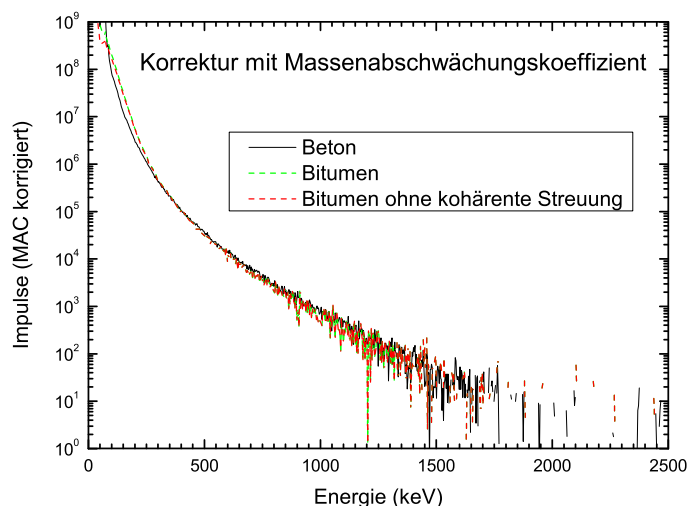
Totzeit nicht zu hoch war, wie in Abschnitt 6.4.4 beschrieben.

Abbildung 7.26 zeigt die Spektren mit korrigierter Absorption durch Rechnung mit dem Lambert-Beerschen-Gesetz. Dabei wurde  $\mu/\rho$  für 1000 äquidistante Energiewerte im Energieintervall von 10 bis 3000 keV aus den NIST-Daten (40 bzw. 50 Werte) interpoliert. Dies wurde für die Spektren ebenfalls durchgeführt. Mit diesen je 1000 Werte Paaren wurde die Graphen der Abbildung berechnet.

Der Spektren Verlauf nach der MAC-Korrektur hat sich sehr deutlich angeglichen. Zusätzlich zu den normal verwendeten MACs, die die kohärente Streuung nicht enthalten, wurde für Bitumen in grün die Korrektur mit kohärente Streuung dargestellt. Es zeigt sich das dies keinen Einfluss auf das Ergebnis hat.



**Abbildung 7.25:** Vergleich der Spektren von Beton- und Bitumenfass zeitkorrigiert.



**Abbildung 7.26:** Vergleich der Spektren von Beton- und Bitumenfass nach Absorber-Korrekturrechnung.

### 7.3.4 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden, dass sich die Spektren mit der richtigen Absorptionskorrektur ineinander überführen lassen. Bei Kupfer scheint entweder der MAC aus NIST nicht exakt zu sein, oder aber Absorber hoher Dichte bereiten generell mehr Probleme, bei der Korrektur. Das Resultat dieser Untersuchung bestärkt die Vermutung, dass Spektren über viele Größenordnungen der Aktivität hinweg, mit verschiedenen Messsystemen prinzipiell richtig korrigiert werden können, sodass ein ungestörtes Bremsstrahlungs-Spektrum gewonnen werden könnte.

Der Verzicht auf den Buildup B Faktor war für die gezeigte Auswertung, zumindest an den am stationärem HPGe-Detektorsystem durchgeführten Messungen in Ordnung, da sich hier die Spektren problemlos ineinander überführen lassen.

Bei den Fassmessungen am Falcon 5000 zeigten sich bei kleinen Energien Abweichungen. Hier muss angemerkt werden, dass speziell im niederenergetischen Bereich die Genauigkeit der Angaben über die schwächenden Materialien (z. B. über Dicke, Dichte, Elementzusammensetzung etc.) eine große Rolle für die Güte der Korrektur darstellt. Da für das Bitumen, auch nur eine Angabe für dessen Zusammensetzung gefunden wurde, von der nicht ausgegangen werden kann, dass dieses dem Bitumen im Fass entspricht und sich der MAC im Exponenten der Gleichung 2.30 niederschlägt, war auch hier die Vereinfachung anwendbar.

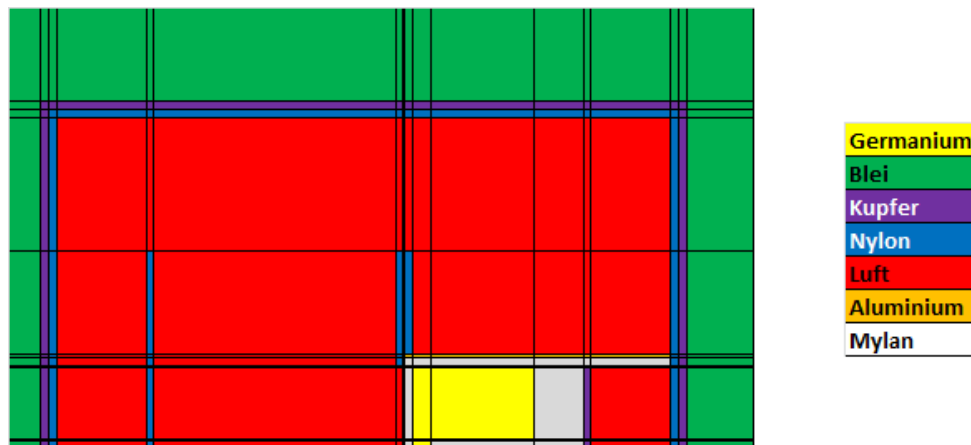
Die Spektren nehmen nach der Korrektur bei kleinen Energien riesige Werte an, auch ist die Korrektur zumindest bei Mischmaterialien fehleranfällig. Dies sind ebenfalls Gründe warum in Kapitel 3 als Auswahlkriterium eine Maximalenergie von mindestens 150 keV für das  $\beta$ -Teilchen gefordert wurde. Wobei natürlich die dort auftretenden Röntgenlinien der gewichtigere Grund sind. Die Analyse des Differenzspektrums kann bei etwa 80 keV beginnen, wodurch der Einfluss der vorgenannten Parameter auf das Ergebnis minimiert wird.

## 7.4 Vergleich von Simulation und Messung

### 7.4.1 Allgemeines

Mit den in Kapitel 5 beschriebenen Methoden wurden verschiedene der in Kapitel 6 gezeigten Messungen simuliert. Im Folgendem werden die jeweiligen Ergebnisse einander gegenübergestellt. Hier werden nur Simulationen des stationären HPGe-Messplatzes gezeigt. Die Simulationen nahmen sehr viel Zeit in Anspruch und wurden langsam verbessert, jedoch gelang dies nicht bis zu dem Niveau, das nötig ist um sie bereits sinnvoll bei der Rekonstruktion einzusetzen.

Das vollständigste Modell, das den Messaufbau am besten beschreibt, zeigt Abbildung 7.27. Der größte Unterschied ist die Grundfläche der Bleiburg. Ihre Form ist im Modell, auf Grund der Einschränkung von DOSRZnrc, ein Kreis mit 15 cm Radius, tatsächlich ist die Grundfläche quadratisch. Weitere Details, die die simulierte Geometrie von der wirklichen unterscheiden,

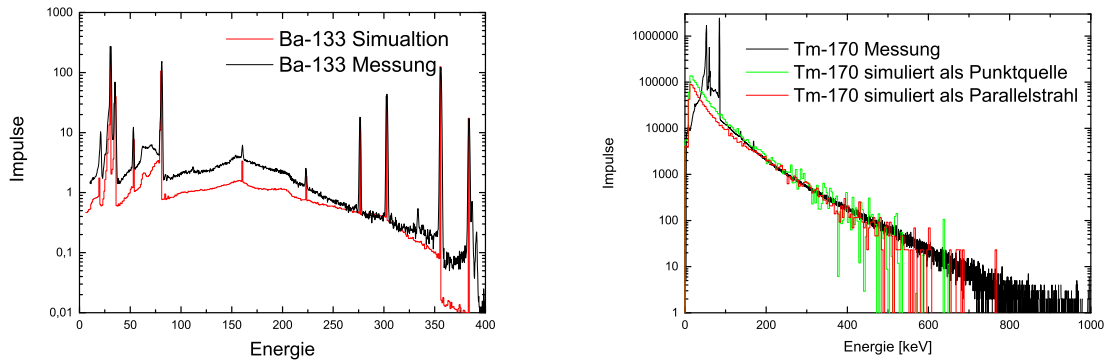


**Abbildung 7.27:** EGS-Modell des stationären HPGe-Messplatzes in Rotationssymmetrie, wie es mit dem DOSRZnrc Code verwendet wurde. Die Rotationsachse ist die unter Bildkante. Die gesamte Dimension beträgt 50,25 cm in der Länge bei 20 cm Radius.

sind die fehlenden Stäbe des Probenhalters, die hinter dem Detektor gelagerte Elektronik sowie die Decke der Bleiburg. Die verwendeten Transportparameter finden sich im entsprechenden Abschnitt der EGSnrc Eingabedatei im Anhang A. Diese ist exemplarisch dargestellt, die hier gezeigten Simulation wurden mit den gleichen Transportparametern durchgeführt, sofern nicht anders darauf hingewiesen wird.

## 7.4.2 Zu den Geometrieeffekten

In Abschnitt 7.2 zeigte sich, dass die untersuchten  $\beta$ -Strahler auf Änderung der Messgeometrie wesentlich unempfindlicher reagieren als die  $\gamma$ -Strahler. Dies verdeutlicht die Gegenüberstellung von Messung und Simulation je eines  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlers in Abbildung 7.28 nochmals. Sowohl die



**Abbildung 7.28:**  $^{133}\text{Ba}$  (links) und  $^{170}\text{Tm}$  (rechts) im Vergleich Messung zu Simulation, bei bekannter Differenz zwischen Geometrie des Modells und tatsächlicher.

Mess- als auch die Simulationsgeometrien<sup>6</sup> der beiden gezeigten Nuklide waren jeweils identisch.

Bei dem  $\gamma$ -Strahler sieht man zwischen Messung und Simulation deutliche Unterschiede im Untergrund, bei  $^{170}\text{Tm}$  ist das nicht der Fall. Für die Simulation des  $\beta$ -Spektrums sollte es daher ausreichen, den Detektor exakt nachzubilden und die Messumgebung dabei nur grob zu erfassen. Bei der Rekonstruktion/Simulation der  $\gamma$ -Strahler muss hingegen möglichst exakt vorgegangen werden. Das Problem ist, dass bei der Rekonstruktion zuerst die  $\gamma$ -Spektren der identifizierten Nuklide nötig sind um die Bremsstrahlungsinformation zu erhalten.

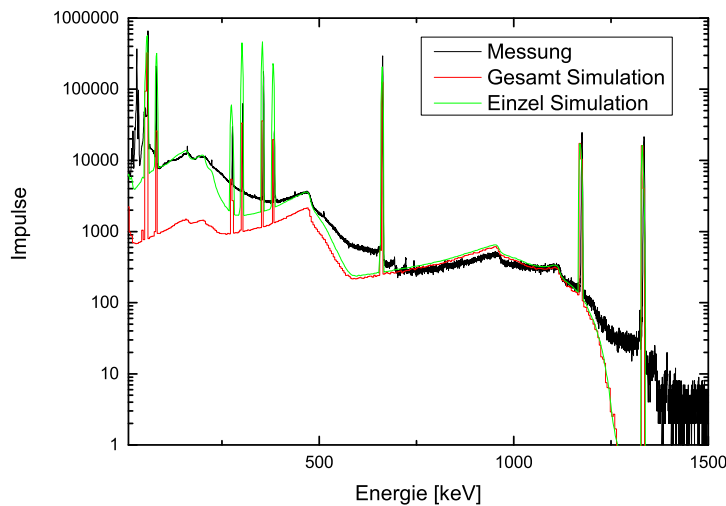
## 7.4.3 Simulation mehrere Gamma-Strahlern in einem Spektrum

Für die Simulation der Messungen die mehrere  $\gamma$ -Nuklide enthalten, können prinzipiell zwei Strategien verfolgt werden:

- Die Simulation wird für alle identifizierten Nuklide ausgeführt, d. h. alle  $\gamma$ -Strahler werden in einem einzigen Simulationsdurchlauf berücksichtigt. Das Gesamtspektrum steht dann sofort nach Abschluss der Simulation zur Verfügung. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass bei jeder Änderung der Aktivität eines der Nuklide eine neue Simulation erforderlich ist.
- Die Simulation wird zunächst für jedes einzelne identifizierte Nuklid unabhängig von allen anderen Nukliden ausgeführt. Durch anschließende Summation der Einzelspektren wird das Gesamtspektrum generiert. Diese Methode hat den Vorteil, dass durch Gewichtung der einzelnen Spektren Variationen der Aktivitäten einfach und ohne Neuberechnung berücksichtigt werden können. Nachteilig ist hier der erhöhte Zeitaufwand aufgrund der Vielzahl an Einzelberechnungen.

Welche erscheint besonders im Hinblick auf die „unbekannte“ Bremsstrahlung sinnvoller?

<sup>6</sup>Die oben erwähnten Unterschiede zwischen Messung und Simulation waren nach wie vor vorhanden.



**Abbildung 7.29:** Gegenüberstellung der beiden Simulationsmethoden mit einer Messung von  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ . Bei der Simulation wurden die Strahler als Parallelstrahler behandelt.

Abbildung 7.29 zeigt den Unterschied der beiden Methoden, dabei befanden sich die Simulationen noch nicht auf maximalen Niveau (Bleiburg unvollständig), aber bereits hier zeichnet sich ab, dass mit der einzelnen Simulation der Nuklide bessere Ergebnisse zu erwarten sind. Somit wird die Antwort auf obere Frage schon Vorweg genommen.

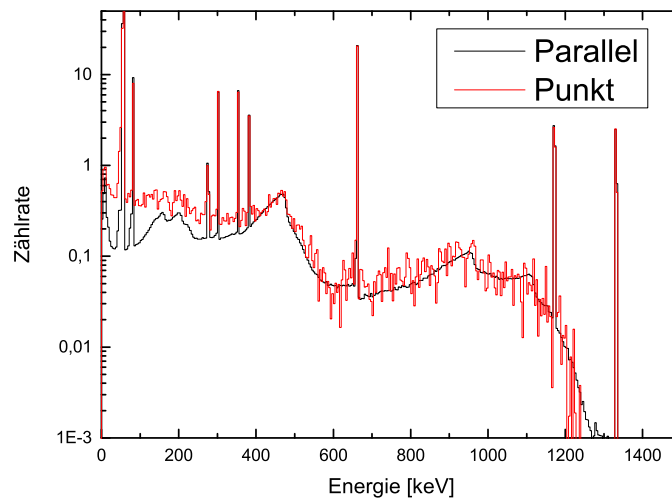
Als Quellen wurden die  $\gamma$ -Strahler  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  sowie bei den Messungen zusätzlich noch der  $\beta$ -Strahler  $^{170}\text{Tm}$  eingesetzt. Die Addition der einzelnen Spektren, wurden mit Hilfe ihre Compton-Kante durchgeführt. Dazu wurde die Compton-Kante der Hauptlinie jeweils auf den Wert der Messung skaliert. Es wurde mit  $^{60}\text{Co}$  begonnen. Dessen Compton-Untergrund wurde bei der Skalierung des  $^{137}\text{Cs}$  berücksichtigt. Der Untergrund des gemeinsamen  $^{60}\text{Co}$ - $^{137}\text{Cs}$  wurde bei  $^{133}\text{Ba}$  berücksichtigt usw. Es wird bei der Rekonstruktion also mit dem Nuklid der höchsten  $\gamma$ -Energie begonnen und die weiteren Nuklide in absteigender Reihenfolge ihrer maximalen  $\gamma$ -Energien aufaddiert.

Alternativ wurde statt an der Compton-Kante, das gleiche Verfahren an den Peakhöhen angewandt. Geht man davon aus, dass in realen, zu untersuchende Mischspektren Bremsstrahlung enthalten ist, kann durch Anpassung an die Compton-Kante deren Gehalt an Information unter ungünstigen Umständen verfälscht werden.

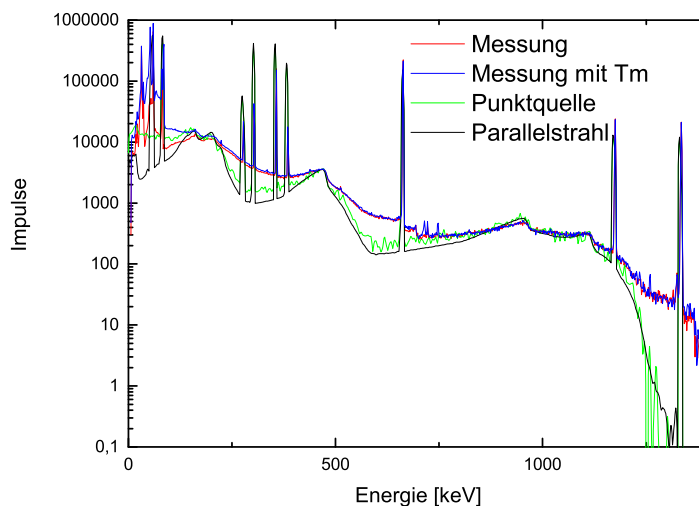
Im niederenergetischen Bereich weist die Gesamt-Simulation eine deutlich niedrigere Zählrate im Compton-Untergrund auf als die Messung oder die zusammengesetzte Simulation. Dies konnte durch Änderung der Quellen Geometrie von Parallelstrahl auf Punktquelle deutlich abgemildert werden, wie Abbildung 7.30 zeigt. Die Simulation als Punktquelle weist bei gleicher Zahl an „Histories“ eine deutlich schlechtere Statistik auf. Als „Histories“ werden in EGSnrc die Anzahl der Durchläufe der Simulation bezeichnet.

In Abbildung 7.31 sind die Ergebnisse der einzeln simulierten Nuklide sowohl als Parallelstrahl wie auch als Punktquelle den Messungen gegenübergestellt. Die Ausbreitung der  $\gamma$ -Strahlung erfolgt einmal strahlenförmig (Punktquellengeometrie) und das andere Mal als eine parallel gerichtete Flächenquelle (Parallelstrahl). In beiden Fällen zeigt ein Vergleich mit dem gemessenen Spektrum deutliche Abweichungen zwischen den charakteristischen  $\gamma$ -Linien. Der augenfälligste Unterschied findet sich im Bereich bis etwa 250 keV. Diese weist auf eine noch nicht ausreichend genaue Beschreibung der Messgeometrie (u. a. des Detektors) im Simulationsprogramm hin und





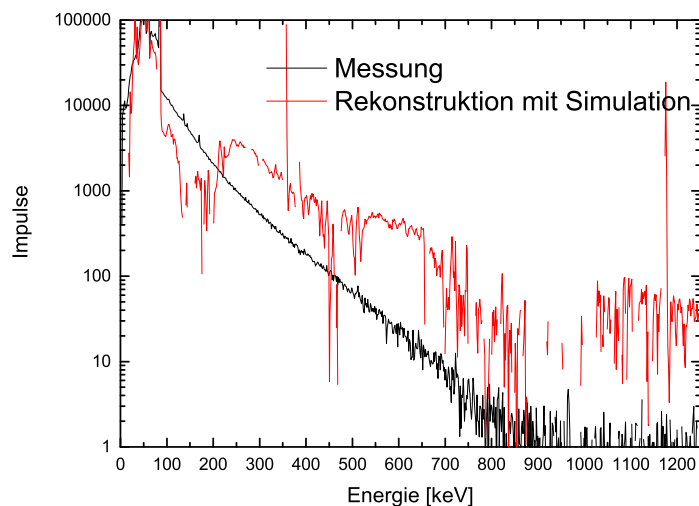
**Abbildung 7.30:** Vergleich der unterschiedlichen Quellentypen: Punktquelle und Parallelstrahl bei der gleichzeitigen Simulation aller Strahler.



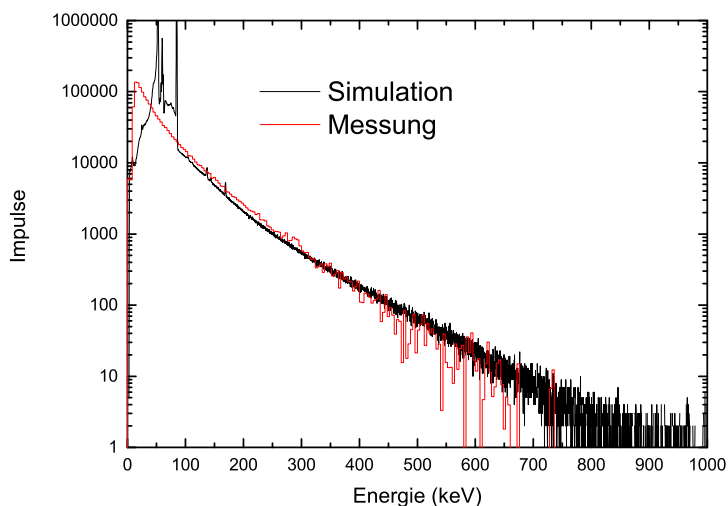
**Abbildung 7.31:** Simulierte und gemessene  $\gamma$ -Spektren für die Nuklide  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  sowie  $^{170}\text{Tm}$ . Die Simulationen wurden unter der Annahme einer Punkt- (grün) und einer Parallelstrahlgeometrie (schwarz), die Messungen mit (schwarz) und ohne (rot)  $\beta$ -Strahler durchgeführt.

bedarf weiter Untersuchungen.

Wird mit diesen Daten die Extraktion des Bremsstrahlungsspektrums (Schritt 5 des Auswerteverfahrens, vgl. Kapitel 4) durchgeführt, so ergibt sich der in Abbildung 7.32 gezeigte Verlauf. Der Vergleich mit dem ebenfalls dargestellten gemessenen Bremsstrahlungsspektrum zeigt, dass hier aber noch deutliche Verbesserungen in der Simulation von  $\gamma$ -Spektren erforderlich sind. Die Simulation des  $^{170}\text{Tm}$   $\beta$ -Strahlers (simuliert wurden nur sein Elektronenspektrum, ohne seine  $\gamma$ -Linie) ist Abbildung 7.33 der Messung gegenübergestellt. Hier zeigt sich (abgesehen von niederenergetischen Bereich) eine deutlich besser Übereinstimmung. Dies ist im Einklang mit den in Abschnitt 7.4.2 gefunden Unterschieden der beiden Strahlungsarten. Der simulierte Detektor wurde im Werk generalüberholt. Daher existieren widersprüchlicher Angaben bezüglich seiner Kristallgröße (Detektorabmessungen), so konnte hier eine mögliche Fehlerquelle nicht vollständig



**Abbildung 7.32:** Spektren von  $^{170}\text{Tm}$  und Rekonstruktion des  $^{170}\text{Tm}$  in einer Mischmessung durch die Simulation.



**Abbildung 7.33:** Messung (schwarz) und Simulation (rot, gleiches Niveau wie oben) von  $^{170}\text{Tm}$

ausgeschlossen werden.

Um die in vorangegangenen Abschnitt gestellte Frage nach der Wahl der Methode nochmals kurz aufzugreifen: Schafft man es in weiteren Arbeiten das Niveau zu verbessern, ist die Gesamtsimulation nochmals heranzuziehen, da bei ihr keine Fehler bei der weiteren Rekonstruktion gemacht werden können und das Ergebnis nochmals verifiziert werden kann.

#### 7.4.4 Zusammenfassung

Da die Simulationen zu Beginn deutliche Abweichungen von den tatsächlichen Messungen zeigten, wurde die in Abschnitt 6.4.3 vorgestellte Untersuchung der Einflüsse von geometrischen Effekten auf die Spektren durchgeführt. Diese lieferte wichtige Erkenntnisse über das Verhal-

ten von  $\gamma$ - und  $\beta$ -Strahlern unter Veränderung der Geometrie. Die Ergebnisse der Simulation konnten daraufhin zwar leicht verbessert werden, zeigten aber auch nach Optimierung noch deutliche Unterschiede zu den Messungen, daher wurde schließlich der Fokus der Simulationen auf die Messungen und die Auswertung anhand von Referenzspektren gelegt. Auf Grund der unbefriedigenden Ergebnisse bei der Simulation des stationären HPGe-Messplatzes wurde auf Simulationen der anderen Messplätze verzichtet. Durch die Verwendung des DOSRZnrc Codes bestanden Einschränkungen in der Geometrie auf Grund der Zylinderkoordinaten. Auch schlug es fehl die Quelle aus dem Koordinatenursprung der Simulation heraus so zu versetzen, dass die Decke der Bleiburg mit in die Simulation einbezogen werden konnte.

Generell müsste, um eine verlässliche Simulation eines Fasses zu erhalten, ein möglichst exaktes Modell des Fassinhalts vorliegen. Dieses könnte über die dreidimensionale Modellierung anhand von Computertomographie Daten erstellt werden. Diese Daten liefert der an der RCM betriebene  $\gamma$ -Tomograph. Jedoch ist die Konstruktion eines vollständigen 3D-Modells aus seinen Daten keine Routine und wurde bisher lediglich vereinzelt als Machbarkeitsstudie bei einigen speziell ausgesuchten Messungen realisiert. Der limitierendere Faktor sind jedoch die dazu notwendigen Messzeiten, diese würden sich auf mehrere Tage pro Fass belaufen, dies ist in der Praxis nicht zu realisieren.

## 7.5 Bestimmung des Bremsstrahlungsanteils in Gamma-Spektren

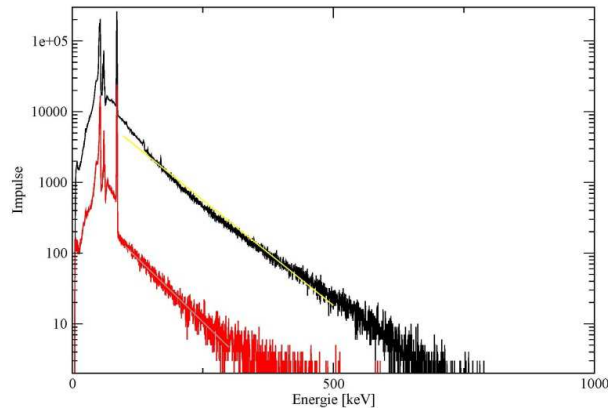
Abschnitt 2.2.3 beschreibt wie man aus der Verteilung der Elektronen  $P(T)$  das Bremsstrahlungsspektrum  $S(k)$  erhält. Es gibt keine einfache Formel für  $P(T)$ , für entsprechende Nuklide ist man auf die genannten Datenbanken angewiesen. Die daraus mögliche Berechnung von  $S(k)$  hängt von den verwendeten Werten für die Wirkungsquerschnitten  $\sigma_k(E)$  und die Stopping Power ( $dE/dx$ ) ab. Der sechste Schritt des Auswerteverfahrens, die Interpretation des Bremsstrahlungsspektrums verlangt nach einer Möglichkeit die gewonnene Bremsstrahlungsinformation zu charakterisieren. Dazu muss die Form von Bremsstrahlungsspektren bekannt sein. Zwei Methoden, welche für die Beschreibung eines Bremsstrahlungsspektrums verwendet werden können, werden hier untersucht. Es handelt sich um mathematische Formbeschreibungen welche über die Charakterisierung mit Referenzspektren hinaus gehen.

### 7.5.1 Die Parametrisierung

Eine Möglichkeit der Identifikation von  $\beta$ -Strahlern, welche in Kapitel 4.2.6 erwähnt wurde, ist die Beschreibung durch ein Modell.

Dargestellt in Abbildung 7.34 sind zwei Messungen des  $^{170}\text{Tm}$  mit zwei unterschiedlich aktiven Proben, bei ansonsten exakt gleichen Rahmenbedingungen (identische Geometrie, gleiche Messzeit).

Der Unterschied der Zählraten ist eindeutig erkennbar, auch wird deutlich dass je nach Messdauer bzw. Aktivität das ganze Spektrum bis hin zu  $E_{max}$  gar nicht messtechnisch erfasst wird. Die Kenntnis der Endpunktenergie  $E_{max}$  wäre das beste Indiz zur Identifikation der Bremsstrahler. Eine der ersten Ideen die auf Grund der Resultate aus Abbildung 7.34 verfolgt wurden, war eine Parametrisierung der gemessenen Spektren. Hierfür wurde ein Fit anhand der Rohdaten, im Energiebereich 100-300 keV für Probe 1 und 100-500 keV für Probe 2, durchgeführt. Die Auswahl des Cut-Offs hin zu den höheren Energien wurde auf Grund der schlechter werdenden Statistik getroffen. Der Cut-Off bei 100 keV erfolgte wegen den davor anzutreffenden Röntgenlinien. Die Fits an die Messspektren sollen ein mathematisches Hilfsmittel sein, um Aussagen über den Typ



**Abbildung 7.34:** Spektrum der beiden  $^{170}\text{Tm}$ -Probe, sowie angefittete Exponentialfunktionen, gemessen mit identischer Live-Time. Schwarz: Probe 1  $^{170}\text{Tm}$  der Aktivität  $5,7\text{E}+07$  Bq mit Fit (100-500 keV) in Gelb; Rot: Probe 2  $^{170}\text{Tm}$  mit  $2,8\text{E}+06$  Bq mit Fit (100-300keV) in Grau.

des Bremsstrahlers machen zu können. Hier wurde je eine einfache Exponentialfunktion des Typs

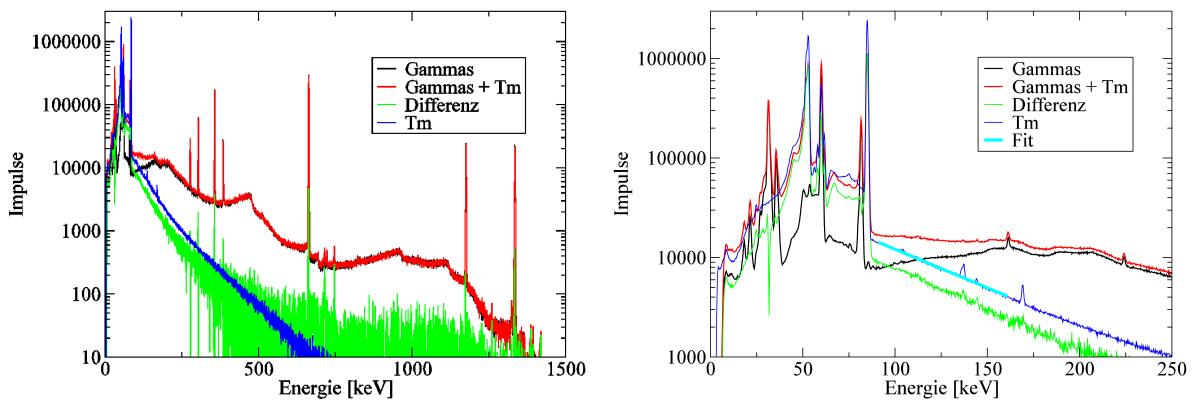
$$C \exp(-Bx) \quad (7.1)$$

angenommen. Dies liefert die Werte in Tabelle 7.5 und einen linearen Verlauf, bei logarithmischer Skala.

**Tabelle 7.5:** Fit-Parameter C und B der Exponentialfunktion.

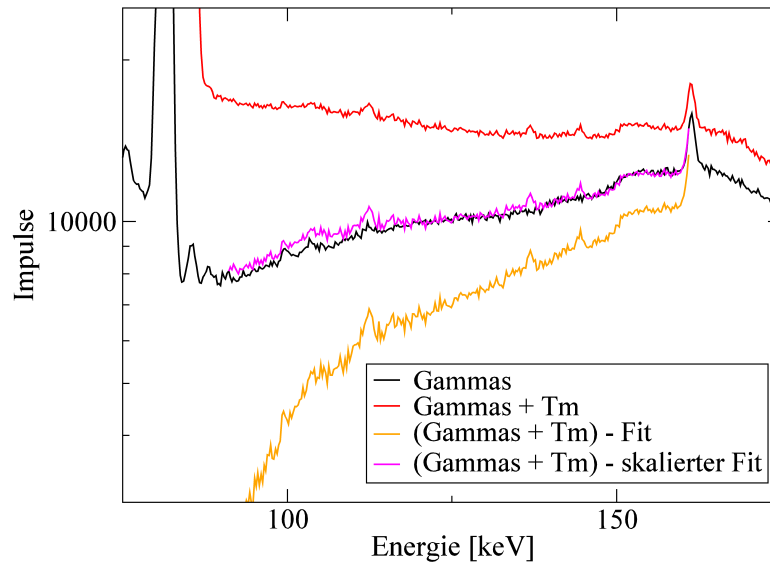
Probe	C	B
1	667,37	0,0165
2	17317	0,0137

Beispielhaft sei hier die oben vorgestellte Parametrisierung an einer realen Messung als Mittel zur Identifikation gezeigt. Abbildung 7.35 zeigt die bekannte Kombination aus den Gamma-Strahlern  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ , einmal mit (rot) und ohne (schwarz)  $^{170}\text{Tm}$  gemessen, sowie die Messung des reinen  $^{170}\text{Tm}$  (blau) und in grün die Differenz aus rotem und schwarzem Spektrum.



**Abbildung 7.35:** Links: Gemessene Gamma-Spektren von  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$  mit  $^{170}\text{Tm}$ . Rechts eine Vergrößerung des interessanten Energiebereichs und zusätzlich in Cyan der Fit einer Exponentialfunktion an das Thulium.

In Abbildung 7.36 zeigt die orange Kurve den Verlauf der Mischmessung abzüglich der Fitfunktion ohne Skalierung, d. h. ohne Berücksichtigung der Aktivität des  $^{170}\text{Tm}$ . Ihr Verlauf weicht von der Messung des Gamma-Strahles (schwarz Linie) ab, spiegelt aber bereits den tatsächlichen Verlauf grob wieder.



**Abbildung 7.36:** Ergebnisse der Subtraktion der Modellfunktion (Cyan aus Abbildung 7.35) für das  $^{170}\text{Tm}$  vom Mischspektrum.

In einer zweiten Auswertung wurden sowohl der leicht unterschiedliche Abstand des  $^{170}\text{Tm}$  in der Einzelmessung und in den Messungen mit den  $\gamma$ -Strahlern berücksichtigt. Hierfür wurden die Zählraten bei 91 keV zwischen der  $^{170}\text{Tm}$ -Messung und dem Differenzspektrum ausgewertet und in einem skalaren Vorfaktor für die Exponentialfunktion berücksichtigt. Das Ergebnis (Abbildung 7.36, in Magenta) zeigt, dass diese einfache Modellfunktion des  $^{170}\text{Tm}$  nach Subtraktion vom Mischspektrum das Ergebnis einer entsprechenden Messung ohne Bremsstrahler bereits sehr gut beschreibt.

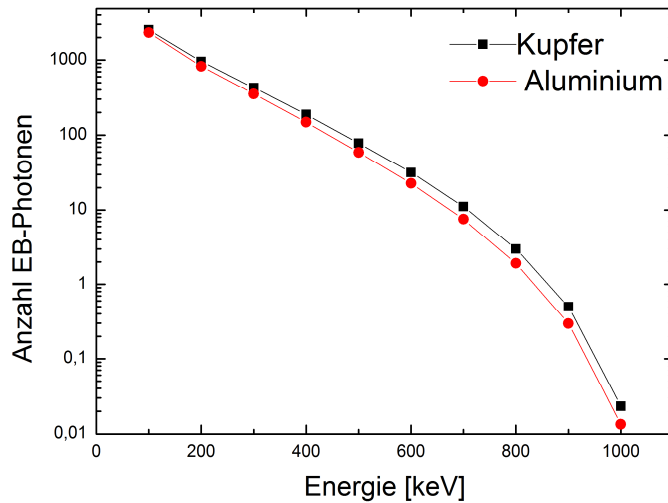
## 7.5.2 Berechnung: Vom Elektronen- zum Photonenspektrum

Mit Hilfe der Formeln 2.16 und 2.18 kann das Elektronen-Bremsstrahlungsspektrum  $S(k)$  für dicke Absorber berechnet werden. Damit lässt sich die Zahl der pro Einheit Elektronen produzierten Bremsstrahlungs-Photonen gewinnen.

In Abbildung 7.37 sind für  $^{170}\text{Tm}$  [49] die beiden EB-Spektren für Aluminium und Kupfer berechnet. Die  $\sigma$ -Werte stammen aus [57] und die zugehörige Stopping Power aus [22]. Die Rechnung erfolgte mit Hilfe des Programms MATLAB. Im Anhang B sind die Skripte dieser Berechnung.

Das Integral unter der Kurve entspricht, bei Normierung des Elektronen-Spektrums  $P(T)$ , der Anzahl der erzeugten EB-Photonen. Hier werden im Kupfer 424,7 und im Aluminium 374,1 EB-Photonen pro Einheitsspektrum  $^{170}\text{Tm}$  erzeugt. Das heißt, dass bei Kupfer 13,5% Prozent mehr Photonen und somit Intensität erzeugt werden.

Die Kurven ähneln sich stark, ihr Verlauf ist jedoch nicht identisch. Das könnte an der Interpolation der  $\sigma$ -Matrix oder an die ursprünglichen  $\sigma$ -Werten selbst liegen. Jedoch zeigte sich in Kapitel 2.2.3, dass die Form der Bremsstrahlung auch mit  $Z$  variiert.



**Abbildung 7.37:** Berechnung von  $S(K)$  aus dem Elektronen-Spektrum für  $^{170}\text{Tm}$  nach Kap 2.2.3 für Aluminium (rot) und Kupfer (schwarz).

Das obige Ergebnis ist ein weiteres Indiz dafür, dass sowohl das Kupfer als auch das Aluminium bei dem in Abschnitt 7.3.2 ausgewerteten  $^{170}\text{Tm}$  tatsächlich nur Absorber waren und diese bei der Produktion der Bremsstrahlung keine Rolle spielten. Vergleich hierzu nochmals die Abbildungen 6.16 und 7.23.

An diesem Punkt sei nochmals auf die Wichtigkeit hingewiesen, dass man klar zwischen Erzeuger- und Absorbermatrix trennt. Als Erzeugermatrix ist immer das Element des  $\beta$ -strahlenden Nuklids selbst beteiligt, sowie dessen unmittelbare Verpackung. Für typischen Abfall ist davon auszugehen, dass es sich in aller Regel dabei um Stahl oder Blei, manchmal auch Glas oder PE handelt. Zwei weitere Stoffe Beton und Bitumen können bei entsprechender Konditionierung ebenfalls auftreten. Als Absorber Matrizen tauchen in der Regel Beton, Blei, Stahl und Bitumen auf.

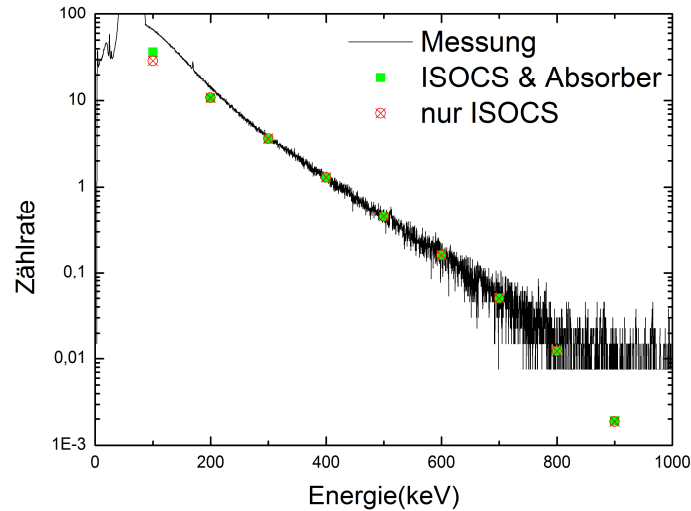
Der Vergleich der gezeigten  $S(k)$ -Rechnung mit der Messung lässt den Schluss zu, dass das Kupfer und das Aluminium nicht mehr zur Produktion der Bremsstrahlung gedient haben, da sich sonst die Intensität des Spektrum hätte ändern müssen. Die beiden Materialien traten nur als Absorber in Erscheinung. Diese Erkenntnis kann auf alle anderen gezeigten Messungen bei denen ein Absorber zum Einsatz kam verallgemeinert werden. Es wurde bei keiner Messung eine Intensitätsänderung, die nicht durch Absorptionseinflüsse zu erklären war, beobachtet. Die Bestimmung des Verhältnisses der Intensitäten zwischen den Erzeugermaterialien, das die  $S(k)$ -Rechnung bietet, kann bei einer exakten Quantifizierung heran gezogen werden, sofern die Erzeuger bekannt sind.

Ein direkter Vergleich zwischen den durch obige Rechnung erhaltenen Spektren und den experimentellen wurde unternommen. Dazu wurde die einfache Annahme gemacht, dass sich das Messspektrum  $M(k)$  wie folgt zusammensetzt:

$$M(k) = S(k)\varepsilon_{Eff}(k)e^{-\frac{\mu}{\rho}(k)\rho x} \quad (7.2)$$

Dabei wurden  $E_{Eff}$  und der Absorber-Term auf zwei unterschiedlichen Wegen ermittelt. Eine Berechnung des Absorbers und der Detektoreffektivität erfolgte komplett in ISOCS, bei der

anderen wurde nur die Effizienz mit ISOCS berechnet der Absorbereinfluss separat in Origin.



**Abbildung 7.38:** Vergleich zwischen Messung und  $S(k)$ -Rechnung (9 Punkte mit 100 keV-Intervall). Die original Messung ist in schwarz dargestellt. Die mit Punkten versehen Kurven zeigen die Rechnung in den (im Text bezeichneten) beiden Varianten. Messung und Rechnung wurden bei 500 keV angefitet.

Bei niedrigen Energien weicht die Rechnung deutlich von der Messung ab, vgl. Abbildung 7.38. Jedoch sind die Annahmen, die mit der Gleichung 7.2 getroffen wurden, nicht richtig und wurden hier nur als Test verwendet. Die eigentliche Gleichung muss eine Faltung enthalten und ergibt sich zu:

$$M(k) = \int_0^{\infty} R(k, k_0) S(k_0) dk_0 \quad (7.3)$$

Wobei  $R(k, k_0)$  hier die „apparatus response function“ ist, mehr Details auch zur möglichen Bestimmung von  $R$  finden sich in Kapitel 2.

Die Matrix  $R(k, k_0)$  ist nicht trivial zu erhalten, und messtechnisch nur durch erheblichen Aufwand zu gewinnen. Ein weiteres Problem ist, das für jede Punkt im Raum, an dem gemessen wird ein eigens  $R$  existiert. Mit  $R$  könnten auch die Anteile der anderen Bremsstrahlungsarten aus der Messungen extrahiert werden, falls nach der Rechnung mit Gleichung 7.3 noch Abweichungen bestehen. Diese mathematische Entfaltung des Spektrums wäre das ideale Mittel generell für die  $\gamma$ -Spektroskopie. Mit geeigneter Simulation könnte  $R$  für eine Messung an einem festen Messpunkt berechnet werden. In der Praxis am mobilen  $\gamma$ -Scanner lässt sich das nicht realisieren.

Jedoch könnten Ergebnisse der  $S(k)$ -Rechnung als Input bei zukünftigen Simulationen dienen, und dort, durch den, je nach Programm, nicht mehr benötigten Simulationsschritt der Bremsstrahlungserzeugen, Rechenzeit sparen. Auch kann mit ihnen die Form der Spektren bei unterschiedlichen  $Z$  untersucht werden, vergleiche hierzu Kapitel 2.2.3.

Der Schritt der von der  $S(k)$ -Rechnung zu einem, für den jeweiligen Detektor, passendem Referenz-Bremsstrahlungsspektrum führt, wäre der beste Schlüssel für die Identifikation der  $\beta$ -Strahler. Eine nach aktuellem Stand verlässliche Methode der Identifikation und das dazu passende Auswerteverfahren wird im nächsten Abschnitt diskutiert.

## 7.6 Anwendung des Auswerteverfahrens zur Identifikation von Beta-Strahlern

### 7.6.1 Allgemeines

In diesem Abschnitt wird das in Kapitel 4 vorgestellte Verfahren an Messungen des stationären HPGe-Messplatzes umgesetzt. Die bisher gezeigten Korrekturen und die Erstellung der Differenzspektren wurden manuell durchgeführt. Hier kommt ein einfaches aber automatisiertes Verfahren zum Einsatz, das in der Programmiersprache R umgesetzt wurde. Hierbei ging es um das Auffinden und die Identifikation von  $\beta$ -Strahlern in Versuchsaufbauten ohne zusätzliche Absorber. Dass die Korrektur von Absorbern funktioniert wurde bereits gezeigt, hier wurde darauf verzichtet, um eine mögliche Fehlerquelle auszuschließen. In einer Version des Test wurde der Einfluss des Probe-Detektor-Abstandes in Form von Referenzspektren der Rückstreupeaks berücksichtigt.

### 7.6.2 Modell in R zur automatisierten Beta-Strahler-Bestimmung

R [58] ist eine freie Programmiersprache die sich zum Standard bei Lösen statistischen Problemen entwickelt. Die Wahl zum Test des „automatisierten“ fiel auf R da die gesammelten Spektren automatisch, statistisch ausgewertet werden sollten. Das hier gezeigte Verfahren beinhaltet die Schritte drei bis sechs des vorgestellten Verfahrens zur Identifikation von  $\beta$ -Strahlern, wobei diese parallel ausgeführt werden, da diese Schritte mathematisch dem Lösen eines linearen Gleichungssystems entsprechen, wenn ein passendes Modell gewählt wird.

Das Spektrum der Gesamtmessung  $G(E)$  für jede Energie  $E$  lässt sich als Linearkombination aus Untergrund und Spektren der Einzelmessungen  $x_j(E)$  darstellen.

Das Kriterium welches im Modell angewandt wird: Minimiere quadratischen Abstand  $L(G; x; \alpha)$  der Daten zu einer Linearkombination der Spektren der Einzelmessungen  $x_j(E)$ .

$$L(G; x; \alpha) = \sum_E \left( G(E) - \sum_j \alpha_j x_j(E) \right)^2 \quad (7.4)$$

Das eigentlich angemessenere Kriterium im vorliegendem Fall lautet wie folgt: Maximiere Anpassung der Daten an eine Poisson-Verteilung deren Rate für jedes  $E$  sich aus einer Linearkombination der Spektren der Einzelmessungen  $x_j(E)$  ergibt. Das heißt, der Fokus liegt weniger auf der exakten Modellierung der Peak-Werte, als mehr auf einer guten Modellanpassung auch für niedrige Impulszahlen:

$$y(E) \sim Po \left( \sum_j \alpha_j x_j(E) \right) \quad (7.5)$$

Dieser Ansatz scheitert jedoch auf Grund von numerischen Problemen, da R offensichtlich Probleme mit Daten hat, die über viele Größenordnungen schwanken, was hier durch die Impulszählraten an den Peaks und die wenigen Impulse auf den Kanälen dazwischen zutrifft. Für das Modell müssen die jeweiligen Gewichtungsfaktoren  $\alpha_j, j = 0, 1, \dots, J$  geschätzt werden.  $J$  entspricht hier der Anzahl aller Spektren die benötigt werden, um das zu analysierende Gesamtspektrum zu rekonstruieren.



Die Rechnung erfolgt anhand zweier unterschiedlicher Modelle (Kleinste-Abstand-Quadrat und LASSO<sup>7</sup>) unter der Bedingung, dass alle  $\alpha_j$  positiv sind, d.h. die Lösung des zu lösenden Optimierungsproblems ist (mit  $\operatorname{argmin}$ <sup>8</sup>):

$$\operatorname{argmin}_{\alpha; \alpha \geq 0} L(y; x; \alpha) \quad (7.6)$$

bzw. für die LASSO-penalisierte Variante:

$$\operatorname{argmin}_{\alpha; \alpha \geq 0} \left( L(y; x; \alpha) + \lambda \sum_j^J |\alpha_j| \right) \quad (7.7)$$

Der Gewichtungsfaktor  $\lambda$  steuert die Abwägung zwischen einem einfacherem Modell mit mehr Koeffizienten  $\alpha_j$  gleich Null und besserer Anpassung an die Daten und wird aus selbigen geschätzt. Die LASSO Methode ist dafür verantwortlich, dass Koeffizienten leichter zu Null konvergieren. Im Gegensatz zur kleinsten-Abstand-Quadrat Methode, sind  $\alpha_j = 0$  häufiger.

Bei dem Modell wurde die Nebenbedingung, dass die Rückstreuenspektren, welche den Differenzspektren aus Kapitel 6.4.3 Abbildung 7.4 entsprechen, evtl. negativ sein können, nicht berücksichtigt.

### 7.6.3 Vorverarbeitung der Daten und Anmerkungen

Explizit wird hier nicht ein maximales Peakfitting betrieben, sondern statistisch gestaltet es sich so, dass jeder Kanal gleich behandelt werden soll unabhängig seiner Zählrate. Mit Formel 7.5 wäre das absolut gewährleistet gewesen, durch die Kleinsten-Abstand Quadrate findet eine leichte Bevorzugung von Kanälen mit hoher Zählrate statt. Völlige Unabhängigkeit würde den tatsächlichen Vorgaben gerechter werden, da Peaks im Vergleich zu den Kanälen die nur Untergrund bzw. Bremsstrahlung zeigen nicht bevorzugt werden.

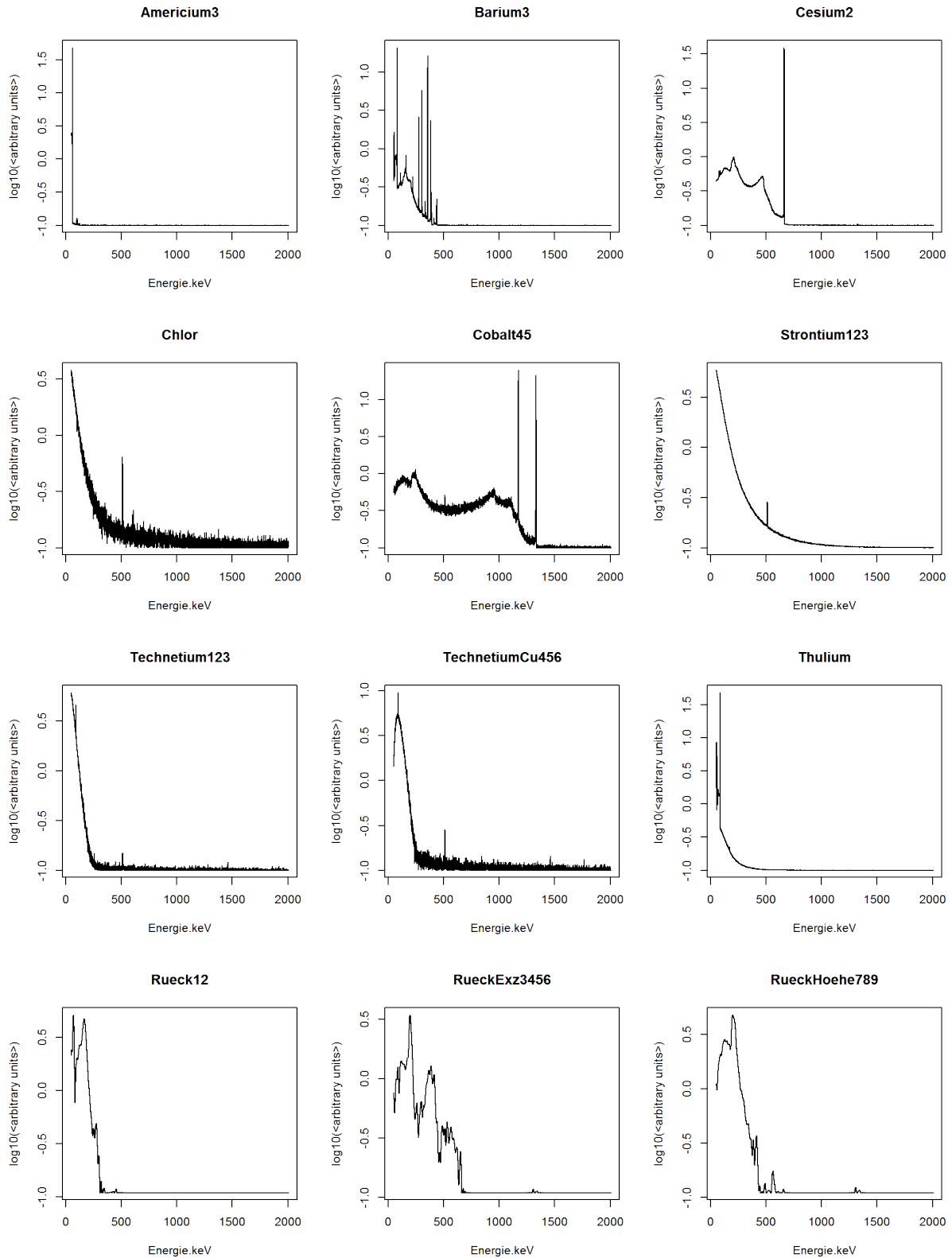
Es wurden Messungen des stationären HPGe-Messplatzes ausgewertet. Als Referenzspektren der  $\gamma$ -Strahlern dienten verschiedene Spektren der Nuklide  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ . Als Referenzspektren der Bremsstrahler wurden verschiedene Spektren der Nuklide  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{170}\text{Tm}$  eingesetzt. Des Weiteren wurden die im Kapitel 6.4.3 beschriebenen Rückstreupeakspektren in manchen Durchläufen verwendet.

Falls nötig werden die Werte von  $y(E)$  und  $x_j(E)$  auf ein gemeinsames Gitter von  $E$ -Werten interpoliert. Modelliert wird nur für  $E > 50$  keV bzw.  $E > 90$  keV. Um Schätz-Artefakte zu vermeiden müssen die Input-Spektren  $x_j$  auf ein gemeinsames Niveau skaliert werden (sonst werden tendenziell Input-Spektren mit höheren Werten öfter mit Gewichten  $\alpha > 0$  assoziiert, da der Betrag von  $\alpha$  die Penalisierung bestimmt, außerdem ist das zu lösende Gleichungssystem numerisch besser konditioniert.) Das heißt, die Koeffizienten sind nur qualitativ zu interpretieren.

Messungen der Einzel-Spektren die zu ähnlich sind wurden nach der Skalierung zu ihrem Mittelwert zusammengefasst. Abbildung 7.39 zeigt die gesamten Referenzspektren. Als zu analysierende Spektren wurden Mischspektren von  $^{170}\text{Tm}$  in unterschiedlichen Kombinationen mit den erwähnten  $\gamma$ -Strahlern untersucht. Mit den zusätzlichen Referenz-Bremsstrahler  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{99}\text{Tc}$  sollte getestet werden, ob das Verfahren in der Lage ist in einem Spektrum mit diskreten

<sup>7</sup>LASSO steht für Least Absolute Shrinkage and Selection Operators. Die Schätzung des LASSO-Modells mit der Nebenbedingung  $\alpha > 0$  erfolgt mit dem R-Paket `glmnet` [59].

<sup>8</sup> $f(x_{\min}) = \min f(x) \Leftrightarrow x_{\min} = \operatorname{argmin} f(x)$  mit  $x \in D$  des Definitionsbereichs  $D$  der Funktion  $f$ .



**Abbildung 7.39:** In dieser Übersicht sind alle verwendet Referenzspektren abgebildet.

Linien, den kontinuierlichen Anteil des  $\beta$ -Strahlers richtig zu erkennen. Dies entspricht den tatsächlich anzutreffenden realen Gegebenheiten, die  $\gamma$ -Strahler sind bekannt und die Bremsstrahler müssen gefunden werden.

## 7.6.4 Test des Auswerteverfahrens

An zwölf Spektren kam das Auswerteverfahren zum Einsatz<sup>9</sup>. Die gezeigten Tests verwenden die vier komplexesten Messungen, die jeweils alle vier  $\gamma$ -Nuklide der Amersham Kalibrationsquellen enthalten. Die folgenden Daten zeigen eine Messungen von  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  einmal mit das andere mal ohne  $^{170}\text{Tm}$ . Es wurde jeweils eine Messung mit 5400 Sekunden und eine mit 3600 Sekunden durchgeführt. Die zwei Messreihen lagen 279 Tage auseinander, d. h. bei der zweiten Reihe betrug die  $^{170}\text{Tm}$  Aktivität nur noch 22% im Vergleich zu ersten Messungen. Die gesamte Aktivität der  $\gamma$ -Strahler hat sich auf Grund der relativ hohen Halbwertszeiten nicht merklich verändert. Die Messungen mit 3600 Sekunden wurden später durchgeführten.

In einem ersten Test wurde kein physikalisches Hintergrundwissen vorausgesetzt, d. h. es wurden immer alle Daten zugelassen, also auch Spektren von  $\gamma$ -Nukliden welche gar nicht identifiziert wurden. So ließ sich bei Spektren die nur mit  $^{60}\text{Co}$  und  $^{170}\text{Tm}$  aufgenommen wurden, in der Rekonstruktion auch  $^{133}\text{Ba}$  und  $^{137}\text{Cs}$  finden, welches zu Lasten der  $^{170}\text{Tm}$  Konzentration ging. Auch wurde in Spektren die  $^{60}\text{Co}$  enthielten selbiges dort nicht gefunden. Das zeigt zwar, dass Peaks tatsächlich nicht bevorzugt behandelt werden, führte aber als Konsequenz zu einer Erweiterung des verwendeten R-Codes:

So wurde für die folgenden Ergebnisse der Code so erweitert, dass es für die Spektren der  $\gamma$ -Nuklide erlaubt ist jeweils um  $\pm 15$  Kanäle auf der Energieachse zu wandern. Somit wurde das  $^{60}\text{Co}$  in den vorhin genannten Fällen gefunden. Erlaubt blieb weiterhin, dass  $\gamma$ -Nuklide gefittet werden, auch wenn diese im tatsächlichen Spektrum nicht vorkommen. So wurde  $^{241}\text{Am}$  in 11 von 12 untersuchten Spektren gefunden, obwohl es nur in den 4 gezeigten Messungen vorhanden war.

Erste Durchläufe fanden ohne eine Cut-Off Energie statt. Zuletzt wurden 50 keV und wahlweise 90 keV als Grenze für die minimale Energie gesetzt. Bei letzterer wurde die Daten für das  $^{241}\text{Am}$  überflüssig und als Eingabedateien für das Verfahren verworfen. Für jede Cut-Off Energie wurde einmal mit und einmal ohne Rückstreupeak-Spektren ein Durchlauf unternommen. Die Rückstreupeak-Spektren wurden unter anderem aus den in Kapitel 7.2.2 gezeigten Differenzspektren gewonnen.

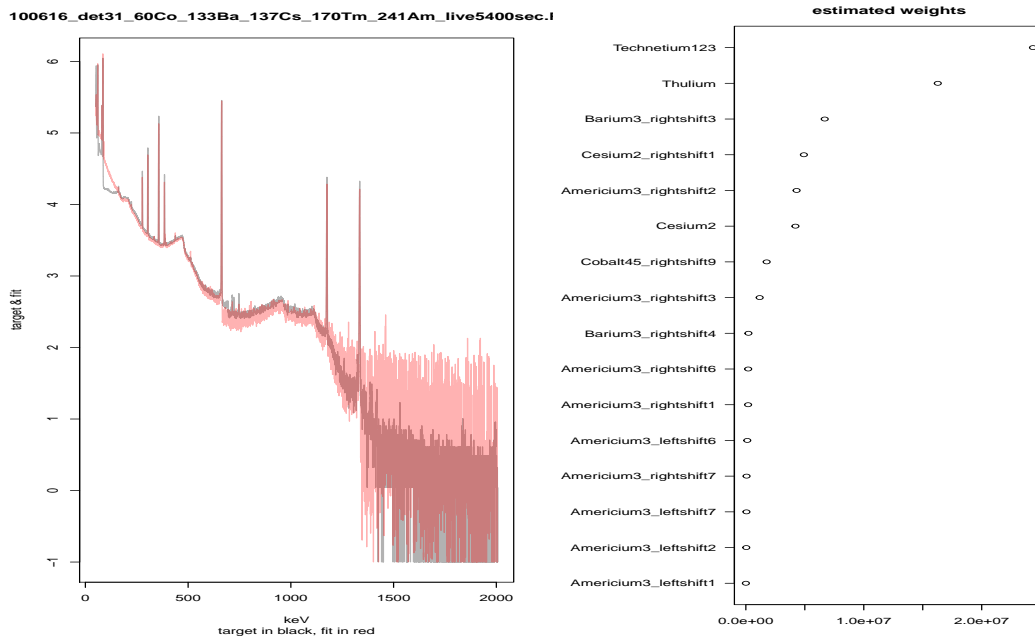
### Cut-Off bei 50 keV ohne Rückstreuung

Die in diesem und in den folgenden Abschnitten gezeigten Abbildungen zeigen die Ergebnisse der LASSO-Methode. Auf der rechten Seite der folgenden Abbildungen ist der Gewichtungsfaktor  $\alpha$  mit absteigender Größe für die identifizierten Spektren dargestellt. Spektren deren  $\alpha$  auf Null konvergiert ist, sind in den entsprechenden Übersichten nicht aufgeführt.

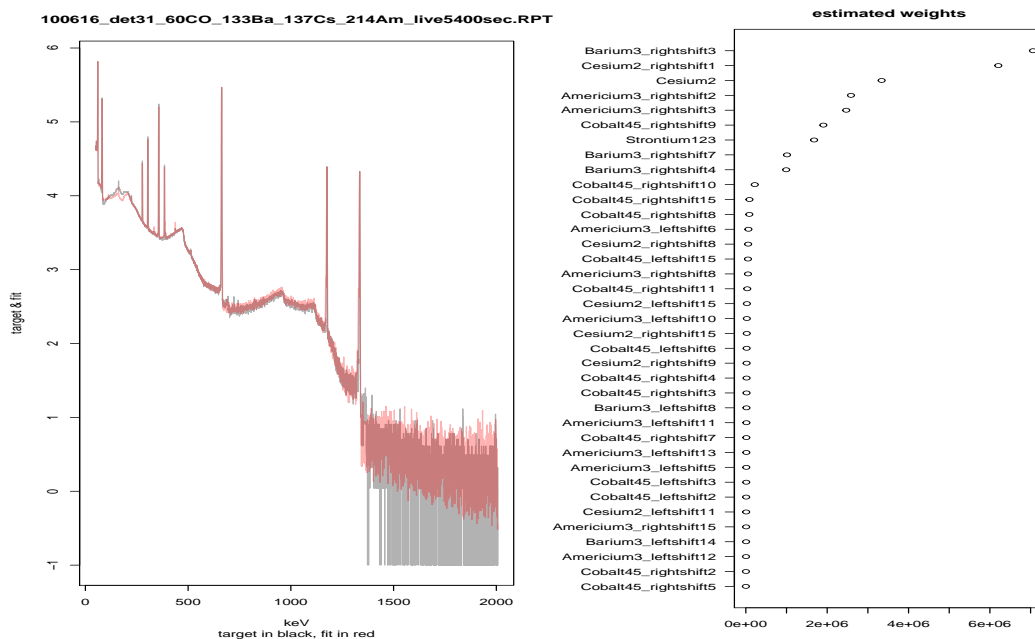
Abbildung 7.40 zeigt die Messung (schwarz) des  $^{170}\text{Tm}$  mit den vier  $\gamma$ -Strahlern sowie den Fit (rot) mit einer Cut-Off Energie von 50 keV. Rückstreuspektren waren bei dieser Anpassung nicht zugelassen. Man erkennt, dass im Bereich zwischen dem 84,3 keV Peaks des  $^{170}\text{Tm}$  und der Compton-Kante der 302,9 keV  $^{133}\text{Ba}$ -Linie eine deutliche Abweichung zwischen Fit und Messung bestehen. Als  $\beta$ -Strahler wurden  $^{170}\text{Tm}$  und  $^{99}\text{Tc}$  identifiziert. Das  $\alpha$  des  $^{99}\text{Tc}$  war dabei um den Faktor 1,5 höher als das des  $^{170}\text{Tm}$ .

---

<sup>9</sup>Die im folgenden nicht näher gezeigten acht Messungen sind 5 Messungen mit der Strahlerkombination mit der  $^{60}\text{Co}$  Amersham Kalibrationsquelle und  $^{170}\text{Tm}$  unterschiedlicher Aktivität mit Messzeiten zwischen 180 und 5400 Sekunden, eine Messung mit der  $^{137}\text{Cs}$  Amersham Kalibrationsquelle mit  $^{170}\text{Tm}$ . Dem  $^{60}\text{Co}$  wurde bei den Messung der Vorzug gegenüber  $^{137}\text{Cs}$  gegeben, da die Energien seiner Linien über der  $E_{max}$  des  $^{170}\text{Tm}$  liegen und dies somit besser überdeckt. Eine Messung reines  $^{60}\text{Co}$  und eine Messung mit der Kombination  $^{60}\text{Co}$  und  $^{137}\text{Cs}$  wurden zusätzlich ausgewertet.



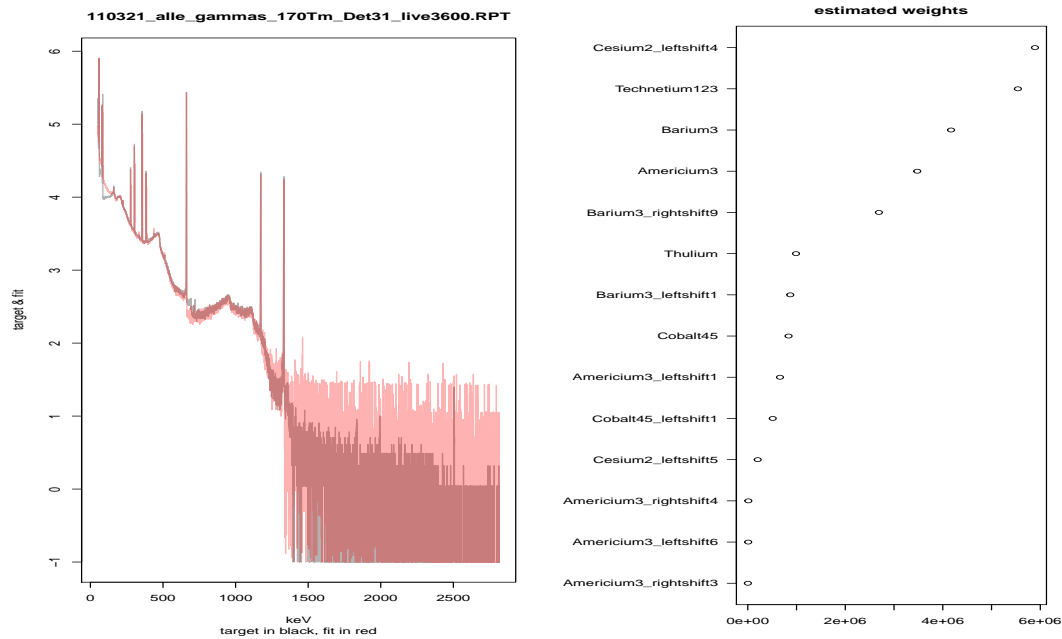
**Abbildung 7.40:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.



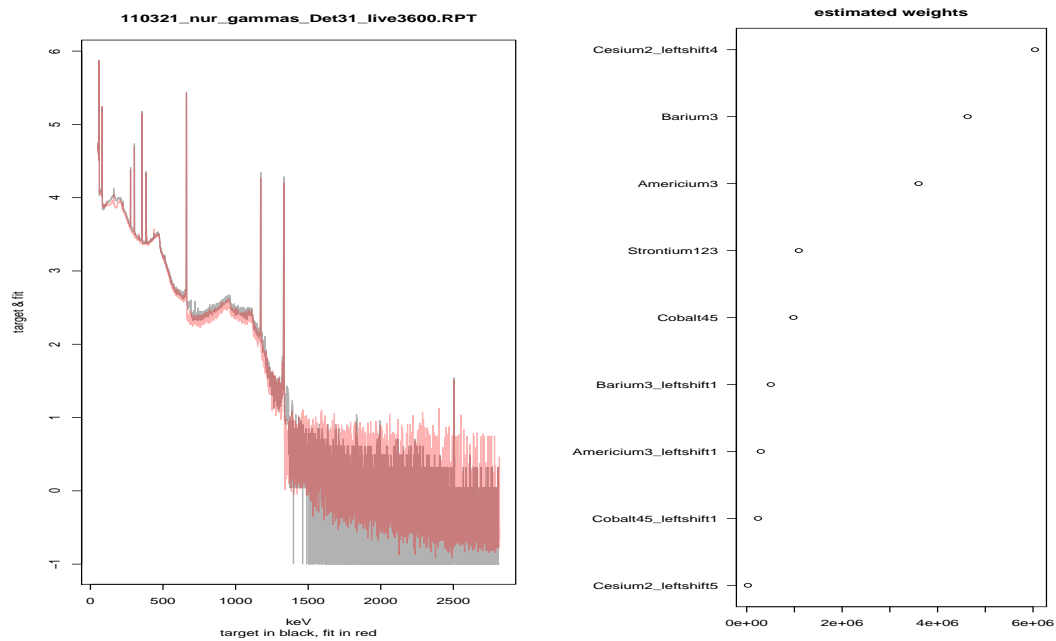
**Abbildung 7.41:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.

Abbildung 7.41 zeigt die Messung (schwarz) der vier  $\gamma$ -Strahler sowie den Fit (rot; Cut-Off 50 keV ohne Rückstreuung). Hier treten keine Abweichung im Bereich zwischen 84 keV und der Compton-Kante des 302,9 keV der  $^{133}\text{Ba}$ -Linie auf. In geringer Menge wurde  $^{90}\text{Sr}$  als einziger  $\beta$ -Strahler gefunden, sein  $\alpha$  ist um einen Faktor 10 kleiner als das der gesamten  $\beta$ -Strahler von obiger Messung.

In Abbildung 7.42 ist die Messung (schwarz) des  $^{170}\text{Tm}$  mit den vier  $\gamma$ -Strahlern bei kürzer Messzeit und verringerter  $^{170}\text{Tm}$  Aktivität zu sehen. Der Fit zeigt eine ähnliche Abweichung zur Messung wie die Ergebnisse aus Abbildung 7.40. Die gefunden  $\beta$ -Strahler sind  $^{170}\text{Tm}$  und  $^{99}\text{Tc}$ , das  $\alpha$  des  $^{99}\text{Tc}$  ist um einen Faktor 5,6 größer als das des  $^{170}\text{Tm}$ .

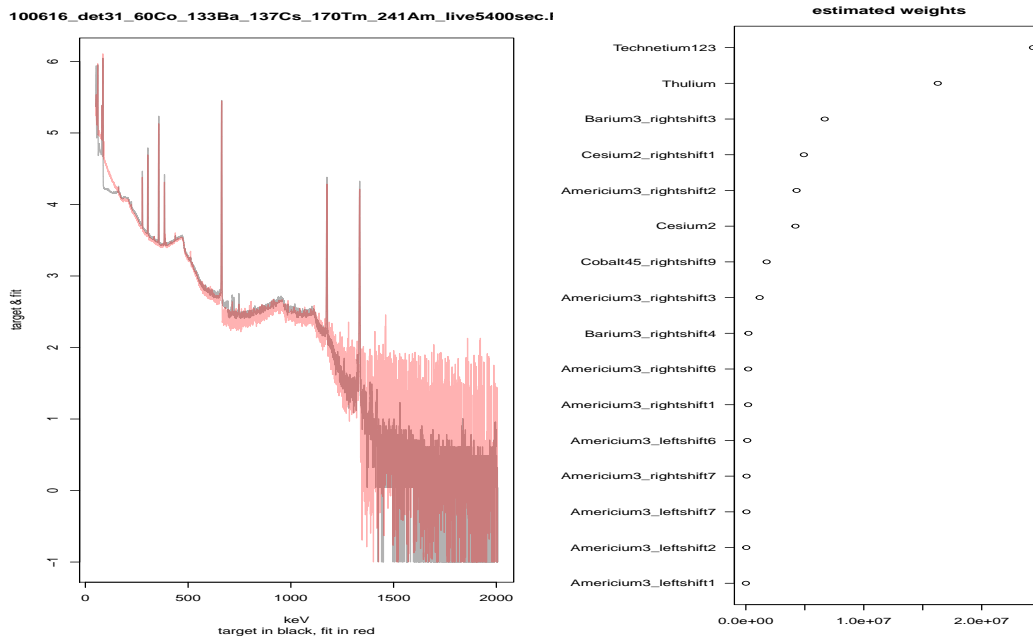


**Abbildung 7.42:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.



**Abbildung 7.43:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.

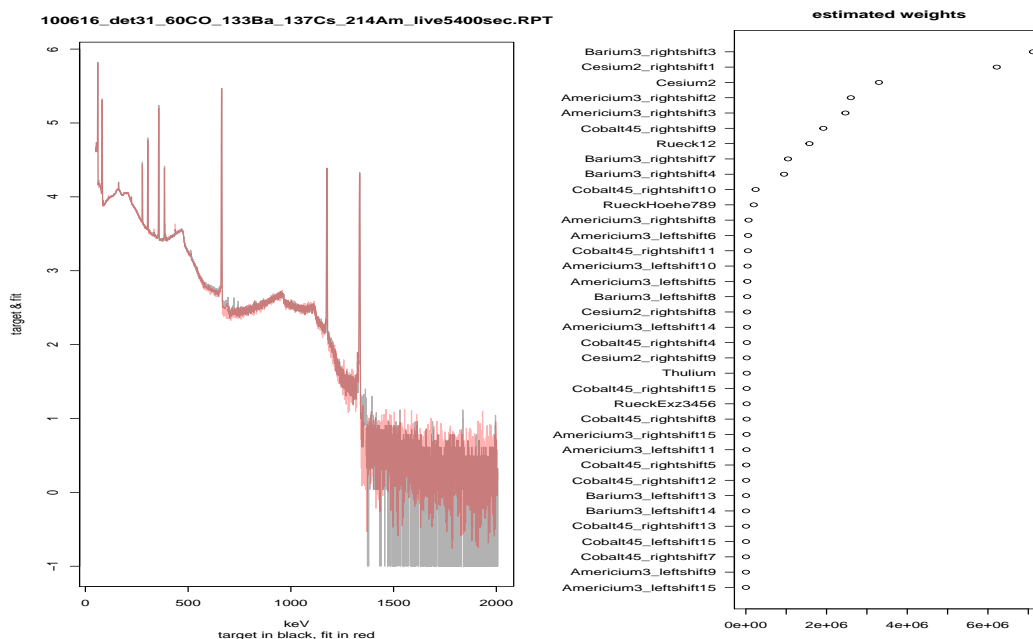
Der Vergleich zwischen Messung (schwarz) der vier  $\gamma$ -Strahler und ihrer Rekonstruktion durch das LASSO-Modell (rot) ohne Rückstreuerspektren zeigt Abbildung 7.43. Hier wurde, ebenso wie bei der obigen Messung ohne  $^{170}\text{Tm}$ , etwas  $^{90}\text{Sr}$  im Modell angepasst, das den einzigen gefundenen  $\beta$ -Strahler darstellt.



**Abbildung 7.44:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme erlaubt.

### Cut-Off bei 50 keV mit Rückstreuung

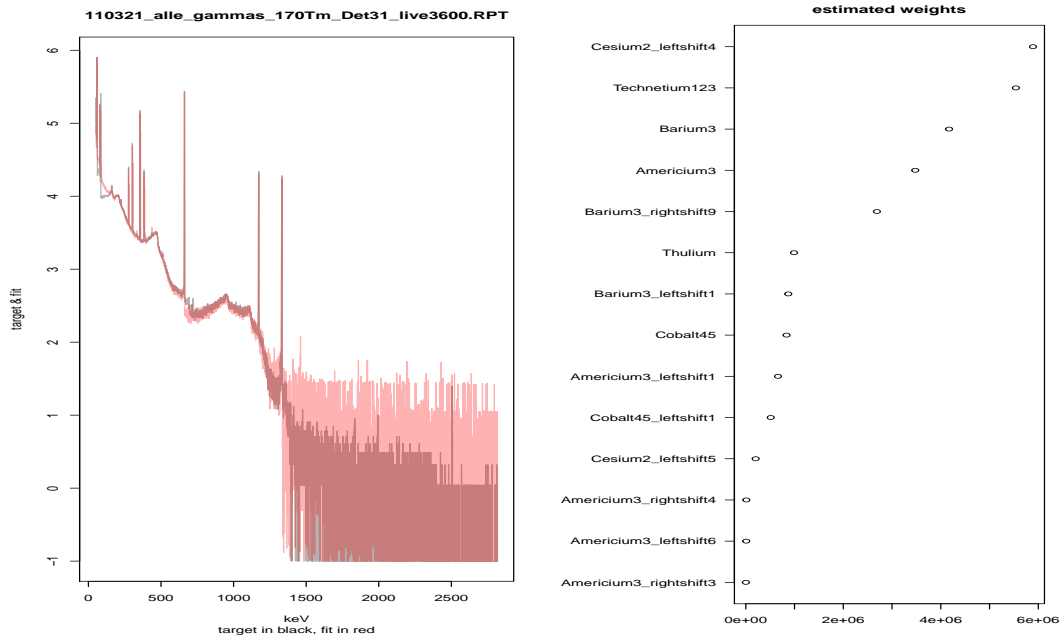
Abbildung 7.44 zeigt die Messung (schwarz) des  $^{170}\text{Tm}$  mit den vier  $\gamma$ -Strahlern sowie den Fit (rot) mit einer Cut-Off Energie von 50 keV und mit erlaubten Rückstreuerspektren der einzelnen Spektren daran. Es zeigt sich, im Bereich zwischen der 84,3 keV Linie des  $^{170}\text{Tm}$  und der Compton-Kante der 302,9 keV  $^{133}\text{Ba}$ -Linie, die gleiche Abweichung zwischen Fit und Messung wie bei der Anpassung ohne die Rückstreuerspektren. Alle  $\alpha_j$  gleichen exakt denen des Fittings ohne Rückstreuerspektren.



**Abbildung 7.45:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme erlaubt.

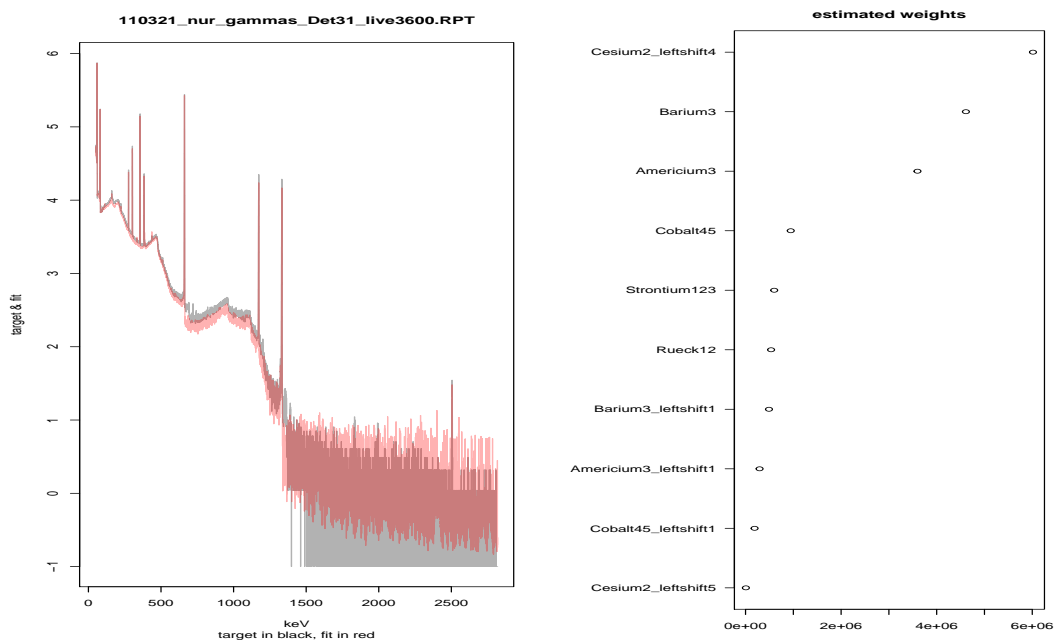
Abbildung 7.45 zeigt die Messung (schwarz) der vier  $\gamma$ -Strahlern sowie den Fit (rot; Cut-Off 50

keV mit Rückstreuung). Hier treten keine Abweichung im Bereich zwischen 84,3 keV und der Compton-Kante der 302,9 keV  $^{133}\text{Ba}$ -Linie auf. In geringer Menge wurde  $^{170}\text{Tm}$  als einziger  $\beta$ -Strahler gefunden, im Vergleich zur Messung mit selbigen jedoch mit einem um den Faktor 1000 niedrigeren  $\alpha$ . Die  $\alpha$  der Rückstreuterme konvergierten nicht zu Null, ihre Anteil beträgt 6,4 % gemessen an der Summe aller einzelnen  $\alpha$ -Werte.



**Abbildung 7.46:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme erlaubt.

Für die in Abbildung 7.46 gezeigten Rekonstruktion wurden in Analogie zu obiger Messung mit  $^{170}\text{Tm}$  die exakt gleichen  $\alpha_j$  bestimmt, wie in dem Modell ohne Rückstreuung.

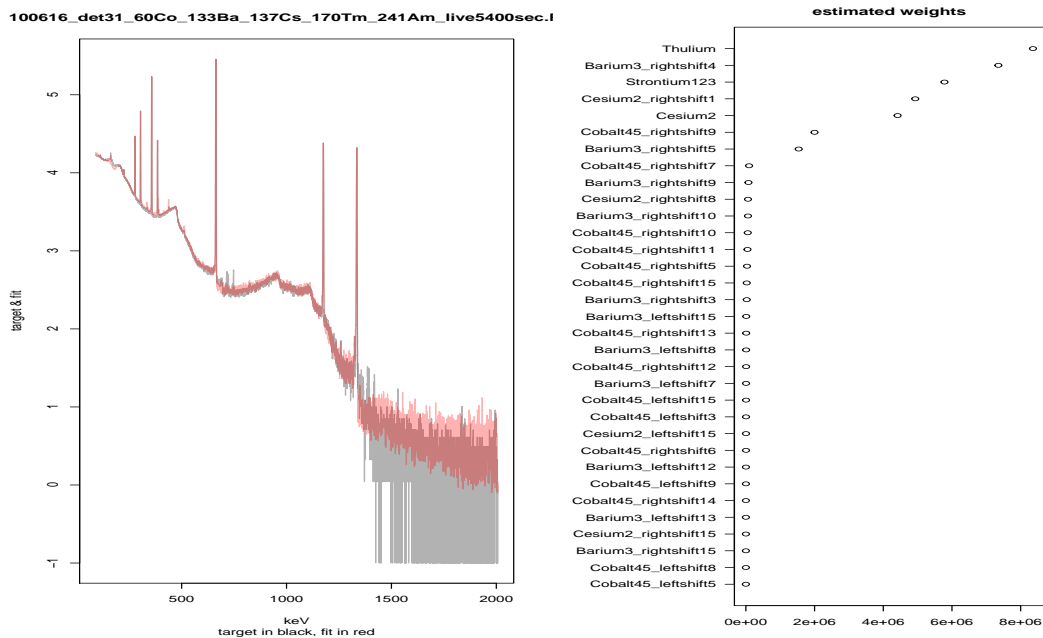


**Abbildung 7.47:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 50 keV; Rückstreuterme erlaubt.

Abbildung 7.47 zeigt Rekonstruktion und Messung der Strahler  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ . In geringer Menge wurde  $^{90}\text{Sr}$  als einziger  $\beta$ -Strahler bei der Rekonstruktion angepasst, im Vergleich

zur Messung mit dem  $\beta$ -Strahler  $^{170}\text{Tm}$  mit einem um den Faktor 10 niedrigeren  $\alpha$ . Die  $\alpha$  der Rückstreuterme konvergierten nicht zu Null, ihre Anteil beträgt 3,5 % gemessen an der Summe aller einzelnen  $\alpha$ -Werte.

### Cut-Off bei 90 keV ohne Rückstreuung



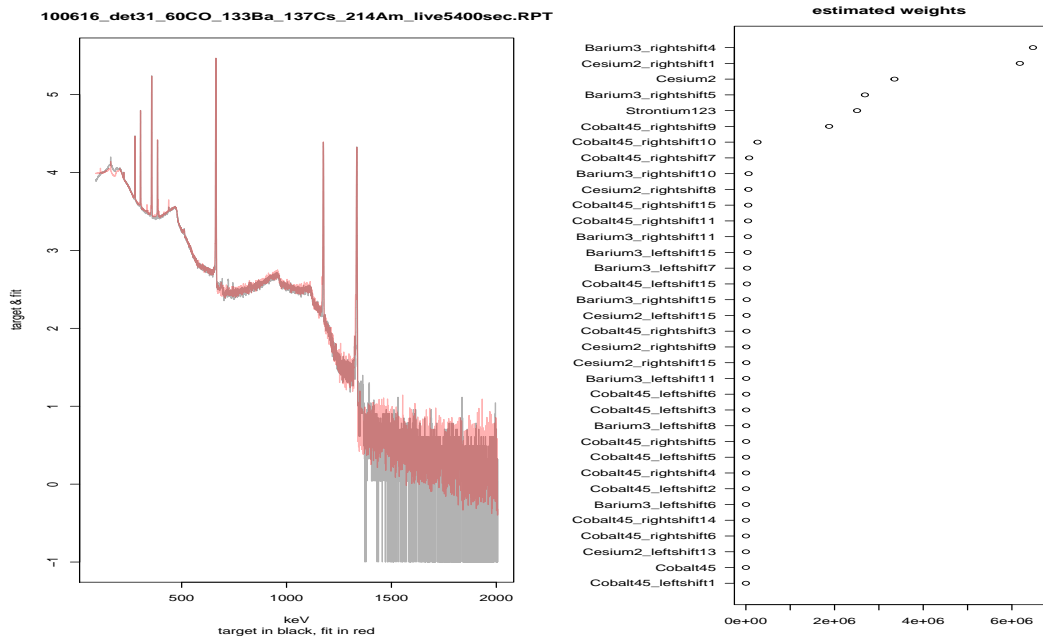
**Abbildung 7.48:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.

Abbildung 7.48 zeigt die Messung (schwarz) des  $^{170}\text{Tm}$  mit den vier  $\gamma$ -Strahlern sowie den Fit (rot) mit einer Cut-Off Energie von 90 keV. Rückstreuspektren waren bei dieser Anpassung nicht zugelassen.  $^{170}\text{Tm}$  wurde als stärkster  $\beta$ -Strahler identifiziert, darüber hinaus wurde  $^{90}\text{Sr}$  im Modell mit angepasst, sein  $\alpha$  war dabei um einen Faktor 1,5 kleiner als der des  $^{170}\text{Tm}$ . Abweichungen zwischen 90 keV und der Compton-Kante der 302,9 keV  $^{133}\text{Ba}$ -Linie fallen im Vergleich mit dem Cut-Off bei 50 keV deutlich geringer aus. Im Vergleich dazu sind sie bei den Ergebnissen der „nur“  $\gamma$ -Strahler deutlich gestiegen, vgl. Abbildung 7.49.

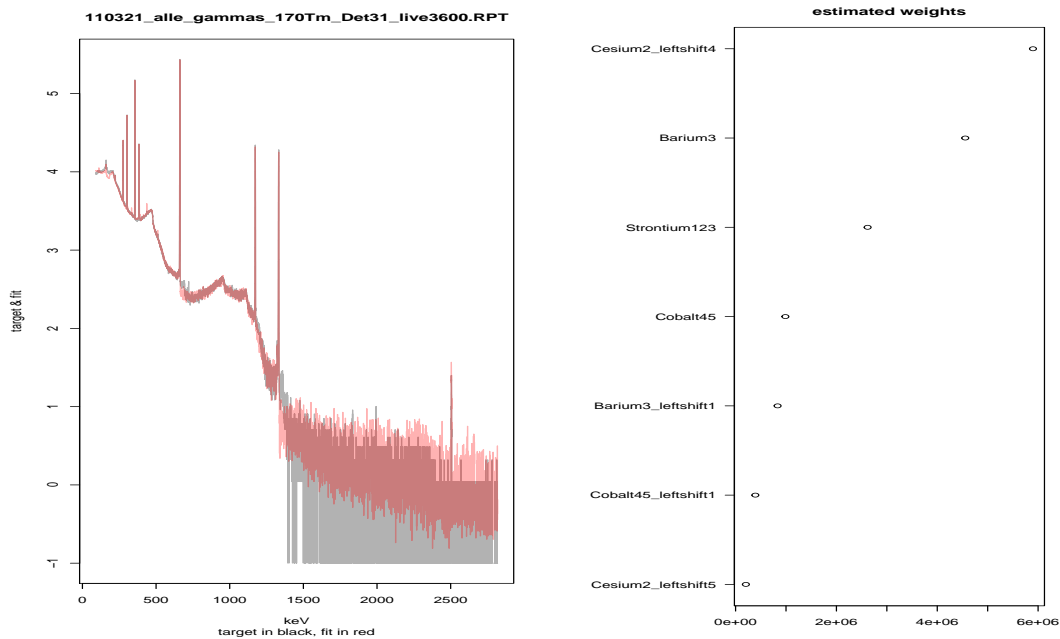
Abbildung 7.49 zeigt die Ergebnisse für die Messung mit den  $\gamma$ -Nukliden mit einem Cut-Off von 90 keV ohne Rückstreuspektren. Als einziger  $\beta$ -Strahler wurde  $^{90}\text{Sr}$  mit einem  $\alpha$  das im Verhältnis zu voran gegangener Messung um einen Faktor 4 niedriger war.

In den beiden Messungen mit kurzer Messzeit wurde jeweils  $^{90}\text{Sr}$  angepasst. Bei der Messung die tatsächlich den  $\beta$ -Strahler  $^{170}\text{Tm}$  enthielt, war dessen  $\alpha$  dabei 1,7 mal größer als die Summe der restlichen  $\alpha$  der jeweiligen Messung. Abbildung 7.50 zeigt die Ergebnisse die tatsächlich  $^{170}\text{Tm}$  enthalten, Abbildung 7.51 die Spektren ohne  $^{170}\text{Tm}$ .





**Abbildung 7.49:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreu-terme nicht erlaubt.

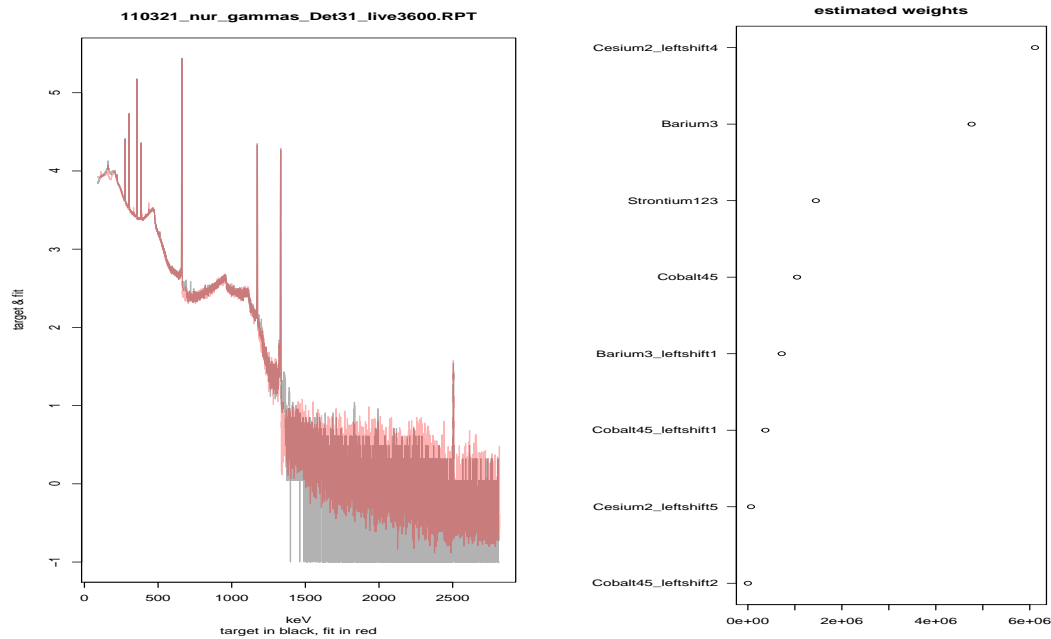


**Abbildung 7.50:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreu-terme nicht erlaubt.

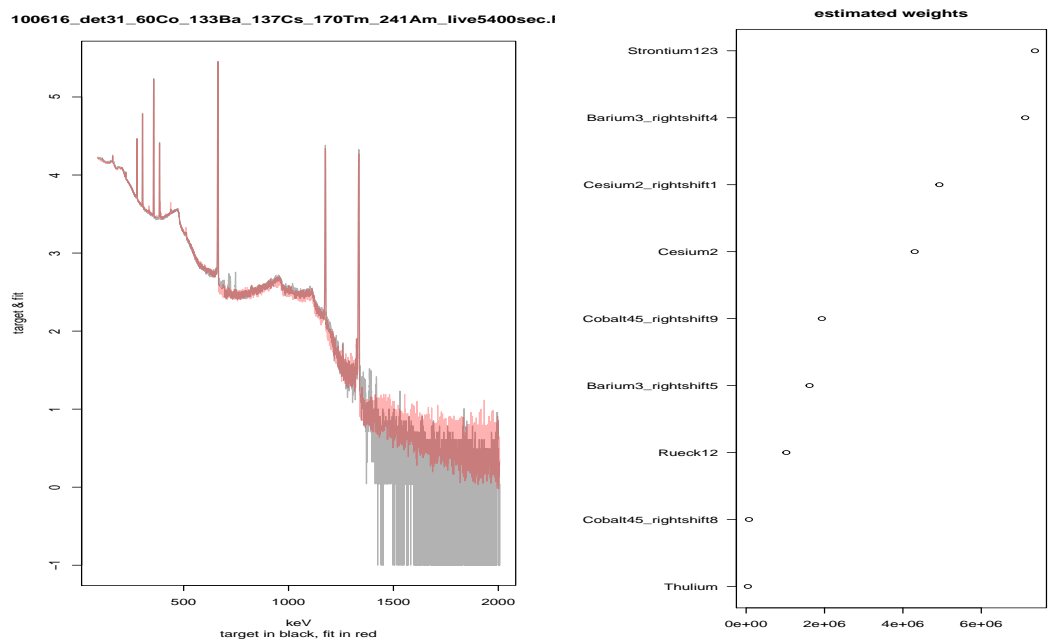
### Cut-Off bei 90 keV mit Rückstreuung

Im Gegensatz zu den Ergebnissen der 50 keV Cut-Off Anpassung unterscheiden sich die Werte der  $\alpha$ -Koeffizienten zwischen der Rekonstruktion mit und ohne Rückstreuung bei den beiden Fits an die Messung mit  $^{170}\text{Tm}$  in Kombination mit den  $\gamma$ -Strahlern  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$ .

Abbildung 7.52 zeigt die Modellierung, mit 90 keV Cut-Off bei erlaubten Rückstreupeakspektren, an die Messung mit höhere  $^{170}\text{Tm}$  Aktivität. Als  $\beta$ -Strahler wurden  $^{170}\text{Tm}$  und  $^{90}\text{Sr}$  an die Messdaten angepasst, wobei letzteres ein um zwei Größenordnungen höheres  $\alpha$  erhielt. Der Anteil der Rückstreuanteile beläuft sich insgesamt auf 3,6 % aller  $\alpha_j$ .



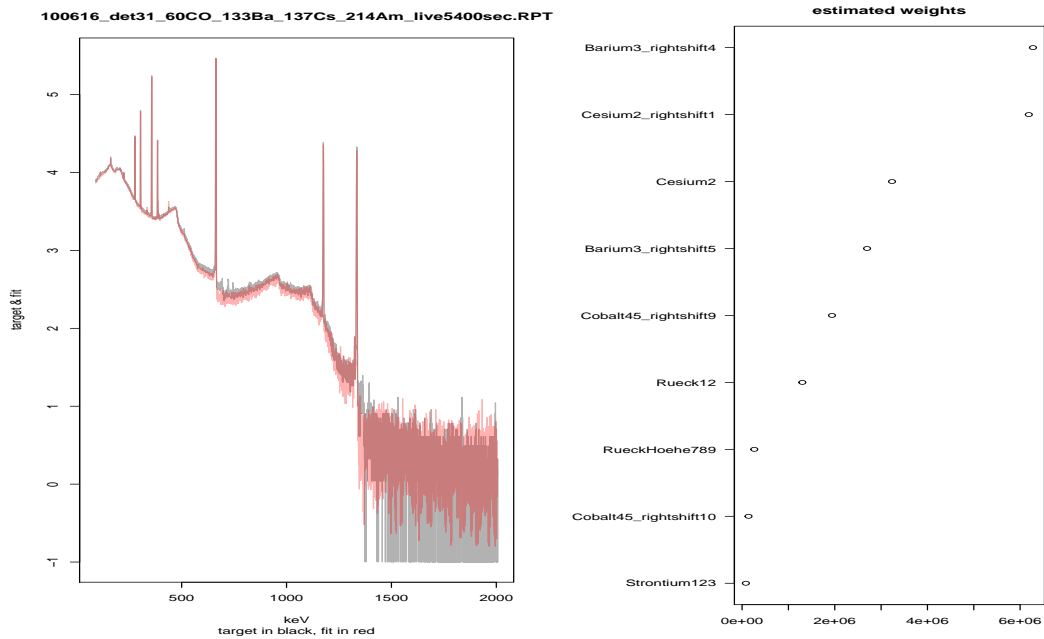
**Abbildung 7.51:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreuterme nicht erlaubt.



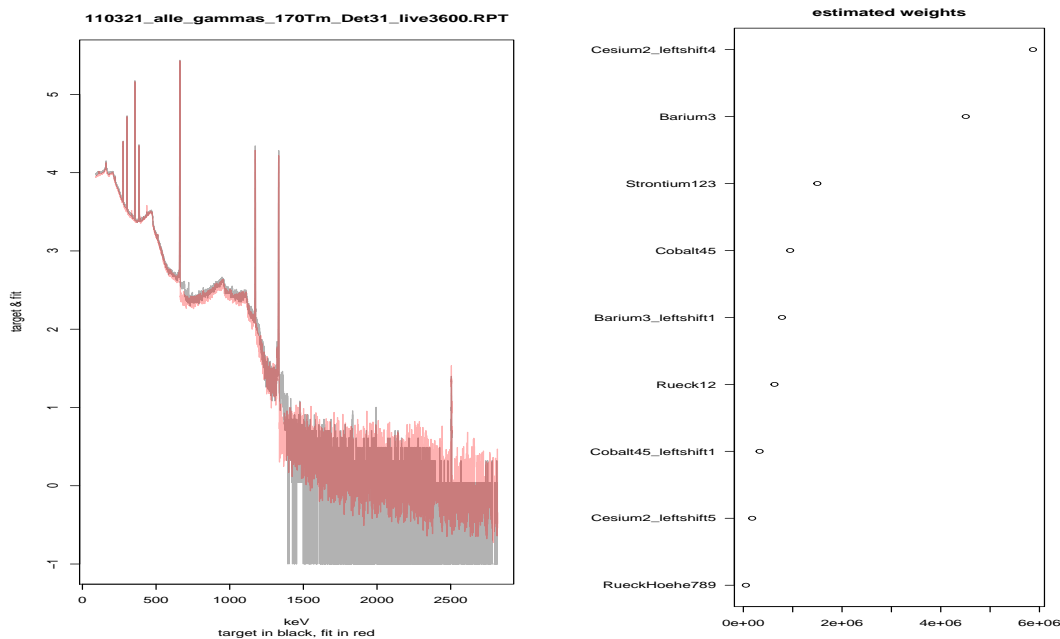
**Abbildung 7.52:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreuterme erlaubt.

In Abbildung 7.53 ist das Ergebnis der 5400 Sekunden Messung für die 90 keV Modellierung mit Rückstreuung dargestellt.  $^{90}\text{Sr}$  ist der einzige angepasste  $\beta$ -Strahler, sein  $\alpha$  um zwei Größenordnungen niedriger als bei obiger Messung. Die Rückstreupektren tragen mit 7,1 % zu allen  $\alpha_j$  bei.

Bei den kürzeren Messungen wurde jeweils  $^{90}\text{Sr}$  als einziger  $\beta$ -Strahler gefittet, dabei viel das  $\alpha$  für die Rekonstruktion an die  $^{170}\text{Tm}$ -Messung (Abbildung 7.54) um zwei Größenordnungen größer aus. Der Größe der aufsummierten  $\alpha$ -Koeffizienten der Rückstreupektren liegt bei beiden Fits um die 5%.



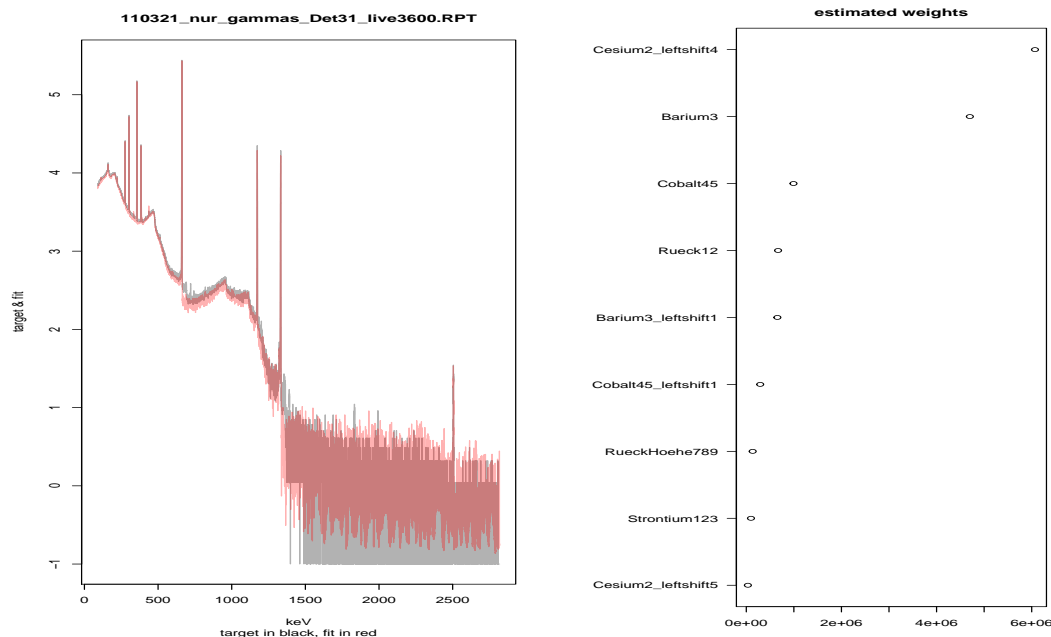
**Abbildung 7.53:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 5400 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreuterme erlaubt.



**Abbildung 7.54:** Mit  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreuterme erlaubt.

### 7.6.5 Zusammenfassung

Auffällig ist, dass bei allen vier gezeigten Varianten der Rekonstruktion bei Abwesenheit von  $^{170}\text{Tm}$  weniger  $\alpha_j$ -Koeffizienten zu Null konvergieren. Bei allen Rekonstruktionen ist der  $\alpha$ -Koeffizient mindestens eines der  $\beta$ -Strahler  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  oder  $^{170}\text{Tm}$  ungleich Null. Jedoch kam tatsächlich nur in zwei von vier Fällen überhaupt ein  $\beta$ -Strahler vor. Das war das  $^{170}\text{Tm}$ . Einzig die Rekonstruktion mit 90 keV Cut-Off Energie ohne Rückstreukorrektur lieferte für die  $^{170}\text{Tm}$ -Messung mit der höheren  $^{170}\text{Tm}$ -Aktivität,  $^{170}\text{Tm}$  als Hauptbestandteil der  $\beta$ -Strahler. Es muss festgestellt werden, dass bei den vier Rekonstruktionen auf gezeigtem Niveau zwar unterschieden



**Abbildung 7.55:** Ohne  $^{170}\text{Tm}$  bei 3600 Sekunden Messzeit. Fit mit Cut-Off Energie von 90 keV; Rückstreu-terme erlaubt.

werden kann, zwischen den Spektren welche mit und ohne  $\beta$ -Strahler aufgenommen wurden, jedoch wurde der  $\beta$ -Strahler nur in einem von vier Fällen richtig identifiziert<sup>10</sup>. Bei den hier gezeigten Tests konnte mit den extra Rückstreu-Spektren eine klarere Trennung zwischen Spektren mit und ohne  $\beta$ -Strahler beobachtet werden. Dort steigt jedoch der Anteil der Rückstreuung bei der Rekonstruktion der Spektren die kein  $^{170}\text{Tm}$  enthalten im Vergleich zu denen mit  $^{170}\text{Tm}$  an, dieser sollte jedoch in beiden Fällen ähnlich groß sein. Bei den Test ohne Rückstreupeaks wird dies bei 50 keV Cut-Off durch eine Zunahme des  $\alpha_{90\text{Sr}}$  kompensiert. Tabelle 7.6 zeigt einen Vergleich der vier Verfahren<sup>11</sup>.

Für die 12 Messungen wurden die Trefferquoten der Bremsstrahlerfunde ausgewertet, das Ergebnis zeigt Tabelle 7.7. Hierbei wurde überprüft ob der entsprechende  $\alpha$ -Koeffizient ungleich Null ist und das Ergebnis mit der entsprechenden Messung übereinstimmt.

Die Tabelle enthält für  $^{170}\text{Tm}$  zwei getrennte Zeilen, eine für die Messungen mit selbigem und eine für die Messungen ohne das Nuklid. Da die anderen Bremsstrahler  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{99}\text{Tc}$  in keiner Messung enthalten waren, existiert für sie nur jeweils eine Zeile. Das  $^{170}\text{Tm}$ <sup>12</sup> hat eine sehr gute Trefferquote, seine Abwesenheit wurde in insgesamt 15 von 16 Fällen und seine Anwesenheit in 30 von 32 Fällen richtig erkannt.

Das Nichtvorhandensein von  $^{36}\text{Cl}$  wurde in 38 von 48 Fällen richtig gedeutet, hierbei lag die Trefferquote bei den Rekonstruktionen mit 50 keV Cut-Off bei 100%. Bei den beiden Nukliden  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{99}\text{Tc}$  ist die Trefferquote schlechter. Wobei hier die Verfahren mit 90 keV Cut-Off besser abschneiden.

Der höchste Anteil von  $\alpha_\beta$  im Vergleich zur Gesamtsumme der  $\alpha_j$  in Proben die keine  $\beta$ -Strahler

<sup>10</sup>Wobei die  $\alpha$  auf Grund der Normierung, nicht als tatsächliche den Aktivitäten entsprechende Koeffizienten gewertet werden dürfen.

<sup>11</sup>Anzumerken ist, dass durch die Normierung der Spektren hier kein Vergleich mit Aktivitäten möglich ist und dadurch auch das Ergebnis von „stärkster“  $\beta$ -Strahler wenig Aussagekraft hat.

<sup>12</sup>Die Form ist bei 50 keV Cut-Off charakteristischer als bei den anderen Bremsstrahlern, da es sich um Referenzmessungen handelt, ist der 84 keV Peak als zusätzliche Information enthalten. Jedoch ist das Modell so gewählt das dies kaum Einfluss hat.

**Tabelle 7.6:** Die Werte der  $\alpha$ -Koeffizienten der vier Verfahrensdurchläufe für die Anpassungen an die vier Messspektren. Hier sind die einzelnen  $\alpha$  der jeweiligen Strahlerarten aufsummiert und als relative Zusammensetzung in % zur Gesamtsumme aller  $\alpha_j$  angegeben. Die Zeilen „Stärkster  $\beta$ “ geben jeweils den  $\beta$ -Strahler mit dem größten  $\alpha$ -Koeffizienten an.

Methode der Rekonstruktion	Art des Strahlers	Messungen			
		Mit $^{170}\text{Tm}$ 5400 s	Ohne $\beta$ 5400 s	Mit $^{170}\text{Tm}$ 3600 s	Ohne $\beta$ 3600 s
50 keV mit Rückstreuung	$\gamma$	37,1	93,6	74,8	93,4
	$\beta$	62,9	0,1	25,2	3,5
	Rückstreuung Stärkster $\beta$	0 $^{99}\text{Tc}$	6,4 $^{170}\text{Tm}$	0 $^{99}\text{Tc}$	3,1 $^{90}\text{Sr}$
50 keV ohne Rückstreuung	$\gamma$	37,1	94,0	74,8	93,7
	$\beta$	62,9	6,0	25,2	6,3
	Stärkster $\beta$	$^{99}\text{Tc}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{99}\text{Tc}$	$^{90}\text{Sr}$
90 keV mit Rückstreuung	$\gamma$	70,3	92,6	85,3	93,4
	$\beta$	26,1	0,4	10,1	0,7
	Rückstreuung Stärkster $\beta$	3,6 $^{90}\text{Sr}$	7,1 $^{90}\text{Sr}$	4,6 $^{90}\text{Sr}$	5,9 $^{90}\text{Sr}$
90 keV ohne Rückstreuung	$\gamma$	59,5	89,5	83,1	90,0
	$\beta$	40,5	10,5	16,9	10,0
	Stärkster $\beta$	$^{170}\text{Tm}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{90}\text{Sr}$

( $^{170}\text{Tm}$ ) enthalten, sind die beiden in Tabelle 7.6 gezeigten Messungen mit 90 keV Cut-Off und ohne Rückstreukorrektur. Der drittgrößte Wert für das  $\alpha_\beta$  zu  $\alpha_{gesamt}$  Verhältnis liegt bei 5,7% die anderen bei maximal 3%, d. h. die Abwesenheit von Bremsstrahler wird im Falle des stationären HPGe-Detektorsystems mit guten Referenzspektren weitestgehend richtig abgeschätzt, wenn ein entsprechender Schwellenwert gezogen wird. Mit den gezeigten Fällen müsste dieser bei einem  $\alpha_\beta$  zu  $\alpha_{gesamt}$  Verhältnis von  $\leq 10,5\%$  liegen, das ist der größte gefundene Wert, bei dem die Präsenz von Bremsstrahlern falsch vorausgesagt wurde.

Durch den Vergleich der beiden Nukliden  $^{36}\text{Cl}$  und  $^{99}\text{Tc}$  zeigt sich, dass die Wahl der Cut-Off Energie einen deutlichen Einfluss auf die Trefferquote nimmt und sich in einem Fall positiv auf das eine, im anderen Fall positiv auf das andere Nuklid auswirkt, vgl. Tabelle 7.7.

In der Praxis ist auf Grund fehlender Rekonstruktionsmöglichkeiten der Röntgenlinien und die schlechter werdende MAC-Korrektur zu niedrigen Energien hin eine Cut-Off Energie von 50 keV nicht umzusetzen. Trotzdem ist in Erwägung zu ziehen, ob nicht zwei verschiedene Cut-Off Energien parallel zur Auswertung eingesetzt werden sollen. Im Einzelfall kann ein Vergleich beider Fehlinterpretationen vermeiden.

Das Trennen bzw. die Identifikation mehrerer unterschiedlicher Bremsstrahler in einem Spektrum wurde hier nicht durchleuchtet, stellt aber eine zusätzliche Herausforderung dar. Wie die Ergebnisse hier zeigen, ist es bereits schwierig ein Nuklid zuzuordnen, da die Bremsstrahlungsinformation des  $^{170}\text{Tm}$  aus mehrere  $\beta$ -Strahlern bei der Rekonstruktion zusammengesetzt wird.

Durch Optimieren des Rekonstruktionsmodells, beispielsweise ein erlaubtes negatives  $\alpha$  für Rückstreuenspektren<sup>13</sup> und eine Shift-Möglichkeit auch für  $\beta$ -Strahler, ist davon auszugehen dass zukünftige Resultate leichter zu interpretieren sind bzw. sich die Trefferquote weiter erhöht. Auch können die Rückstreuenspektren noch verbessert werden, z. B. durch Differenzspektrenbildung

<sup>13</sup>Für den Fall, dass die Rückstreuung in den Referenzspektren größer ist als in der zu analysierenden Probe.

**Tabelle 7.7:** Die Trefferquote der einzelnen Auswerteverfahren bei der Identifikation der Bremsstrahler. Die Prozentzahl gibt an in wie vielen Fällen die An- bzw. Abwesenheit des entsprechende Nuklids richtig geschätzt wurde. Cut-Off wird mit „CO“, Rückstreuung mit „Rück“ abgekürzt.

	CO 50 keV mit Rück	CO 50 keV ohne	CO 90 keV mit Rück	CO 90 keV ohne
$^{170}\text{Tm}$				
8 Mes. mit $^{170}\text{Tm}$	100%	100%	87,5%	87,5%
4 Mes. ohne $^{170}\text{Tm}$	75%	100%	100%	100%
$^{99}\text{Tc}$				
12 Mes. gesamt	16,7%	16,7%	50%	50%
$^{90}\text{Sr}$				
12 Mes. gesamt	16,7%	16,7%	16,7%	91,6%
$^{36}\text{Cl}$				
12 Mes. gesamt	100%	100%	58,3%	58,3%

mehrere Messpositionen und/oder eine analytische Beschreibung der Rückstreupeakform.

## 7.7 Quantifizierung und darüber hinaus

Es konnte gezeigt werden, dass Bremsstrahlung von  $\beta$ -Strahlern in  $\gamma$ -Spektren identifizierbar ist. Ein wichtiger Punkt nach der Identifikation, der besonders bei der Lagerung von radioaktiven Abfallgebinden eine Rolle spielt, ist die Quantifizierung. Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Aktivitätsbestimmung anhand einiger der durchgeführten Messungen. Im zweiten Teil des Abschnitts wird die Möglichkeit diskutiert, wie die Ortsverteilungen des mobilen  $\gamma$ -Scanners bei der Suche von  $\beta$ -Strahlern genutzt werden können.

### 7.7.1 Quantifizierung

Ein wichtiger Punkt nach der erfolgten Charakterisierung von Bremsstrahlern, ist deren Quantifizierung. Um eine Idee zu gewinnen inwieweit eine solche möglich ist, wurden Messungen bekannter Bremsstrahler ( $^{170}\text{Tm}$  und  $^{90}\text{Sr}$ ), sowohl aus Einzelnuklidmessungen als auch aus extrahierten Differenzspektren (sowohl Simulation als auch Messung) an den verschiedenen Messsystemen ausgewertet.

Als Kriterium für die Quantifizierung wurde in Analogie zu den Peakflächen bei  $\gamma$ -Nukliden ebenfalls die Fläche unter dem kontinuierlichen Spektrum gewählt. Dazu wurde mit dem Programm Origin integriert, meist ab einem Cut-Off von 100 keV bis hin zur Endpunktenergie des entsprechenden Nuklids.

### Stationärer HPGe-Messplatz

Bei den hier ausgewerteten Messungen handelt es sich um drei Messungen bei denen einen Kombination aus  $^{170}\text{Tm}$  und den  $\gamma$ -Strahlern  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{241}\text{Am}$  gemessen wurde. Mit Hilfe von Referenzspektren der  $\gamma$ -Strahler wurden anschließende Differenzspektren gebildet. Die Differenzspektren wurden zwischen 100 - 968 keV integriert und mit der Fläche eines

$^{170}\text{Tm}$ -Referenzspektrums bekannter Aktivität verglichen. Tabelle 7.8 zeigt die Ergebnisse der Integration.

**Tabelle 7.8:** Ergebnisse der Flächenintegration der  $^{170}\text{Tm}$ -Messungen. Bei den mit „genullt“ gekennzeichneten Spalten handelt es sich um die Resultate bei denen alle negativen Werte der Referenzspektren auf Null gesetzt wurden.

Messung	Verwendete $\gamma$ -Strahler	Fläche [Impulse]	Fläche (genullt)	Aktivität [Bq]	Aktivität (genullt)	Tatsächliche Aktivität
1	$^{60}\text{Co}$	1,33e+5	1,39e+5	2,13e+6	2,23e+6	2,45e+6
2	$^{137}\text{Cs}$	1,57e+5	1,74e+5	2,52e+6	2,79e+6	2,44e+6
3	$^{60}\text{Co}$ , $^{133}\text{Ba}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{241}\text{Am}$	1,08e+5	1,22e+5	1,66e+6	1,95e+6	1,68e+6

Da nach Bildung der Differenzspektren einige Werte negativ werden, wurden diese in einer zweiten Auswertung auf Null gesetzt, da negative Impulszahlen in der Wirklichkeit nicht auftreten. Vergleicht man das Ergebnis der Integration zwischen normaler und auf Null gesetzter Differenz, zeigt sich, dass das Ergebnis der normalen von den Werten unter der genullten liegt. Das liegt daran, dass sich negative und positive Werte gegenseitig aufheben. Bei niedrigen Zählraten auftretendes statistisches Rauschen kann bei der Differenzbildung zu negativen Werten führen.

Zur Bestimmung der Aktivität, wurden bei der Bildung der Differenzspektren die Referenzspektren abgezogen ohne auf die Peakflächen zu achten, da die Messungen sehr zeitnah (meist am gleichen Tag) erfolgten. Bei der Messung die nur  $^{60}\text{Co}$  als  $\gamma$ -Strahler enthält, lagen jedoch 27 Tage zwischen beiden Messungen. Daher ist die Abweichung der Aktivität zur tatsächlichen  $^{170}\text{Tm}$ -Aktivität in der ersten Messung der Tabelle 7.8 am größten. In einer zweiten Auswertung wurden daher die  $^{60}\text{Co}$ -Peakflächen der Referenzmessung an die des Mischspektrums angepasst. Somit erhält man eine Fläche von  $1,4 \cdot 10^5$ , welche einer Aktivität von  $2,30 \cdot 10^6$  Bq entspricht, was der tatsächlichen Aktivität besser entspricht, als dem in der Tabelle gezeigte Wert. Wurden die negative Werte auf Null gesetzt, ergibt sich eine Fläche von  $1,5 \cdot 10^5$  und liefert eine Aktivität von  $2,36 \cdot 10^6$  Bq.

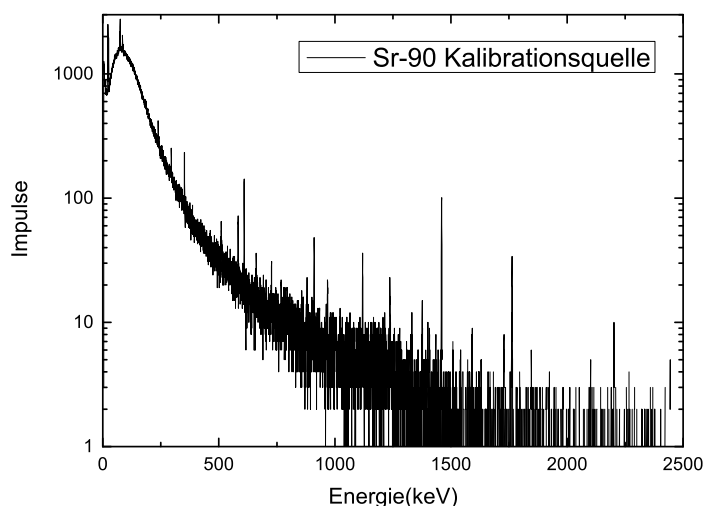
Für das durch die, mit der in Kapitel 5 gezeigte Simulation (Abbildung 7.32) gebildete Differenzspektrum wurde ebenfalls eine Integration durchgeführt und mit dem entsprechenden Referenzspektrum verglichen. Hierbei liefert die Integration, wenn die negativen Werte nicht auf Null gesetzt werden ein sehr schlechtes Ergebnis, da die Fläche negativ wird. Setzt man die negativen Werte jedoch auf Null, erhält man ein Ergebnis das nur um 5,3 % von der tatsächlichen Aktivität abweicht. Auf Grund der zuerst erhalten negativen Flächen sollte dieses Ergebnis jedoch mit aller größter Vorsicht interpretiert werden.

### Mobiler HPGe-Messplatz

Die bereits bei der MAC-Korrektur, unter Kapitel 6.4.4, beschrieben Messung wurde unter Zuhilfenahme eines Referenzspektrums der  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle (vgl. Abb. 6.9) quantitativ ausgewertet.

Die Referenzquelle hat eine Aktivität von  $1,45 \cdot 10^7$  Bq und lieferte bei einer Messzeit von 1800 Sekunden das in Abbildung 7.56 gezeigte Sepktrum, aufgenommen mit zwei Meter Probe-Detektor-Abstand. Die Quelle war mit Blick Richtung Detektor auf dessen Symmetrieachse gerichtet.

Führt man an diesen Daten eine Integration mit Origin durch erhält man für den Energiebereich



**Abbildung 7.56:** Referenzmessung der  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle

von 100 bis 2280 keV als Fläche unter der Kurve  $140326 (\pm 66)$  Impulse. Eine Integration der in Abbildung 7.26 gezeigten Kurven liefert für Beton  $2,176 \cdot 10^9$  Impulse. Das Spektrum der Bitumen-Messung (korrigiert ohne kohärente Streuung; rote Kurve in der Abbildung) liefert eine Fläche von  $4,571 \cdot 10^9$  Impulsen. Die beiden Flächen sollten gleich groß sein unterscheiden sich jedoch um einen Faktor 2,1.

Diese große Differenz in der Flächen stammt aus dem Bereich 100 - 290 keV. Wie man in Abbildung 7.26 erkennt, laufen die beiden Kurven erst ab Energien größer 290 keV deckungsgleich, dies kann auf die bereits erwähnten Schwächen der MACs bei komplexen Verbundmaterialien wie Bitumen oder Beton zurück geführt werden.

Werden die unterschiedlichen Messzeiten berücksichtigt, ergibt sich ein Verhältnis zur Referenzmessung von 1:70700 für Beton und 1:147800 für die Bitumen Messung. Die tatsächliche Aktivität der  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquelle betrug  $2,04 \cdot 10^{12}$  Bq, dies entspricht dem 140690 fachen der Aktivität der Referenzprobe, d. h. die Aktivität der Bitumen-Messung ist ziemlich gut erfasst. Der unterschiedliche Probe-Detektor-Abstand zwischen Messung und Referenz wurde in der Abschätzung nicht berücksichtigt.

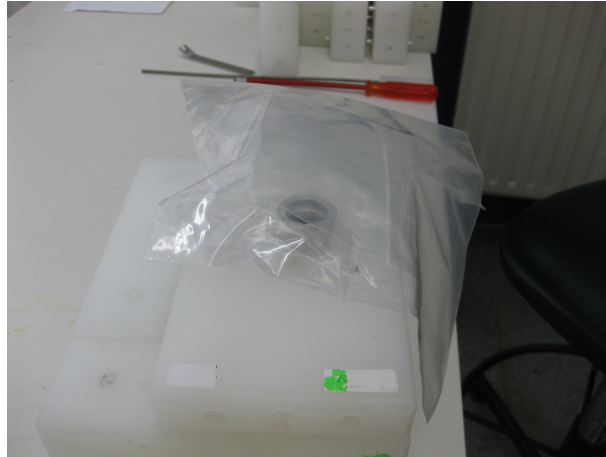
In einem weiteren Versuch am Falcon 5000 sollte die Aktivität eines  $^{90}\text{Sr}$  Abfallstückes bestimmt werden, welche unbekannt war. Dabei handelte es sich um eine Art Verschluss eines Rohrs welches in Abbildung 7.57 zu sehen ist.

Bei dieser Probe wurden zwei Messungen durchgeführt, einmal zeigte das offen Rohrende zum Detektor, das andere mal zur Decke. Ansonsten entsprachen die anderen Messparameter exakt der Referenzmessung aus Abbildung 7.56. Als Aktivität der Probe konnte für die Messung mit Blick zu Decke ein Wert von  $2,29 \cdot 10^8$  Bq bestimmt werden, die andere Messung lieferte  $2,69 \cdot 10^8$  Bq. Diesem Wert ist in Anbetracht dessen, dass dort die Geometrie der Referenzgeometrie mehr entsprach (beide Proben Richtung Detektor positioniert) der Vorzug zu geben.

Unter der Tatsache, dass bei der  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquelle (zumindest bei der Bitumen-Messung) die Aktivitätsbestimmung ein gutes Ergebnis liefert, obwohl die Referenzmessung eine um sieben Größenordnungen kleinere Aktivität hat, ist davon auszugehen, dass bei dem Abfallstück mindestens die Größenordnung der Aktivität richtig erfasst wurde<sup>14</sup>.

<sup>14</sup>Die Aktivitätsbestimmung über die Ortsdosisleistung wich deutlich, um einige Größenordnungen, von dem hier





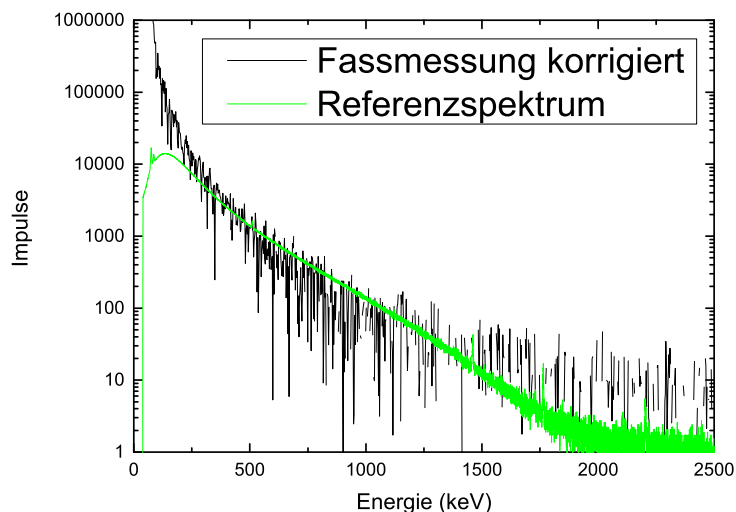
**Abbildung 7.57:** Foto der  $^{90}\text{Sr}$  Probe.

### Mobiler Gamma-Scanner

Aus den in Abbildung 6.20 gezeigten Spektren wurde das Differenzspektrum gebildet, d. h. in dem Fall wurde eine Untergrundkorrektur durchgeführt. Im Anschluss daran wurde mit dem Spektrum der beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquellen (Aktivität je  $1,45 \cdot 10^7$  Bq) eine MAC-Korrektur durchgeführt.

Für die MAC-Korrektur des Betons und des Bitumen an beiden Fässer wurde eine Interpolation der Daten durchgeführt. Dazu wurde die Energie von 1 keV bis 2500 keV auf eine Achse mit 1000 Schritten gebracht.

Als Referenzspektrum diente die Punktmessung aus Kapitel 6.4.3 Abbildung 7.18, nachfolgend ist diese zeitkorrigiert der untergrund- und absorptionskorrigierten Fassmessung gegenübergestellt (Abbildung 7.58).



**Abbildung 7.58:** Die Referenzmessung und die untergrund- und absorptionskorrigierte Fassmessung des  $^{90}\text{Sr}$ .

Die Integrale im Bereich zwischen 100 - 2280 keV liefern für die Referenzmessung den Wert  $2,891 \cdot 10^6$  und für die Fassmessung den Wert  $10,46 \cdot 10^6$ . Dies entspricht einem Verhältnis von ermittelten Wert ab.

1 zu 3,6, das tatsächliche Verhältnis liegt bei 1:2. Eine der beiden in der Messung verwendeten  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquellen diente als Grundlage für das Referenzspektrum. Hier wird die Aktivität zu hoch bestimmt.

Am mit Bitumen gefüllten Fass, war bei den Messungen jeweils noch die  $^{60}\text{Co}$ -Stäbchenquelle mit im Fass. Der Beitrag dieser musste zuerst aus dem Spektrum eliminiert werden.

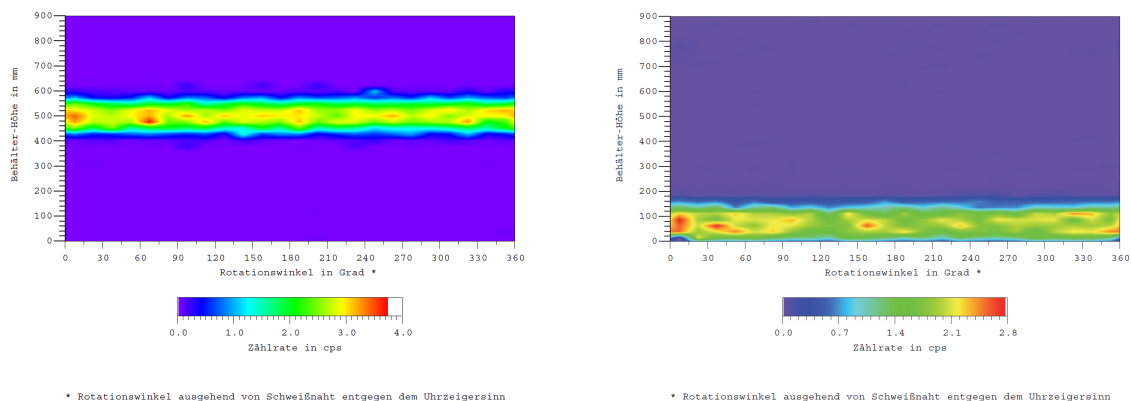
Es wurden zwei verschiedene Methoden, zur Bildung des Differenzspektrums bei der Auswertung angewandt:

1. Bildung des Differenzspektrums durch  $^{60}\text{Co}$  Punktmessung (vgl. Abbildung 7.19)
2. Bildung des Differenzspektrums durch einen  $\gamma$ -Scan des Bitumenfasses mit gleicher  $^{60}\text{Co}$ -Quelle.

Für die erste Methode wurden die Peakflächen des  $^{60}\text{Co}$  der Punktmessung so skaliert, dass sie zu den absorptionskorrigierten Peakflächen des  $\gamma$ -Scans des Bitumenfasses passen. Das Referenzspektrum des  $^{90}\text{Sr}$  war das gleiche wie schon beim Betonfass.

Das Ergebnis des Flächenintegrals für die Fassmessung mit beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquellen ist  $5,265 \cdot 10^6$ , umgerechnet auf die Referenzmessung ist die Fläche 1,8 mal größer, was ziemlich nahe an der tatsächlichen doppelten Aktivität liegt.

Bei der zweiten Methode wurden die Peakflächen des  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$ -Scans an die Mischmessung angepasst. Diese Anpassung war nötig, da zwischen der Referenzmessung des  $^{60}\text{Co}$  und der Fassmessung mit beiden Nukliden 288 Tage lagen. Dies alleine reicht nicht als Erklärung für den Unterschied in den Peakflächen. Die Peakfläche des 1273 keV Peaks der Referenzmessung betrug  $2,7 \cdot 10^4$  Impulse. Die der gemischten Messung zählte  $2,0 \cdot 10^4$  Impulse am 1273 keV Peak des  $^{60}\text{Co}$ . Durch die Differenz in der Messzeit war jedoch ein Absinken auf lediglich  $2,4 \cdot 10^4$  Impulse zu erwarten. Die mögliche Erklärung ist die Position des  $^{60}\text{Co}$ . Sie war bei beiden Messungen nicht identisch. Bei dem  $^{60}\text{Co}$ -Referenz- $\gamma$ -Scan war das  $^{60}\text{Co}$  nicht am Fassboden sondern in der Fassmitte positioniert, daher war bei diesem  $\gamma$ -Scan die Zählrate höher, da das  $^{60}\text{Co}$  auch bereits unterhalb der Probe für den Detektor sichtbar war. Die wird zwar durch den Kollimator begrenzt, jedoch nicht vollständig.



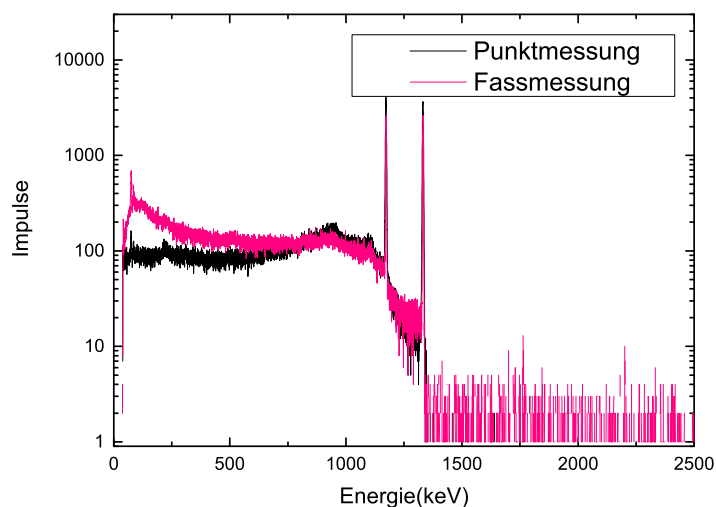
**Abbildung 7.59:** Gezeigt sind die  $^{60}\text{Co}$ -OVTs der  $\gamma$ -Scans, links für die reine  $^{60}\text{Co}$ -Messung recht für die Messung mit  $^{90}\text{Sr}$ .

Die Ortsverteilung der registrierten Impulszahlen des  $^{60}\text{Co}$  in beiden  $\gamma$ -Scans zeigt Abbildung 7.59. Mit der Quelle in der Fassmitte zeigt sich ein ca. 200 mm breiter Streifen des  $^{60}\text{Co}$ , wenn die dunkelblauen Bereiche mit berücksichtigt werden.  $\gamma$ -Quanten trafen bereits den Detektorkristall bevor der von unten heran fahrenden Detektor die Höhenposition der Probe erreichte. Mit der

$^{60}\text{Co}$ -Quelle am Fassboden ist der Bereich nur ca. 180 mm breit. Es ist zu beachten, dass die Masseneinheiten der Skala in Abbildung 7.59 nicht die selben sind.

Eine Integration des aufbereiteten Differenzspektrums liefert eine Fläche von  $2,479 \cdot 10^6$  Impulsen, das entspricht der 0,9 fachen Aktivität der Referenzmessung, erwartet wurde die Zweifache. Das bedeutet das mit dieser Methode nur die halbe Aktivität gefunden wurde.

Die Messung am bituminierten Fass mit nur einer  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle wurde mit der gleichen Methode ausgewertet. Zur Erinnerung, hier war das  $^{60}\text{Co}$  in Höhe der Fassmitte. Das korrigierte Referenzspektrum liefert eine Fläche von  $1,230 \cdot 10^6$  Impulsen und entspricht somit dem 0,52 fachen der oberen Messung und dem 0,45 der Referenzaktivität. Vergleicht man dieses Ergebnis mit der Messung die beide  $^{90}\text{Sr}$ -Kalibrationsquelle enthielt zeigt sich, dass hier ebenfalls nur die halbe Aktivität bestimmt wurde.



**Abbildung 7.60:** Vergleich der  $^{60}\text{Co}$ -Punktmessung und der  $^{60}\text{Co}$ -Fassmessung.

Hier wurde jedoch die einfachsten Annahmen überhaupt getroffen, so wurde für die MAC-Korrektur der Fassradius verwendet, wobei die  $^{90}\text{Sr}$  an der Fasswand positioniert war. Es wurde die Annahme unterstellt, dass sich dies durch die Rotation beim Scan aufhebt.

Es finden sich deutliche Unterschiede bei der Aktivität zwischen den beiden Auswerteverfahren. So ist die Aktivität welche mit der Punktmessung ausgewertet wurde doppelt so groß wie wo die Fassmessung als Referenz zur Anwendung kam. Der Vergleich der Spektren der  $^{60}\text{Co}$ -Punktmessung und der  $^{60}\text{Co}$ -Fassmessung zeigt einen deutlich erhöhten Untergrund bei letzterer, vgl. Abbildung 7.60

Aus dieser Abbildung wird ersichtlich warum bei der ersten Methode eine größere Aktivität bestimmt wird. Hier zeigt sich, dass eine Rückstreukorrektur bzw. eine gute Abschätzung für den Build-Up-Faktor gefunden und angewendet werden muss.

### 7.7.2 Identifikation von Bremsstrahlern in Gamma-Scans anhand ihrer Ortsverteilung

Die bei dem  $\gamma$ -Scanner gewonnen Ortsverteilungen könnten als zusätzliches Mittel bei der eindeutigen Bestimmung von Bremsstrahlern dienen. Dies soll hier nur kurz anhand der im letzten

Kapitel gezeigten Fassmessungen skizziert werden.

Voraussetzung hierfür ist eine räumliche Trennung zwischen Bremsstrahler und  $\gamma$ -Strahler im Fass.

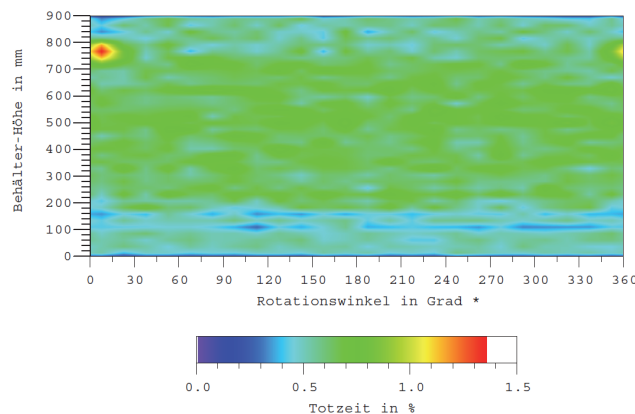
Durch das Fehlen der Peaks bei den Bremsstrahlern, müssen zuerst geeignete Stellen im Spektrum gefunden werden, an denen die Ortsverteilungen gebildet werden kann. Diese sollten genug Impulse des Bremsstrahlers enthalten um ihn zu lokalisieren. Auf der anderen Seite dürfen sie keine, bzw. nicht zu viele Impulse der anderen Strahler enthalten, um das Ergebnis nicht unnötig zu verfälschen. Da jeder  $\gamma$ -Strahler einen Compton-Untergrund verursacht, addieren sich deren Beiträge zur Bremsstrahlung, wenn in dem Energiebereichen unterhalb der auftretenden  $\gamma$ -Linien gesucht wird. Je nach  $E_{max}$  des Bremsstrahlers und der beteiligten  $\gamma$ -Strahler kann dies jedoch unumgänglich sein.

Für die Kombination  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  müssen zuerst Bereich gefunden werden, bei denen nach entsprechender OVTs gesucht werden kann. Dazu wurden sechs Energiebereich, sogenannte „Regions Of Interest“ ausgesucht, die Anfangs- und Endenergie dieser Intervalle sind in Tabelle 7.9 zusammengefasst.

**Tabelle 7.9:** Übersicht der verwendeten ROIs für die Ortsverteilungen

ROI	Start (keV)	Ende (keV)	Bezeichnung
1	97,6	2292,8	ROI_Eins
2	97,6	500,3	ROI_Zwei
3	190,2	200,1	Sr90_AVG
4	929,2	939	Y90_AVG
5	193,8	939	Sr_Y_AVG
6	1335	2292,8	Ab_Co60

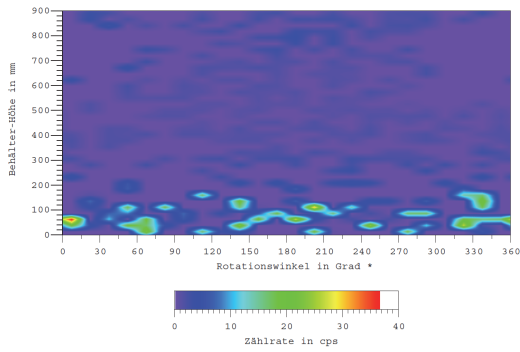
Ein Blick auf die Totzeit (Abbildung 7.61) offenbart im vorliegenden Fall bereits, wo die  $^{90}\text{Sr}$ -Quellen sitzen. Jedoch ist das nicht immer so eindeutig wie im vorliegenden Beispiel, daher ist der Blick auf die ROIs interessant.



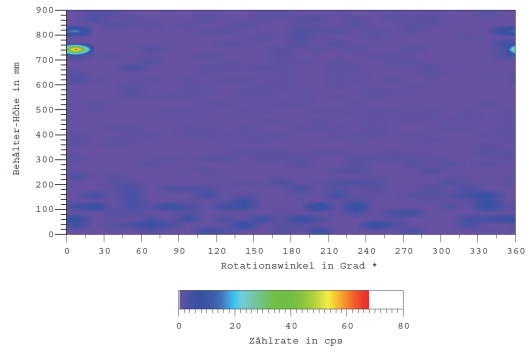
\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn

**Abbildung 7.61:** Darstellung der Totzeit des, mit  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{60}\text{Co}$  bestückten Bitumenfasses.

Die Ortsverteilungen der beiden im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Messung mit  $^{60}\text{Co}$  am Fassboden und den beiden  $^{90}\text{Sr}$ -Quellen im Bitumenfass wird hier gezeigt. Die Ortsverteilung des  $^{60}\text{Co}$  ist in der linken Hälfte der Abbildung 7.59 bereits gezeigt worden. Mit den ROIs aus Tabelle 7.9 ergeben sich die OVTs wie in den Abbildungen 7.62-7.64.



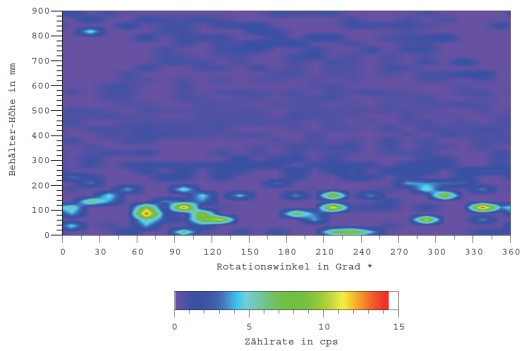
\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn



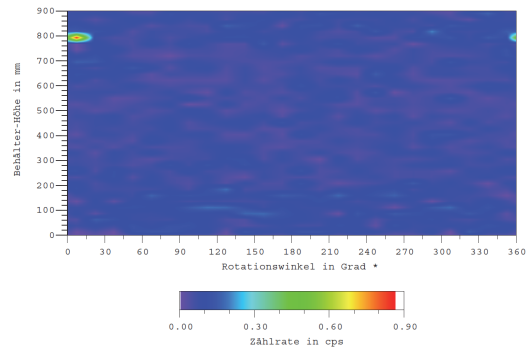
\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn

**Abbildung 7.62:** links: ROI\_Eins; rechts: ROI\_Zwei.

In Abbildung 7.62 ist die ROI zu sehen, die den gesamten Energiebereich des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  umfasst (ROI\_Eins), dadurch wurde auch die ganze Information des  $^{60}\text{Co}$  mit erfasst und das  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  ist nicht zu lokalisieren. Das Ergebnis rechts zeigt die Lage des  $^{90}\text{Sr}$  deutlich, hier wurde der Energiebereich zwischen Röntgenlinien und Annihilation erfasst (ROI\_Zwei).



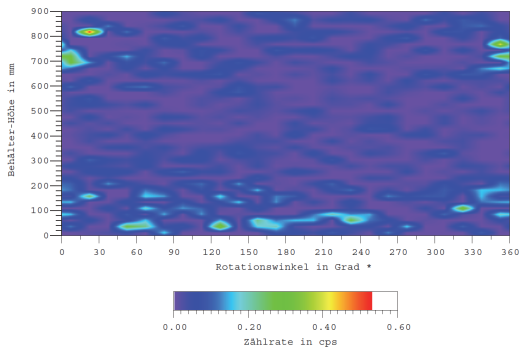
\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn



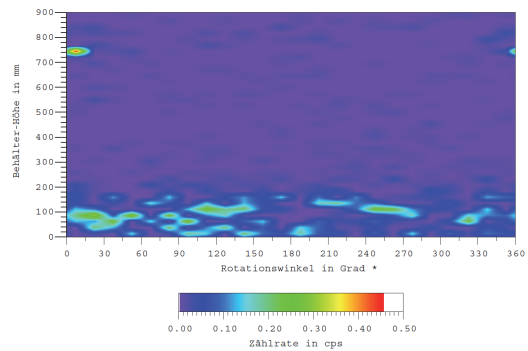
\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn

**Abbildung 7.63:** links: Sr\_Y\_AVG; rechts: Ab\_Co60.

Links in Abbildung 7.63 ist der Energiebereich zwischen den beiden mittleren Energien von  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{90}\text{Y}$  zu sehen (Sr\_Y\_AVG). Hier zeigt sich auch in erster Linie das  $^{60}\text{Co}$ , jedoch ist die Lage von  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  angedeutet erkennbar. Rechts wurde der Energiebereich ab der 1332 keV Linie des  $^{60}\text{Co}$  erfasst (Ab\_Co60), hier zeigt sich die Lage des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  deutlich.



\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn



\* Rotationswinkel ausgehend von Schweißnaht entgegen dem Uhrzeigersinn

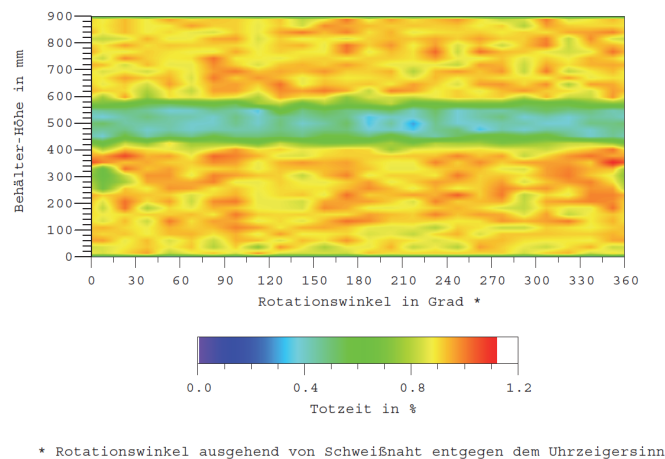
**Abbildung 7.64:** links: Sr90\_AVG; rechts: Y90\_AVG.

In Abbildung 7.64 sind die Ortsverteilungen gezeigt, die jeweils den mittleren Energiebereich  $E_{avg}$  der Nuklide  $^{90}\text{Sr}$  (Sr90\_AVG) und  $^{90}\text{Y}$  (Y90\_AVG) erfassen. Bei beiden ist die Lage des

$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  gut zu erkennen, jedoch sieht man dort auch jeweils noch das  $^{60}\text{Co}$ .

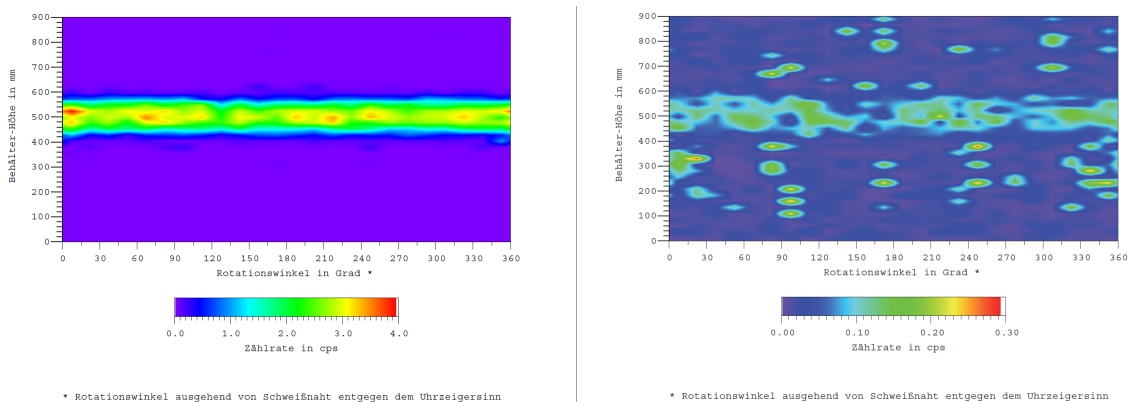
Das beste Ergebnis liefert die OVT bei der keine Information des  $^{60}\text{Co}$  enthalten war. Ist solch eine OVT nicht möglich, sollte versucht werden, eine OVT in dem Bereich zu bekommen der zwischen dem letzten Peak und seiner zugehörigen Compton-Kante liegt welcher noch im Energiebereich des Bremsstrahlers liegt. Hier ist natürlich die hohe  $E_{max}$  des  $^{90}\text{Y}$  ein großer Vorteil, bei anderen Nukliden mit niedrigeren  $E_{max}$  findet man unter Umständen keinen guten Bereich für eine entsprechende OVT. Durch die große Bedeutung des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  als Abfallnuklid ist die Anwendung an selbigen bereits ein Gewinn.

Bei einer der zweiten Messung, mit halber  $^{90}\text{Sr}$ -Aktivität und räumlicher Nähe der Quellen (vgl. Abschnitt 6.5) ergeben sich folgende Ortsverteilungen (Abbildungen 7.66-7.67):



**Abbildung 7.65:** Darstellung der Totzeit der zweiten Befüllung, mit  $^{90}\text{Sr}$  und  $^{60}\text{Co}$  des Bitumenfasses.

Hier ist anhand der Totzeit (Abbildung 7.65) eine Aussage über die Lage des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  schwerer zu treffen als bei obiger Messung.

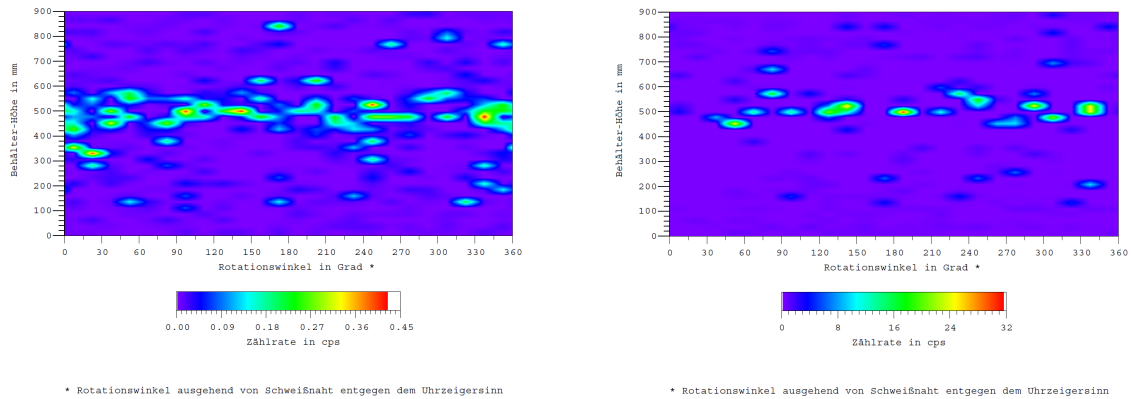


**Abbildung 7.66:** Links:  $^{60}\text{Co}$ -Verteilung ; Rechts: Ab\_Co60.

Das  $^{60}\text{Co}$  wird eindeutig gefunden, vgl. Abbildung 7.66 links, bei  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  erhält man auf Grund des hohen Rauschens nur einen Hinweis, dass eine Konzentration davon nahe  $0^\circ$  unterhalb des  $^{60}\text{Co}$  liegen könnte.

Links in Abbildung 7.67 kann man ebenfalls von einer etwas erhöhten Konzentration nahe  $0^\circ$  unterhalb des  $^{60}\text{Co}$  ausgehen. Die OVT der rechten Seite liefert keine Information bezüglich der Lage des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ .

Hier zeigt sich die Schwierigkeit, dass sich anhand der Totzeit eine vermeintliche Lage des



**Abbildung 7.67:** Links: Sr90\_AVG; Rechts: ROI\_Eins.

$^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  bereits angedeutet hat, jedoch erst durch die hier getroffene Wahl der ROIs im Vergleich einen Rückschluss auf die Lage des  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  geben. Wobei die OVTs einzeln dazu auch nicht in der Lage gewesen wären. Erst eine Kombination aller OVTs mit der Totzeit und dem Wissen, dass  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  enthalten ist, führen hier zu einer Identifikation der Lage.

Das hier vorgestellte kann als Check angewandt werden, falls Zweifel an den gewonnen Ergebnissen bestehen. In manchen Fällen, je nach Position der Quellen, kann es unter Umständen einen wichtigen Hinweis liefern.

### 7.7.3 Zusammenfassung

Die Bremsstrahlungsinformation konnte aus Mischspektren durch die Bildung von Differenzspektren, sowohl im Labormassstab als auch an realen Abfallgebinden gewonnen werden und ihre Aktivitäten durch Integration bestimmt werden. Die hier gezeigten Ergebnisse dienen dem Zweck, eine erste einfache Abschätzung über die Möglichkeit der Quantifizierung zu geben. Daher wurde die simpelste mögliche Abschätzung getroffen: Die Spektren wurden nach den bisher gewonnen Erkenntnissen korrigiert und im Anschluss einfach integriert. Am mobilen HPGe-Messplatz zeigte sich, dass die Aktivitätsbestimmung auch über einen großen Energiebereich von mehreren Größenordnungen realisierbar ist.

In allen untersuchten Fällen wurde stets die richtige Größenordnung der Aktivität gefunden. Abweichungen waren bei den vorliegenden Fällen nie größer als ein Faktor 2. Allein die Möglichkeit die richtige Größenordnung abzuschätzen ist bei der Vermeidung von Scheinaktivitäten bei der Deklaration radioaktiver Abfallgebinde ein großer Fortschritt.

Die genaue Aktivitätsbestimmung sollte bei Fassmessungen zukünftig, wie die bei RCM bereits verwendeten Rechnungen bei  $\gamma$ -Linien vollzogen werden. 20 % relativer Fehler sind bei dortiger Aktivitätsbestimmung ein guter Wert. Damit ist die Bestimmung einheitlich und fügt sich entsprechend passend in die zu erstellenden Protokolle beim Routinebetrieb ein.

Für eine noch exaktere Quantifizierung müsste der Tatsache, dass die Intensität der erzeugten Bremsstrahlung abhängig von der Ordnungszahl  $Z$  der Atome am Entstehungsort ist, Rechnung getragen werden. Wie die durchgeführten  $S(k)$ -Rechnungen zeigen, ist zum Beispiel zwischen Kupfer und Aluminium ein Unterschied von 13,5 % zu erwarten. Entsprechend sind diese Relationen, falls die Erzeugermatrix bekannt ist, für ein möglichst exaktes Ergebnis zu korrigieren. Auch das Volumen der Quelle kann bei der Abschätzung der Aktivität Einfluss nehmen.

Gezeigt wurde, dass durch die geeignete Bildung von Ortsverteilungen bei  $\gamma$ -Scans eine Möglich-

keit besteht auf das Vorhandensein von  $\beta$ -Strahlern zu schließen. Dies funktioniert nur, wenn  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahler an unterschiedlichen Orten im Messobjekt anzutreffen sind. Als zusätzlicher Test bei Unsicherheiten oder nicht eindeutigen Testergebnissen kann dies nützlich sein.



## Kapitel 8

# Zusammenfassung und Ausblick

Auf Grund der durchgeführten Untersuchungen konnte gezeigt werden, dass es möglich ist, Bremsstrahlungsinformation aus gemessenen  $\gamma$ -Spektren, welche aus einer Kombination verschiedener  $\gamma$ -strahlender Nuklide und einem  $\beta$ -Strahler bestehen, zu gewinnen. Anhand dieser Information kann auch eine Identifikation des  $\beta$ -Strahlers erfolgen.

Die beim radioaktiven Zerfall erzeugten Teilchen durchlaufen auf dem Weg zum Detektor verschiedene Streu- und Absorptionsprozesse, daher kommt eine große Anzahl an sekundär erzeugten Teilchen dazu, die alle Einfluss auf das Spektrum haben. Die Bremsstrahlung ist eine dieser sekundären Strahlungen und setzt sich ebenfalls aus mehreren Komponenten (Innere- und Äußere Bremsstrahlung) zusammen. Ihr Einfluss ist von Probe zu Probe verschieden. Hinzu kommt, dass die Form der äußeren Bremsstrahlung eine gewisse Abhängigkeit von  $Z$  am Erzeugungsort hat. All diese Faktoren addieren sich zu dem resultierenden Spektrum. Die Trennung der einzelnen Komponenten ist auf Grund des Messaufbaus nicht zu erfassen, hinzu kommt die Faltung des Spektrums durch die Messapparatur. Weiteren Einfluss nimmt die Geometrie des Versuchsaufbaus<sup>1</sup>.

Viele dieser Phänomene sind auf Grund der komplexen geometrischen Strukturen, welche in realen Abfallgebänden anzutreffen sind, nicht exakt abschätzbar. Dies stellt eine sehr große Herausforderung bei der praktischen Umsetzbarkeit des hier entwickelten Verfahrens dar.

Daher ist die Möglichkeit der Identifikation zunächst nur sehr eingeschränkt gültig. Am stationären HPGe-Messplatz und ihm ähnlichen Messsystemen mit exakt definierbarer Messgeometrien kann sie angewandt werden und liefert verlässliche Ergebnisse.

Die Simulationen zeigten deutliche Abweichungen von den Messergebnissen. Hier ist für zukünftige Arbeiten noch sehr viel Potential enthalten um die noch vorhandenen Fragen zu beantworten, gerade im Hinblick für die Simulation ganzer Fässer, welche nicht realisiert werden konnte. Zu Beginn der Arbeiten wurde sehr viel Zeit in die Simulation investiert, da damit die Rekonstruktion umgesetzt werden sollte. Dies wurde verworfen, und stattdessen die vorgestellte Rekonstruktionsmethode realisiert. Daher kann keine verallgemeinerbare Aussage über die Möglichkeiten bei der Rekonstruktion der Spektren getroffen werden. Die zustellenden Fragen bei einer Wei-

---

<sup>1</sup>Bei Relativ-Messungen unter gleicher Geometrie lässt sich dieser Einfluss weitestgehend eliminieren. Dies sollte auch für das Summenspektrum am Fass gelten, wie der Vergleich der Scheibenscans und Punktmessungen (von  $^{60}\text{Co}$  und  $^{90}\text{Sr}$  an Luft) am MGS-1 nahelegt. Auch die Bitumen-Fassmessung mit  $^{60}\text{Co}$  und  $^{90}\text{Sr}$  scheint dies zu unterstützen. D. h. die Summe der einzelnen Messungen eines Scheibenscans kann in einer Vereinfachung als das Ergebnis einer Punktmessung mit Quelle im Zentrum angenommen werden, wobei Abweichungen bei  $^{60}\text{Co}$  im Peak to Total Verhältnis beobachtet wurden, diese jedoch klein sind. Dies gilt, ohne weitere Untersuchungen, zunächst nur für homogene Matrizen.

terführung<sup>2</sup> des Projekts sind: In wie weit kann man die Simulation auf die Summenspektren des  $\gamma$ -Scanning übertragen? Wie groß ist Anzahl der Simulationen, die benötigt werden um ein zur Rekonstruktion geeignetes Spektrum zu erhalten? Ist es generell sinnvoller eine Datenbank mit möglichst vielen Kalibrationskurven von Messungen anzulegen, wie dies im Rahmen dieser Arbeit bereits gestartet wurde? Eine Datenbank aus Messungen, auf die man bei Bedarf entsprechende Absorptionskorrekturen (vgl. Kapitel 6.4.4) und Rückstreupeakkorrekturen (vgl. Kapitel 7.6.2) anwendet, erscheint in der Praxis wesentlich schneller umsetzbar. Das in Abschnitt 7.6 vorgestellte Verfahren beruht darauf und findet entsprechende Nuklide anhand ihrer hinterlegten Referenzspektren. Mit einer großen Datenbank an Referenzspektren bestünde die Möglichkeit die in Kapitel 7.5 vorgestellten Methoden zu verfeinern und zu implementieren. Die  $S(k)$ -Rechnungen aus Abschnitt 7.5.2 bieten Potential bei der Vereinfachung der Simulationen und unter bestimmten Voraussetzungen eine Verbesserungsmöglichkeit für die Quantifizierung.

Die experimentellen Ergebnisse zeigten, dass die Spektren reiner  $\gamma$ -Strahler sehr sensitiv auf geometrische Änderungen im Versuchsaufbau reagieren, d. h. hier tritt eine Änderung des Peak to Total Verhältnisses auf. Bei den beiden hier untersuchten Geometrieeffekten, der Variation des Proben-Detektor-Abstandes und der Auslenkung aus der Detektorachse (Exzentrizität), konnten die Variationen in den Ergebnissen weitestgehend auf den bzw. die Rückstreupeaks zurückgeführt werden. Da dieser bei den kontinuierlichen Spektren eines  $\beta$ -Strahlers nicht auftritt, wurde dort auch keine merkliche Veränderung der Spektrenform beobachtet. Auf Grund der geringen Anzahl an untersuchten Nukliden ist es schwierig diese Beobachtungen zu verallgemeinern. Jedoch zeigte die Erfahrung, die mit Hilfe der Simulation gewonnen wurde, da sich der selbe Trend dort abzeichnete, dass das Verhalten von  $\beta$ - in Vergleich zu  $\gamma$ -Strahlern wohl generelle Gültigkeit haben kann.

Im Kapitel 5 wurde für die Rekonstruktion vorgeschlagen, dass die Anpassung der abzuziehenden  $\gamma$ -Spektren anhand ihrer Peakflächen geschehen sollte. Dies bleibt nur gültig, wenn Sicherheit besteht, dass die zur Rekonstruktion zur Verfügung stehenden Spektren (dabei spielt es keine Rolle ob gemessen oder simuliert) so gut sind, dass das Peak zu Untergrund Verhältnis korrekt ist. Stimmt dies nicht, wird bei der Rekonstruktion die möglicherweise enthaltene Bremsstrahlungsinformation über- oder unterschätzt.

Der gezeigte R-Code trägt dieser Tatsache insofern Rechnung, als dass er versucht alle Kanäle der Messung möglichst ideal anzufitten ohne einzelnen Strukturen im Spektrum zu bevorzugen.

Eine vorgestellte Möglichkeit der Herausforderung, welche durch die Rückstreuung bei der Rekonstruktion auftritt, zu begegnen ist zusätzlich zum eigentlichen Nuklid-Referenzspektrum ein zum Nuklid passendes Rückstreupeak-Spektrum zu berücksichtigen.

Dies wurde bei einer Variante des Auswerteverfahrens im R-Code berücksichtigt. Hier war der Vorteil, dass die verwendeten Referenzdaten ein sehr überschaubares Ausmaß hatten, da das System komplett bekannt war. In der Praxis mit vielen Unbekannten muss sich dies erst beweisen. Eine andere Möglichkeit den Rückstreuungseffekten zu begegnen, ist die Auswahl der Strahler weiter einzuschränken. Da der Rückstreupeak nur bis etwa 255 keV auftritt, kann der Cut-Off bei dieser Energie erfolgen (nicht wie bisher oberhalb der Röntgenlinien, bei ca. 100 keV). So kann man als minimale Energie der Bremsstrahler nicht 150 keV sondern 300 keV fordern. Dies

---

<sup>2</sup>Bei einer Weiterführung dieser Arbeiten sollte überlegt werden ob FLUKA [60] oder Geant4 [61] statt EGSnrc zu Einsatz kommt, diese scheinen eine wesentlich aktivere Community zu haben, die Hilfe stellen kann. Es verstrich extrem viel Einarbeitung in EGSnrc die, zumindest ohne Programmierkenntnisse noch länger zu erwartenden Einarbeitungszeit für Geant4 war ein Wechsel während die vorgelegte Arbeit lief, nicht wirklich möglich. FLUKA war nicht von Anfang an bekannt, und ist generell eher für Energien im höheren MeV-Bereich ausgelegt. Alternativ existiert noch das Programm MCNP [53] von diesem wurde jedoch zu Beginn der Arbeit, von meinem Betreuer abgeraten, da das Augenmerk bei der Programmwahl darauf ausgerichtet war, dass es auch auf handelsüblichen Rechner Ergebnisse in absehbarer Zeit liefern kann. Mit der stetig steigenden Rechenleistung moderner Rechner verschwindet diese Hürde jedoch zusehends.

hat allerdings eine Auswirkung auf die Anzahl der Strahler auf die das Verfahren angewandt werden kann.

Die im Laufe dieser Arbeit gesammelten Erfahrungen zeigen: Für eine schnelle praktische Umsetzung bzw. Implementierung der „Identifizierung von  $\beta$ -Strahler durch ihre Bremsstrahlung“ bei der Auswerterroutine eines  $\gamma$ -Scanners sollte zuerst auf die einfachste hier geschilderte Form der Umsetzung zurück gegriffen werden. Dies ist eine tatsächliche Messung und somit Schaffung einer Datenbank aller in Frage kommenden  $\beta$ -Nuklide am entsprechenden Messsystem. Darüber hinaus sollte nach Möglichkeit eine möglichst umfassende Datenbank durch einzelne Messungen aller verfügbaren  $\gamma$ -Strahler angelegt werden. Erstere dient dem letzten Schritt des Auswerteverfahrens, der Identifikation, letztere wird für die Rekonstruktion der „nur- $\gamma$ -Spektren“ benötigt.

Ungünstig bei der Auswertung der Röntgenlinien ist, dass durch sekundäre Prozesse in den umliegenden Materialien zahlreiche Röntgenlinien entstehen, welche nicht auf ein entsprechendes Radionuklid zurückzuführen sind und nur über Röntgenlinien nachweisbar sind. Um hier eine Reduktion zumindest der Bleilinen des Kollimators zu erhalten, könnte durch Ummantlung (shielding) eben dieses eine Reduktion seiner Bleilinen stattfinden, die einen klareren Blick auf die vom Messobjekt stammende Röntgenstrahlung gewährt. Ein Problem hierbei ist jedoch, dass eine große Wahrscheinlichkeit besteht, dass die Röntgenlinien aus der Quelle, auf Grund von Absorptionseffekten das Messobjekt gar nicht verlassen.

Die Vereinfachung die getroffen wurde, dass nur  $\beta^-$ -Strahler, nicht aber  $\beta^+$ -Strahler ausgewertet werden, geschah mit der Behauptung, dass diese über die Annihilation und den dadurch verursachten Peak gefunden werden können. Dies ist zwar richtig, lässt aber keine Charakterisierung zu. Auch müssen andere Quellen des Annihilationspeaks, wie Hintergrundstrahlung (durch Untergrund Bestimmung) und Nuklide wie  $^{24}\text{Na}$  berücksichtigt werden<sup>3</sup>. In weiteren Arbeiten ist es erforderlich das Verfahren um in Frage kommenden  $\beta^+$ -Strahler zu erweitern.

Die in Kapitel 6.4.4 gezeigte, gut funktionierende MAC-Korrektur ist ein wichtiger Schritt für das Auswerteverfahren, der sehr leicht zugänglich ist. So haben dortige Ergebnisse auch gezeigt dass die komplette Bremsstrahlung bereits in der Quelle erzeugt wurde. Dies war bei den am stationärem HPGe-Detektorsystem gemessen  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und  $^{170}\text{Tm}$ -Quellen durch deren Kunststoffverpackung gewährleistet<sup>4</sup>. Daher waren die hier in den Strahlengang eingebrachten Absorber eindeutig der Absorbermatrix zuzuordnen. Durch die relativ dicke Verpackung der  $^{90}\text{Sr}$ -Stabquellen war dies auch bei den Messungen am mobilen HPGe-Messsystem gewährleistet. So war immer garantiert, dass die Bremsstrahlungsspektren eindeutig waren.

Jedoch zeigte sich im Kapitel 7.7.1 bei der Unterscheidung der Aktivitäten zwischen Beton und Bitumen-Abschirmung bei gleicher Messprobe, das es extrem wichtig ist exakte MAC zu besitzen. Daher sollte in einem permanenten Betrieb sämtliche Quellen, die MAC veröffentlichen, regelmäßig geprüft werden, ob aktuelle Werte vorhanden sind. Auch sollten mit Xcom bedarfsspezifisch Vergleichsrechnungen durchgeführt werden. Generell ist die Abschätzung der Aktivitäten möglich und lieferte hier bei entsprechender Identifikation durch den Vergleich mit den Referenzmessungen immer die richtige Größenordnung. Es kann davon ausgegangen werden, dass dies ebenso mit anderen Nukliden funktioniert.

Ein Punkt der auf Grund der Komplexität der zu erwartenden Spektren nicht untersucht wurde ist die Überlagerung verschiedener Bremsstrahler<sup>5</sup> im gleichen Spektrum. Wie bei der Prüfung

---

<sup>3</sup>Auch können  $\gamma$ -Strahler hoher Energie eingebettet in Material mit hohem  $Z$  einen deutlichen Einfluss auf die Größe des Annihilationspeaks haben.

<sup>4</sup>Kunststoff und generell Materialien mit niedriger  $Z$  eignen sich besonders gut zur Absorption von Elektronen. Daher ist es auch gängige Praxis in der  $\gamma$ -Spektroskopie solche Materialien zur Vermeidung von Elektronen zwischen Quelle und Detektor zu positionieren. Eigene Messungen zeigten dies ebenso.

<sup>5</sup>Könnte man die zur Entfaltung des Spektrums benötigte Matrix  $R(k, k_0)$  für einen ganzen  $\gamma$ -Scanner berech-

des Auswerteverfahrens festgestellt wurde, fand der vorgestellte R-Code bei einigen Messungen bereits Anteile von  $^{99}\text{Tc}$  in den  $^{170}\text{Tm}$ -Spektren. Hier müssen zukünftige Messungen die Verlässlichkeit des Codes belegen. Von Hand wird dies außer unter definierten Bedingungen nicht zu lösen sein.

Die hier gezeigte Methode ist durch die zahlreichen Effekte, die auftreten können, sicher nicht in der Lage in allen Fällen vorhandene Bremsstrahlung aufzuspüren bzw. diese zu identifizieren und eindeutig einem Nuklid zuzuordnen. Sie kann aber in den Fällen, in denen sie greift einen wichtigen Beitrag für die Bestimmung des Nuklidinventars leisten und bei der Abschätzung von Aktivitäten helfen. In den Fällen in denen sie das nicht tut, muss weiterhin eine konservative Abschätzung des Nuklidinventars erfolgen. Die Rekonstruktion kann aber immer helfen, bei Fässern bei denen Zweifel bestehen, ob Bremsstrahler enthalten sind, generell eine Aussage zu treffen ob dies der Fall ist. Allgemein gilt, je höher die Endpunktenergie  $E_0$  (bei vergleichbaren Aktivitäten) eines  $\beta$ -Strahlers ist, desto wahrscheinlicher ist es ihn im  $\gamma$ -Scan nachzuweisen.

Wegen der hohen  $E_0$  von  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  ist die Identifikation und Charakterisierung dieses Strahlerdoppels am zuverlässigsten, da es der Rekonstruktion in der Realität öfter passieren kann, dass ein Teil seines Spektrums gar nicht oder nur von ein oder zwei Nukliden gestört wird. Bei  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  kann durch geschickte Wahl von Ortsverteilungen bereits ein Hinweis erhalten werden, ob diese Strahler enthalten sind. Durch diese günstigen Eigenschaften sollte eine Umsetzung für  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  in den Routinebetrieb am schnellsten möglich sein. Dies ist begrüßenswert, da das  $^{90}\text{Sr}$  in der Abfallwirtschaft eine tragende Rolle spielt.

Das Verfahren ist noch nicht in den Routinebetrieb implementiert worden und es bedarf noch einer größeren Zahl Referenzspektren, jedoch wurde eine solide Basis für eine Auswertung geschaffen. Die Grenzen der Anwendbarkeit müssen ebenfalls noch durch weitere Versuche genauer bestimmt werden. Dann steht der Nutzung von Bremsstrahlungsinformation zur zerstörungsfreien Charakterisierung von radioaktiven Abfallgebänden zumindest für einige wichtige Nuklide nichts mehr im Weg.

---

nen, hätte man die gesamte Information über die enthaltenen Strahler. Diese Berechnung müsste für jede in einem Fass enthaltene Abfallmatrix, also für jedes Fass geschehen, auf Grund der Rotation der Messung auch für jedes der aufgenommene Einzelspektren. Dies lässt sich im Prinzip nur bei Punktmessungen umsetzen. Da für diese bereits eine große Zahl von Energien simuliert werden muss [62]. Praktisch scheint dies für einen  $\gamma$ -Scanner nicht realisierbar, jedoch besteht vielleicht irgendwann eine Möglichkeit dies bei  $\gamma$ -Scans anzuwenden.

# Anhang A

## EGSncr Eingabedatei

Hier ist exemplarisch das Inputfile der in Abbildung 7.28 gezeigten Simulation aufgeführt:

```
TITLE= 2012 Jan Einzelspektrum Ba-133

#####
:start I/O control:

IWATCH= off
STORE INITIAL RANDOM NUMBERS= no
IRESTART= first
STORE DATA ARRAYS= yes
OUTPUT OPTIONS= long
ELECTRON TRANSPORT= normal
DOSE ZBOUND MIN= 1
DOSE ZBOUND MAX= 13
DOSE RBOUND MIN= 0
DOSE RBOUND MAX= 8

:stop I/O control:
#####
#####
:start Monte Carlo inputs:

NUMBER OF HISTORIES= 18000000
INITIAL RANDOM NO. SEEDS= 1, 3
MAX CPU HOURS ALLOWED= 90.000
IFULL= pulse height distribution
STATISTICAL ACCURACY SOUGHT= 0.500
SCORE KERMA= no

:stop Monte Carlo inputs:
#####
#####
:start pulse height distribution input:
```

REGION OF SENSITIVE VOLUME= 9, 24, 39, 40  
SLOTE= 0.001  
DELTAE= 0.005

:stop pulse height distribution input:  
#####  
#####  
:start geometrical inputs:

METHOD OF INPUT= groups  
Z OF FRONT FACE= 0.  
NSLAB= 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1, 1  
SLAB THICKNESS= 0.11, 0.3, 20.13, 0.34, 0.076, 0.4, 0.005, 0.92, 8.2, 3.56, 0.32, 6.2, 0.4, 0.4, 5  
RADII= 0.43, 0.5, 3.745, 3.821, 4.22, 4.35, 9, 15, 15.4, 15.8, 20  
MEDIA= AIR521ICRU,  
NYLON6AND66521ICRU,  
AL521ICRU,  
MYLAR521ICRU,  
GE521ICRU,  
CU521ICRU,  
PB521ICRU;

DESCRIPTION BY= planes  
MEDNUM= 1, 0, 0, 0, 0, 2, 3, 4, 2, 3, 5, 5, 3, 6, 2, 2, 2, 6, 7, 2, 6, 7  
START ZSLAB= 1, 6, 9, 7, 10, 2, 5, 7, 2, 8, 8, 9, 6, 11, 4, 4, 1, 1, 1, 13, 14, 15  
STOP ZSLAB= 12, 6, 9, 12, 10, 2, 5, 7, 2, 11, 8, 9, 12, 11, 8, 4, 13, 14, 15, 13, 14, 15  
START RING= 1, 1, 1, 5, 1, 1, 1, 1, 1, 4, 1, 2, 6, 1, 7, 4, 9, 10, 11, 1, 1, 1  
STOP RING= 8, 5, 1, 5, 3, 7, 6, 4, 7, 4, 3, 3, 6, 3, 7, 6, 9, 10, 11, 9, 10, 11

:stop geometrical inputs:  
#####  
#####  
:start source inputs:

INCIDENT PARTICLE= photon  
SOURCE NUMBER= 1  
SOURCE OPTIONS= 0.5, 0, 0, 1  
INCIDENT ENERGY= spectrum  
SPEC FILENAME= /home/cluster/pr42ke/lu32kec/HEN\_HOUSE/spectra/Jan2012\_Ba133.spectrum  
SPEC IOUOSP= include

:stop source inputs:  
#####  
#####  
:start MC transport parameter:

Global ECUT= 0.521

Global PCUT= 0.001  
 Global SMAX= 1e10  
 ESTEPE= 0.25  
 XImax= 0.5  
 Skin depth for BCA= 3  
 Boundary crossing algorithm= EXACT  
 Electron-step algorithm= PRESTA-II  
 Spin effects= on  
 Brems angular sampling= KM  
 Brems cross sections= BH  
 Photon cross sections= si  
 Electron Impact Ionization= On  
 Photon cross-sections output= off  
 Bound Compton scattering= On  
 Pair angular sampling= Simple  
 Photoelectron angular sampling= On  
 Rayleigh scattering= On  
 Atomic relaxations= On  
 Set PCUT= 0  
 Set PCUT start region= 1  
 Set PCUT stop region= 1  
 Set ECUT= 0  
 Set ECUT start region= 1  
 Set ECUT stop region= 1  
 Set SMAX= 0  
 Set SMAX start region= 1  
 Set SMAX stop region= 1

:stop MC transport parameter:  
 #####  
 #####  
 :start variance reduction:

BREM SPLITTING= off  
 NUMBER OF BREMS PER EVENT= 1  
 CHARGED PARTICLE RUSSIAN ROULETTE= off  
 ELECTRON RANGE REJECTION= off  
 ESAVEIN= 0.0  
 RUSSIAN ROULETTE DEPTH= 0.0000  
 RUSSIAN ROULETTE FRACTION= 0.0000  
 EXPONENTIAL TRANSFORM C= 0.0000  
 PHOTON FORCING= on  
 START FORCING= 1  
 STOP FORCING AFTER= 1  
 CS ENHANCEMENT FACTOR= 1  
 CS ENHANCEMENT START REGION= 1, 1  
 CS ENHANCEMENT STOP REGION= 1, 1

:stop variance reduction:  
 #####

```
#####  
:start plot control:
```

```
PLOTTING= on  
LINE PRINTER OUTPUT= on  
EXTERNAL PLOTTER OUTPUT= on  
EXTERNAL PLOT TYPE= Histogram  
PLOT RADIAL REGION IX= 1, 2  
PLOT PLANAR REGION IZ= 10
```

```
:stop plot control:  
#####
```



## Anhang B

# Code der S(k)-Berechnung

### B.1 Matrix Interpolation

```
function matrix1=generate_matrix_expand_energy()  
%Interpolation der 4*10 Matrix auf 10*10 Matrix  
%Zeile: Energie T(MeV) erweitern auf 0.1-1.0 MeV mit äquidistanten 0.1 MeV  
%Spalte: k/T original von 0.1-1.0  
%Lese original Tabelle—4*10 Matrix  
original_matrix=xlsread('C:\bremstrahlung\original_table.xlsx','B2:K5') ;  
%Erzeuge erweiterte Matrix—10*10 Matrix  
matrix1=zeros(10,10) ;  
%Setze neue Werte für die expandierte Matrix—Interpolation  
matrix1(1,:) =original_matrix(1,:) ;  
matrix1(2,:) =original_matrix(2,:) ;  
equidistant1=(original_matrix(3,:) -original_matrix(2,:) ) /3;  
matrix1(3,:) =original_matrix(2,:) +equidistant1;  
matrix1(4,:) =original_matrix(2,:) +2*equidistant1;  
matrix1(5,:) =original_matrix(3,:) ;  
equidistant2=(original_matrix(4,:) -original_matrix(3,:) ) /5;  
matrix1(6,:) =original_matrix(3,:) +equidistant2;  
matrix1(7,:) =original_matrix(3,:) +2*equidistant2;  
matrix1(8,:) =original_matrix(3,:) +3*equidistant2;  
matrix1(9,:) =original_matrix(3,:) +4*equidistant2;  
matrix1(10,:) =original_matrix(4,:) ;  
%Die neue matrix1 ist eine auf 10*10 interpolierte Matrix.  
xlswrite('C:\bremstrahlung\matrix1_Cu.xlsx',matrix1,'B2:K11') ;  
end
```

## B.2 Erzeugung der Sigma-Matrix

```
function matrix_sigma=generate_matrix_sigma()
%Mache aus matrix1 eine matrix_sigma mit k-Spalten
%Zeile: Energie T(MeV) von 0.1-1.0 MeV mit 0.1 MeV Schritten
%Spalte: k mit MeV als Einheit
%Lese matrix1—10*10 matrix,
matrix1=xlsread('C:\bremstrahlung\matrix1_Cu.xlsx','B2:K11');
%Erzeuge sigma matrix—10*10 Matrix
matrix_sigma=zeros(10,10);
%Interpolation der k/T-Werte für k-Werte in Matrix
Z=29;%Kupfer
for i=1:10
    beta=sqrt(1-1/(1+0.1*i/0.511) ^2);
    for j=1:i%diagonal matrix
        fraction_col=fix(10*j/i);
        % if interger, keine Interpolation benötigt; else, Interpolation
        if (fraction_col==10*j/i)
            matrix_sigma(i,j) =matrix1(i,fraction_col);
        else%lineare Interpolation
            matrix_sigma(i,j) =matrix1(i,fraction_col) +(10*j/i-fraction_col) *(matrix1(i,fraction_
col+1) -matrix1(i,fraction_col) );
        end
        matrix_sigma(i,j) =(Z/beta) ^2*matrix_sigma(i,j) ;%unit:mb per atom
    end
end
%Schreibe neue matrix_sigma
xlswrite('C\bremstrahlung\matrix_sigma_Cu.xlsx',matrix_sigma,'B2:K11');
end
```

### B.3 Berechnung der Matrix $n(T, k)$

```
function matrix_NTk=generate_matrix_NTk()
%N_T_k=N*(sigma/dE/dx) *dE=(NA/M) *(sigma/(dE/density*dx) ) *dE
%Anmerkung: stopping power unit: (1/density) *(dE/dx)
%Lese matrix_sigma—10*10 matrix
matrix_sigma=xlsread('C:\bremsstrahlung\matrix_sigma_Cu.xlsx','B2:K11') ;
%Lese stopping power—1*10 matrix
matrix_stop=xlsread('C:\bremsstrahlung\Stop.Copper.xlsx','B5:B14') ;
%Erzeuge matrix_NTk—10*10 matrix
matrix_NTk=zeros(10,10) ;
NA=6.022*10^23;M=63.5;%unit: g/mol
delta_E=0.1;%dE unit: MeV
%Berechne N(T,k) durch dE Integration von sigma/[(1/density) *(dE/dx) ]
for j=1:10
    i=j;
    matrix_NTk(i,j) =delta_E*matrix_sigma(i,j) /matrix_stop(i) ;
end
for j=1:10
    for i=j+1:10
        matrix_NTk(i,j) =matrix_NTk(i-1,j) +delta_E*matrix_sigma(i,j) /matrix_stop(i)
    ;
    end
end
matrix_NTk=(NA/M) *10^-27*matrix_NTk;%sigma unit mb—>cm-2
%Schreibe matrix_sigma
xlswrite('C:\bremsstrahlung\matrix_NTk_Cu.xlsx',matrix_NTk,'B2:K11') ;
end
```

## B.4 Berechnung von $S(k)$

```
function Sk=generate_matrix_Sk()
%Lese matrix_NTk—10*10 Matrix
matrix_NTk=xlsread('C:\bremstrahlung\matrix_NTk_Cu.xlsx','B2:K11');
%Lese P(T) Elektronen-Spektrum—1*100 matrix (10 keV- Schritte)
matrix_Pt0=xlsread('C:\Users\Ben\Desktop\bremstrahlung\Thullium.xlsx','B2:B101');
%Stauche Pt0 zu einer 1*10 Matrix Pt1
matrix_Pt1=zeros(10);
for i=1:10
    sum=0;
    for j=1:10
        sum=sum+matrix_Pt0((i-1)*10+j);
    end
    matrix_Pt1(i) =sum/100;
end
delt_T=0.1;%dT=0.1 MeV
% Integriere P(T) *dT von 0-1.0 MeV
for i=1:10
    inte_Pt=0;
    inte_Pt=inte_Pt+matrix_Pt1(i) *delt_T;
end
%Erzeuge matrix_Sk—1*10 matrix
matrix_Sk=zeros(1,10);
% Integration von P(T) *N(T,k) *dT an spezifischen k mit T von 0-1.0MeV
% j repräsentiert k, i repräsentiert T
for j=1:10
    sum=0;
    for i=1:10
        sum=sum+ matrix_Pt1(i) *matrix_NTk(i,j) *delt_T;
    end
    matrix_Sk(j) =sum/inte_Pt;%normalize
end
%Schreibe matrix_Sk
xlswrite('C:\bremstrahlung\matrix_Sk_Cu.xlsx',matrix_Sk,'B2:K2');
end
```

# Anhang C

## Quellcode R

### C.1 Code für Preprocessing

```
# linearly interpolate measurements in <element>
# to the energy channels given in egrid
interp2grid <- function(element, egrid){
  approx(x=element$'Energie.keV.',
        y=element$Impulse, xout=egrid, rule=2)
}

# inputs:
# .gesamt: measurement to explain
# use: single-element spectra used to explain <.gesamt>
# cutoff: only use energy levels above <cutoff>
# shift peaks, shiftwindow: shift spectra around
# by at most <shiftwindow> channels
# to account for slightly mismeasured peaks
# drop: names of single-element spectra in <use> to exclude from the model
# output:
# prepped data set as input for <do_glmnet()>
makeData <- function(.gesamt, use, cutoff = 50, shift_peaks=TRUE,
                    shiftwindow=15, drop = NULL){
  egrid <- .gesamt$'Energie.keV.'
  .einzel <- lapply(use, function(x) {
    sapply(x, function(xx){
      interp2grid(xx, egrid)$y
    })
  })
  inputs <- do.call(cbind, .einzel)
  ind_rueck <- c(grep("^Ba", colnames(inputs)), grep("^Cs", colnames(inputs)))
  inputs[, ind_rueck] <- apply(inputs[, ind_rueck], 2, FUN = function(x){
    smooth.spline(x = egrid, y=x)$y
  })
  inputs[, ind_rueck] <- pmax(inputs[, ind_rueck], 0.01)
  .inputs <- t(t(inputs)/colSums(inputs))
  # scale(inputs, center=FALSE, scale=TRUE)
  # combine drop redundant measurements with corr > .9
  .inputs <- cbind(
    Americium3 = .inputs[,names(einzel[["Americium"]])[3] ],
```

```

Barium3 = .inputs[,names(einzel[["Barium"]])[3] ],
Cesium2 = .inputs[,names(einzel[["Cesium"]])[2] ],
Chlor = .inputs[,names(einzel[["Chlor"]])[1] ],
Cobalt45 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Cobalt"]])[c(4,5)] ]),
Strontium123 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Strontium"]]) ]),
Technetium123 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Technetium"]])[1:3] ]),
TechnetiumCu456 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Technetium"]])[4:6] ]),
Thulium = .inputs[,names(einzel[["Thulium"]])[2] ],
Rueck12 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Rueckstreuung"]])[1:2] ]),
RueckExz3456 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Rueckstreuung"]])[3:6] ]),
RueckHoehe789 = rowMeans(.inputs[,names(einzel[["Rueckstreuung"]])[7:9] ]))
if(shift_peaks){
  # shift Co, Ba, Cs, Am + and -shift channels
  # left and right to deal with wrong alignments
  shift <- function(x, shift){
    len <- length(x)
    if(shift == 0) return(x)
    if(shift > 0) return(c(rep(0, shift), head(x, len - shift)))
    if(shift < 0) return(c(tail(x, len - abs(shift)),
                          rep(0, abs(shift))))
  }
  shift_window <- function(x, window, name){
    ret <- vapply(c(-window:-1, 1:window),
                 function(w) shift(x=x, shift=w),
                 numeric(length(x)))
    colnames(ret) <- c(paste0(name, "_leftshift", window:1),
                      paste0(name, "_rightshift", 1:window))
    ret
  }
  .inputs <- cbind(.inputs,
                  shift_window(.inputs[, "Barium3"], shiftwindow, "Barium3"),
                  shift_window(.inputs[, "Cobalt45"], shiftwindow, "Cobalt45"),
                  shift_window(.inputs[, "Cesium2"], shiftwindow, "Cesium2"),
                  shift_window(.inputs[, "Americium3"], shiftwindow, "Americium3"))
}
if(!is.null(drop)) {
  .inputs <- .inputs[, -grep(drop, colnames(.inputs))]
}
data <- cbind(gesamt=.gesamt$Impulse,
             .inputs)
return(structure(data[.gesamt$'Energie.keV.' > cutoff, ],
                egrid=egrid[.gesamt$'Energie.keV.' > cutoff]))
}

```

## C.2 Code für 50 keV Cut-Off ohne Rückstreuung

```
# inputs:
# i, gesamt : fit model for <i>-th entry in list <gesamt>
# einzel, cutoff, drop: see makeData
# output:
# plots results and returns estimated non-zero coefficients
do_glmnet <- function(i, gesamt, einzel, cutoff, drop) {
  library("glmnet")
  opar <- par(no.readonly=TRUE)
  on.exit(par(opar))
  data <- makeData(.gesamt=gesamt[[i]], use = einzel, cutoff = cutoff,
  drop = drop, shift_peaks=TRUE)
  m <- glmnet(x=data[, -1], y=data[, 1], lower=0)
  step <- min(100, ncol(m$beta))
  coefs <- m$beta[, step]
  layout(t(1:2))
  plot(attr(data, "egrid"), log10(data[, 1] + .1), type="s", col=rgb(0,0,0,.3),
  xlab = "keV", ylab = "target_&_fit", sub="target_in_black,_fit_in_red",
  main = names(gesamt)[i])
  lines(attr(data, "egrid"), log10(data[, -1]*%coefs + .1),
  col=rgb(1,0,0,.3))
  coefs <- sort(m$beta[m$beta[, step] !=0, step])
  labels <- names(coefs)
  par(mar=c(3, 10, 3, 3))
  plot(y=1:length(coefs), x=coefs, yaxt="n", ylab="", main="estimated_weights")
  axis(2, at=1:length(coefs), labels=labels, las=1, cex=.5)
  cat("estimated_weights:\n")
  print(t(coefs))
  data.frame(messung=names(gesamt)[i], t(coefs))
}
```

### C.3 Code für 50 keV Cutoff mit Rückstreuung

```
# inputs:
# i, gesamt : fit model for <i>-th entry in list <gesamt>
# einzel, cutoff, drop: see makeData
# output:
# plots results and returns estimated non-zero coefficients
do_glmnet <- function(i, gesamt, einzel, cutoff, drop) {
  library("glmnet")
  opar <- par(no.readonly=TRUE)
  on.exit(par(opar))
  data <- makeData(.gesamt=gesamt[[i]], use = einzel, cutoff = cutoff,
  drop = drop, shift_peaks=TRUE)
  m <- glmnet(x=data[, -1], y=data[, 1], lower=0)
  step <- min(100, ncol(m$beta))
  coefs <- m$beta[, step]
  layout(t(1:2))
  plot(attr(data, "egrid"), log10(data[, 1] + .1), type="s", col=rgb(0,0,0,.3),
  xlab = "keV", ylab = "target_&_fit", sub="target_in_black,_fit_in_red",
  main = names(gesamt)[i])
  lines(attr(data, "egrid"), log10(data[, -1]*coefs + .1),
  col=rgb(1,0,0,.3))
  coefs <- sort(m$beta[m$beta[, step] != 0, step])
  labels <- names(coefs)
  par(mar=c(3, 10, 3, 3))
  plot(y=1:length(coefs), x=coefs, yaxt="n", ylab="", main="estimated_weights")
  axis(2, at=1:length(coefs), labels=labels, las=1, cex=.5)
  cat("estimated_weights:\n")
  print(t(coefs))
  data.frame(messung=names(gesamt)[i], t(coefs))
}
```



## C.4 Code für 90 keV Cut-Off ohne Rückstreuung

```
# inputs:
# i, gesamt : fit model for <i>-th entry in list <gesamt>
# einzel, cutoff, drop: see makeData
# output:
# plots results and returns estimated non-zero coefficients
do_glmnet <- function(i, gesamt, einzel, cutoff, drop) {
  library("glmnet")
  opar <- par(no.readonly=TRUE)
  on.exit(par(opar))
  data <- makeData(.gesamt=gesamt[[i]], use = einzel, cutoff = cutoff,
  drop = drop, shift_peaks=TRUE)
  m <- glmnet(x=data[, -1], y=data[, 1], lower=0)
  step <- min(100, ncol(m$beta))
  coefs <- m$beta[, step]
  layout(t(1:2))
  plot(attr(data, "egrid"), log10(data[, 1] + .1), type="s", col=rgb(0,0,0,.3),
  xlab = "keV", ylab = "target_&_fit", sub="target_in_black,_fit_in_red",
  main = names(gesamt)[i])
  lines(attr(data, "egrid"), log10(data[, -1]*%coefs + .1),
  col=rgb(1,0,0,.3))
  coefs <- sort(m$beta[m$beta[, step] != 0, step])
  labels <- names(coefs)
  par(mar=c(3, 10, 3, 3))
  plot(y=1:length(coefs), x=coefs, yaxt="n", ylab="", main="estimated_weights")
  axis(2, at=1:length(coefs), labels=labels, las=1, cex=.5)
  cat("estimated_weights:\n")
  print(t(coefs))
  data.frame(messung=names(gesamt)[i], t(coefs))
}
```

## C.5 Code für 90 keV Cut-Off mit Rückstreuung

```
# inputs:
# i, gesamt : fit model for <i>-th entry in list <gesamt>
# einzel, cutoff, drop: see makeData
# output:
# plots results and returns estimated non-zero coefficients
do_glmnet <- function(i, gesamt, einzel, cutoff, drop) {
  library("glmnet")
  opar <- par(no.readonly=TRUE)
  on.exit(par(opar))
  data <- makeData(.gesamt=gesamt[[i]], use = einzel, cutoff = cutoff,
  drop = drop, shift_peaks=TRUE)
  m <- glmnet(x=data[, -1], y=data[, 1], lower=0)
  step <- min(100, ncol(m$beta))
  coefs <- m$beta[, step]
  layout(t(1:2))
  plot(attr(data, "egrid"), log10(data[, 1] + .1), type="s", col=rgb(0,0,0,.3),
  xlab = "keV", ylab = "target_&_fit", sub="target_in_black,_fit_in_red",
  main = names(gesamt)[i])
  lines(attr(data, "egrid"), log10(data[, -1]*%coefs + .1),
  col=rgb(1,0,0,.3))
  coefs <- sort(m$beta[m$beta[, step] !=0, step])
  labels <- names(coefs)
  par(mar=c(3, 10, 3, 3))
  plot(y=1:length(coefs), x=coefs, yaxt="n", ylab="", main="estimated_weights")
  axis(2, at=1:length(coefs), labels=labels, las=1, cex=.5)
  cat("estimated_weights:\n")
  print(t(coefs))
  data.frame(messung=names(gesamt)[i], t(coefs))
}
```

# Literatur

1. *IAEA Safety Standards: Classification of Radioactive Waste* INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (Vienna, Austria, 2009). <[http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1419\\_web.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1419_web.pdf)>.
2. *National waste class definitions versus the IAEA's proposed waste classes* <[http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/rwmp-3/Report\\_1.pdf](http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/rwmp-3/Report_1.pdf)> (2015).
3. Bücherl, T., Kaciniel, E. & Lierse, C. *Synopsis of Gamma Scanning Systems (Report WG-A-01)* ENTRAP (Sep. 1998). <<http://www.en-trap.eu/doc/gammasynopsis.pdf>>.
4. Poludniowski, G. G. & Evans, P. M. Calculation of x-ray spectra emerging from an x-ray tube. Part I. Electron penetration characteristics in x-ray targets. *Medical Physics* **34**, 2164–2174 (1. Juni 2007).
5. Cavaliere, A. & Fusco-Femiano, R. X-rays from hot plasma in clusters of galaxies. *Astronomy and Astrophysics* **49**, 137–144 (1. Mai 1976).
6. Watkins, T. <<http://www.sjsu.edu/faculty/watkins/betadecay.htm>> (besucht am 27. 10. 2015).
7. Gilmore, G. *Practical Gamma-ray Spectroscopy* 2. Auflage (John Wiley & Sons, Apr. 2008).
8. Mayer-Kuckuk, T. *Kernphysik : eine Einführung* 4., neubearb. u. erw. Aufl. (Teubner, Stuttgart, 1984).
9. Krücken, R. <[http://www.e12.ph.tum.de/stud/vorlesungen/kruecken/KT-Skript/3-Stabilitaet\\_20091108.pdf](http://www.e12.ph.tum.de/stud/vorlesungen/kruecken/KT-Skript/3-Stabilitaet_20091108.pdf)> (besucht am 30. 10. 2009).
10. Weiss, A. <[http://www.mpa-garching.mpg.de/~weiss/Nukleosynthese\\_04/N04\\_2.pdf](http://www.mpa-garching.mpg.de/~weiss/Nukleosynthese_04/N04_2.pdf)> (besucht am 27. 10. 2015).
11. Zur Nedden, M. <[http://www-hera-b.desy.de/people/nedden/lectures/05\\_06/dettph/dettph\\_kap02.pdf](http://www-hera-b.desy.de/people/nedden/lectures/05_06/dettph/dettph_kap02.pdf)> (besucht am 27. 10. 2015).
12. Weizsäcker, C. F. v. Zur Theorie der Kernmassen. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei* **96**, 431–458 (1935).
13. M. Goeppert Mayer, J. H. D. J. *Elementary Theory of Nuclear Shell Structure* 294 S. (John Wiley & Sons, 1955).
14. Bethe, H. A. & Bacher, R. F. Nuclear Physics A. Stationary States of Nuclei. *Reviews of Modern Physics* **8**, 82–229 (Apr. 1936).
15. Wikipedia. in. Page Version ID: 137115467 (17. Jan. 2015). <<https://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Bindungsenergie&oldid=137115467>> (besucht am 19. 01. 2015).
16. Krücken, R. <<http://www.e12.ph.tum.de/~rkruecken/ModerneExperimenteKernphysik2/Bunt/6-NgleichZ-farbig.pdf>> (besucht am 27. 10. 2015).
17. *Precision Measurement Of W Boson Mass Portends Stricter Limits For Higgs Particle* ScienceDaily. <<http://www.sciencedaily.com/releases/2009/03/090311153414.htm>> (2015).

18. Gasiorowicz, S. *Quantenphysik* Auflage: vollständig überarbeitete und erweiterte Auflage. 594 S. (Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München; Wien, 9. März 2005).
19. Seltzer, S. M. & Berger, M. J. Procedure for calculating the radiation stopping power for electrons. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes* **33**, 1219–1226 (Nov. 1982).
20. Ünak, T., Ongun, B., Ünak, P. & Kumru, M. N. Comparison of the calculated and measured stopping powers of low-energy electrons in different metals. *Applied radiation and isotopes* **46**, 561–562 (1995).
21. Saxena, A., Singh, H., Agrawal, P., Rathi, S. K. & Verma, A. S. Stopping Power of Electrons and Positrons for C, Al, Cu, Ag, Au, Pb, Fe, U, Ge, Si and Mo. en. *Applied Physics Research* **2**, p176 (2010).
22. US Department of Commerce, N. *NIST Stopping-Power and Range Tables: Electrons, Protons, Helium Ions* Stopping-Power and Range Tables: Electrons, Protons, Helium Ions. <<http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>> (2015).
23. Seltzer, S. M. & Berger, M. J. Bremsstrahlung spectra from electron interactions with screened atomic nuclei and orbital electrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **12**, 95–134 (Aug. 1985).
24. Pratt, R. H. *u. a.* Bremsstrahlung Energy Spectra from Electrons of Kinetic Energy 1 keV  $\leq T_1 \leq 2000$  keV Incident on Neutral Atoms  $2 \leq Z \leq 92$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **20**, 175–209 (2 1977).
25. Tseng, H. K. & Pratt, R. H. Exact Screened Calculations of Atomic-Field Bremsstrahlung. *Physical Review A* **3**, 100–115 (Jan. 1971).
26. Manjunatha, H., Chandrika, B., Rudraswamy, B. & Sankarshan, B. Beta Bremsstrahlung dose in concrete shielding. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **674**, 74–78 (Mai 2012).
27. Bethe, H. & Heitler, W. On the Stopping of Fast Particles and on the Creation of Positive Electrons. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A* **146**, 83–112 (1934).
28. Dhaliwal, A. S. Z-dependence of spectral shape of external bremsstrahlung produced by beta particles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **198**, 32–36 (Dez. 2002).
29. Knipp, J. & Uhlenbeck, G. Emission of gamma radiation during the beta decay of nuclei. *Physica* **3**, 425–439 (Juni 1936).
30. Knoll, G. F. *Radiation Detection and Measurement* Auflage: 4. Auflage. 860 S. (John Wiley & Sons, Hoboken, N.J., 24. Sep. 2010).
31. Evans, R. D. *The atomic nucleus* en (McGraw-Hill, 1955).
32. Wu, C.-S. The Continuous X-Rays Excited by the Beta-Particles of  $^{15}\text{P}32$ . *Physical Review* **59**, 481–488 (März 1941).
33. Edwards, J. E. & Pool, M. L. Characteristic X-Rays Excited by Beta-Particles. *Phys. Rev.* **69**, 549–555 (11-12 Juni 1946).
34. Singh, T., Kahlon, K. S. & Dhaliwal, A. S. Dependence of spectral shape of bremsstrahlung spectra on atomic number of target materials in the photon energy range of 5–30 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **664**, 332–335 (1. Feb. 2012).
35. Leo, W. R. *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach* 2nd rev. ed. (Springer Berlin Heidelberg, Feb. 1994).
36. Kleinknecht, K. *Detektoren für Teilchenstrahlung* Auflage: 3.Aufl. 1992. 295 S. (Teubner Verlag, Stuttgart, 1. Jan. 1992).

37. Heitler, W. *The Quantum Theory of Radiation. Third Edition.* (Oxford Clarendon Press, 1954).
38. US Department of Commerce, N. *NIST X-Ray and Gamma-Ray Data X-Ray and Gamma-Ray Data.* <[http://www.nist.gov/pml/data/xray\\_gammaray.cfm](http://www.nist.gov/pml/data/xray_gammaray.cfm)> (2015).
39. Klein, O. & Nishina, Y. Über die Streuung von Strahlung durch freie Elektronen nach der neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac. *Zeitschrift für Physik*, 853–868 (1929).
40. Wikipedia. in. Page Version ID: 137767585 (17. Jan. 2015). <<https://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Compton-Effekt&oldid=137767585>> (besucht am 18.01.2015).
41. US Department of Commerce, N. *NIST XCOM: Photon Cross Sections Database NIST XCOM: Photon Cross Sections Database.* <<http://www.nist.gov/pml/data/xcom/index.cfm>> (2014).
42. *Verfestigung schweizerischer radioaktiver Abfälle mit Bitumen* Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle, NAGRA (1988). <[http://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/\\$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%201985-1986/d\\_ntb85-28.pdf](http://www.nagra.ch/data/documents/database/dokumente/$default/Default%20Folder/Publikationen/NTBs%201985-1986/d_ntb85-28.pdf)>.
43. US Department of Commerce, N. *NIST Physical Reference Data Physical Reference Data.* <<http://www.nist.gov/pml/data/>> (2014).
44. Braden, C. H., Slack, L. & Shull, F. B. The Forbidden Beta-Decay of Sr-90 and Y-90. *Physical Review* **75**, 1964–1965 (Juni 1949).
45. Korea Atomic Energy Research Institute. *Table of Nuclides 2000.* <<http://atom.kaeri.re.kr/>> (besucht am 14.01.2014).
46. Eckerman, K., Westfall, R., Ryman, J. & Cristy, M. Availability of Nuclear Decay Data in Electronic Form, Including Beta Spectra Not Previously Published. *Health Physics October 1994* **67**, 338–345 (1994).
47. Burrows, T. W. *The program RADLST Report BNL-NCS-52142* (Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, 1988).
48. Dhaliwal, A., Powar, M. & Singh, M. Study of bremsstrahlung spectra excited by  $^{170}\text{Tm}$  beta-particles in thick targets. *Il Nuovo Cimento A (1971-1996)* **104**, 121–128 (Jan. 1991).
49. S.Y.F. Chu, L. E. & Firestone, R. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search Version 2.0* Zugriff in 2010. <<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>> (1999).
50. Government of Canada National Research Council. *EGSnrc: software tool to model radiation transport - National Research Council Canada* <[http://www.nrc-cnrc.gc.ca/eng/solutions/advisory/egsnrc\\_index.html](http://www.nrc-cnrc.gc.ca/eng/solutions/advisory/egsnrc_index.html)> (2013).
51. Thanomngam, P. & Johnston, P. N. Monte-Carlo simulation of Bremsstrahlung interference due to K-shell photoelectrons in Compton scattering experiments. *Radiation Physics and Chemistry. 9th International Symposium on Radiation Physics (ISRP-9)* **71**, 637–641 (Okt. 2004).
52. Jabbari, K., Anvar, H. S., Tavakoli, M. B. & Amouheidari, A. Monte Carlo Simulation of Siemens ONCOR Linear Accelerator with BEAMnrc and DOSXYZnrc Code. *Journal of Medical Signals and Sensors* **3**, 172–179 (2013).
53. *Initial MCNP6 Release Overview - MCNP6 version 1.0 draft* (24. Apr. 2013).
54. Nucleonica GmbH. *nucleonica ...web driven nuclear science* <<http://www.nucleonica.com>> (2013).
55. *Interactive Chart of Nuclides* <http://www.nndc.bnl.gov/chart/>. <<http://www.nndc.bnl.gov/chart/>> (besucht am 29.02.2012).
56. Browne, E. Nuclear Data Sheets for A = 90. *Nuclear Data Sheets* **82**, 379–546 (Nov. 1997).

57. Seltzer, S. M. & Berger, M. J. Bremsstrahlung energy spectra from electrons with kinetic energy 1 keV - 10 GeV incident on screened nuclei and orbital electrons of neutral atoms with  $Z = 1 - 100$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **35**, 345–418 (Nov. 1986).
58. R Core Team. *R: A Language and Environment for Statistical Computing* R Foundation for Statistical Computing (Vienna, Austria, 2014). <<http://www.R-project.org/>>.
59. Friedman, J., Hastie, T. & Tibshirani, R. Regularization Paths for Generalized Linear Models via Coordinate Descent. *Journal of Statistical Software* **33**, 1–22 (1 2010).
60. *FLUKA: a multi-particle transport code* SLAC-R-773 (Okt. 2005).
61. Geant4—a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **506**, 250–303 (1. Juli 2003).
62. Süksöd, C., Galster, W., Licot, I. & Simonart, M. Spectrum unfolding in high energy gamma-ray detection with scintillation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **355**, 552–558 (Feb. 1995).