

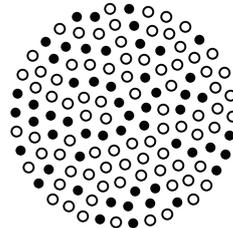
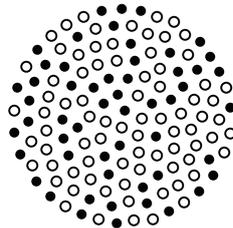
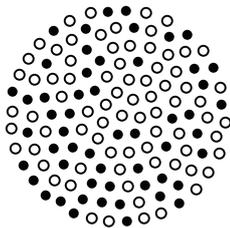
**Konzept einer kompakten Messeinrichtung
mit (Cd,Zn)Te-Detektoren zur Bestimmung
der Radionuklidkonzentrationen in
der Abluft kernphysikalischer Anlagen
zur Überwachung des CTBT**

Masterarbeit zur Erlangung des akademischen Grades
“Master of Science” in der Fachrichtung Physik

vorgelegt von

Florian Gubernator

Hamburg, 12. Juni 2017



Universität Hamburg, Fachbereich Physik

Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und
Friedensforschung (ZNF)

Erstgutachter Prof. Dr. Gerald Kirchner
*Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für
Naturwissenschaft und Friedensforschung
Universität Hamburg*

Zweitgutachter Dr. Andreas Bollhöfer
*Bundesamt für Strahlenschutz
Freiburg*

Abstract

Part of the German contribution to the IAEA coordinated research project ‘*Sharing and Developing Protocols to Further Minimize Radioactive Gaseous Releases to the Environment during the production of Medical Radioisotopes via the Irradiation of Uranium Targets*’ is a research project on building a compact, mobile measurement system capable of detecting different xenon isotopes emitted from medical isotope production facilities and other sites handling nuclear substances.

In cooperation with Belgian authorities a deployment at the *Institute National des Radioéléments* (IRE) facility in Fleurus (Belgium) was conducted. A set-up using a Cadmium-Zinc-Telluride (CZT) detector was deployed there. CZT semiconductor detectors have promising properties for this application as they offer a better resolution than sodium iodide (NaI) detectors and don’t require a cooling component like HPGe detectors, as they can be operated at room temperature.

The setup produces results comparable to the monitoring system of the plant operators for the xenon isotopes ^{133}Xe , ^{135}Xe and ^{135m}Xe as well as plausible measurements for ^{131}I and ^{133}I .

Kurzfassung

Als Teil des deutschen Beitrags zum *coordinated research project ‘Sharing and Developing Protocols to Further Minimize Radioactive Gaseous Releases to the Environment during the production of Medical Radioisotopes via the Irradiation of Uranium Targets’*¹ der IAEA wurde ein Forschungsvorhaben durchgeführt, in dem eine kompakte, mobile Messeinrichtung aufgebaut wurde, die in der Lage sein sollte, die Menge an Radioxenonisotopen in der Abluft medizinischer Isotopenfabriken und anderer nuklearer Anlagen zu überwachen.

In Zusammenarbeit mit den belgischen Behörden und den Betreibern des *Institute National des Radioéléments* (IRE) in Fleurus in Belgien wurde eine solche Messeinrichtung eingesetzt. Es wurde dort ein Aufbau mit einem Cadmiumzinktellurid-

¹“Austausch und Entwicklung von Verfahren zur weiteren Verringerung des Ausstoßes radioaktiver Gase an die Umwelt während der Produktion von medizinischen Radioisotopen durch die Bestrahlung von Uran-Targets”

Halbleiterdetektor aufgebaut. CZT-Detektoren sind für diese Anwendung vielversprechend, da sie eine bessere Auflösung als NaI-Detektoren erreichen und gleichzeitig nicht wie HPGe-Detektoren stark heruntergekühlt werden müssen, sondern bei Raumtemperatur betrieben werden können.

Die Messung lieferte mit den Betreiberdaten vergleichbare Aktivitätskonzentrationen für die Radioxenonisotope ^{133}Xe , ^{135}Xe und ^{135m}Xe sowie plausible Werte für die Iod-Isotope ^{131}I und ^{133}I .

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Radioxenonisotope für die Verifikation des CTBT	5
2.2	Atmosphärische Transportrechnung und der globale Xe-Hintergrund .	10
2.3	Medizinische Radionuklide	11
2.4	Gammaspektrometrie	14
2.5	Halbleiterdetektoren	18
2.6	(Cd,Zn)Te-Detektoren	21
2.7	Peak-Suche nach Mariscotti	24
3	Experimenteller Aufbau und Messmethoden	26
3.1	CZT-Detektor “MicroSpec”	26
3.2	Messaufbau	31
3.3	Analytische Betrachtung	33
3.4	Vergleichsmessung	38
3.5	Datenverarbeitung und Analysesoftware	42
4	Ergebnisse und Diskussion	46
4.1	Messdaten der Kampagne	47
4.2	Aktivitätskonzentrationen von Xenon und Iod und Vergleich mit der betreibereigenen Messeinrichtung	49
5	Zusammenfassung und Ausblick	60
6	Literaturverzeichnis	62
7	Anhang	I

1 Einleitung

»A world without nuclear weapons would be less stable and more dangerous for all of us.«

– **Margaret Thatcher**

»Es gibt im Leben Augenblicke da die Frage, ob man anders denken kann, als man denkt, und auch anders wahrnehmen kann, als man sieht, zum Weiterschauen und Weiterdenken unentbehrlich ist.«

– **Michel Foucault**

Bereits mit dem Test des ersten nuklearen Sprengsatzes ‘Trinity’ am 16. Juli 1945 ließen sich die verheerenden Konsequenzen dieser Neuentwicklung erahnen. Letztgültig bewiesen wurde die Gefährlichkeit dieses neuen Zeitalters der nuklearen Waffen durch die Bombardierung von Hiroshima und Nagasaki Anfang August 1945.

Der rasante Anstieg der Zahl der Nuklearwaffentests führte bereits 1963 zur Unterzeichnung des bilateralen “Vertrag über das Verbot von Kernwaffenversuchen in der Atmosphäre, im Weltraum und unter Wasser” (englisch: Partial Test Ban Treaty - PTBT). Während der Vertrag den Effekt hatte, dass Kernwaffentests nunmehr weitestgehend unterirdisch durchgeführt werden, und damit den weltweiten radioaktiven Niederschlag zu reduzieren vermochte, gingen die Kernwaffentests ungehemmt weiter und vervielfachten sich in ihrer Häufigkeit. Insgesamt sind über 2000 Tests nuklearer Sprengkörper verzeichnet. (Abbildung 1)

Seit 1976 haben Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler in der *Group of Scientific Experts* Überwachungstechniken und Methoden der Datenanalyse für die Verifikation eines umfassenden Teststopps erforscht, auch ohne die unmittelbare Aussicht auf ein internationales Abkommen. Nach Ende des Kalten Krieges wuchsen international erneut Bemühungen um einen vollständigen Kernwaffenteststopp zur Verhinderung einer Weiterentwicklung und -verbreitung von Nuklearwaffen und um die nukleare Abrüstung. Schliesslich wurde erst 1994 - also kurz nach Ende des Kalten Krieges - mit den Verhandlungen durch die *Conference on Disarmament* der Vereinten Nationen über den Kernwaffenteststopp-Vertrag (Comprehensive Nuclear-Test-Ban

Treaty, CTBT) begonnen. Durch die bereits getätigte Forschung konnten die Bestimmungen über die Überwachung der Einhaltung relativ schnell gefasst werden. Der CTBT ist damit der erste nukleare Rüstungsbegrenzungsvertrag, welcher ein umfassendes, internationales Verifikationsregime vorsieht.

Mit der Vorlage des CTBT für die Signierung dient er als internationale Norm in Bezug auf Nukleartests, obwohl der Vertrag noch nicht in Kraft getreten ist, da hierfür die Ratifizierung durch alle in Annex II aufgeführten Staaten² erforderlich ist. Wie in Abbildung 1 zu erkennen ist, sind die nuklearen Tests damit praktisch zum Erliegen gekommen. Nur drei Staaten haben seit der Übereinkunft über den CTBT Atomwaffentests durchgeführt: Indien, Pakistan und Nordkorea.

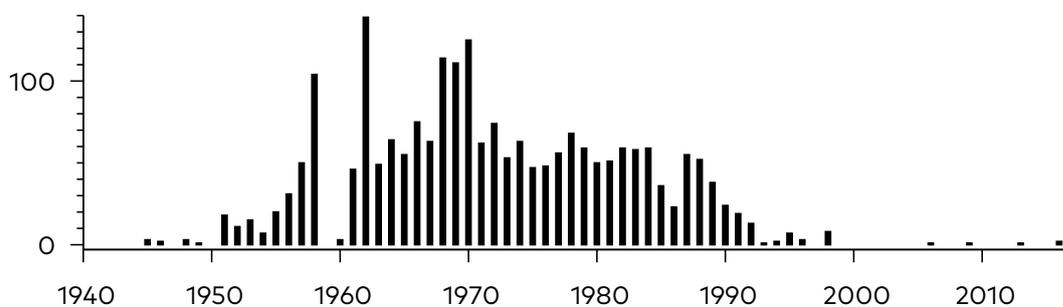


Abbildung 1 – Weltweite Nuklearwaffentests in absoluten Zahlen zwischen 1945 und 2016 [Jr.06, CTBb]³

Die *Preparatory Commission for the Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty Organization* wurde 1996 in Wien als vorläufige Organisation eingesetzt, um das Verifikationsregime des CTBT für dessen Inkrafttreten vorzubereiten. Bereits jetzt werden vom *Provisional Technical Secretariat* drei technische Abteilungen betrieben: Das Internationale Monitoringsystem (IMS), das Internationale Datenzentrum (IDC) und die Abteilung für Vor-Ort-Inspektionen (OSI).

Die *Preparatory Commission* hat bereits ein weitgehend funktionales Überwachungsnetz für die Detektion von Atomwaffentests eingerichtet. Im CTBT werden genaue Vorgaben für sowohl das internationale Messnetz als auch die Vor-Ort-Inspektion formuliert. So werden im *Annex I* zum Protokoll die Einrichtungen, die das Internationale Monitoringsystem ausmachen, aufgelistet. Für das IMS wurden bereits

²Die in Annex II aufgeführten Staaten sind diejenigen, die an der Sitzung der Conference on Disarmament 1996 teilnahmen und zu diesem Zeitpunkt über ein Kernkraftwerk oder einen Forschungsreaktor verfügten.

³Die Daten nach 2006 beziehen sich auf detektierte seismische Ereignisse in der Demokratischen Volksrepublik Korea, die jeweils vom Land selbst als Kernwaffentests bezeichnet wurden.

282 (von geplanten 321) Stationen zertifiziert (Abb. 2). Von den vorgesehenen 170 seismischen Stationen senden bereits 133 Daten.

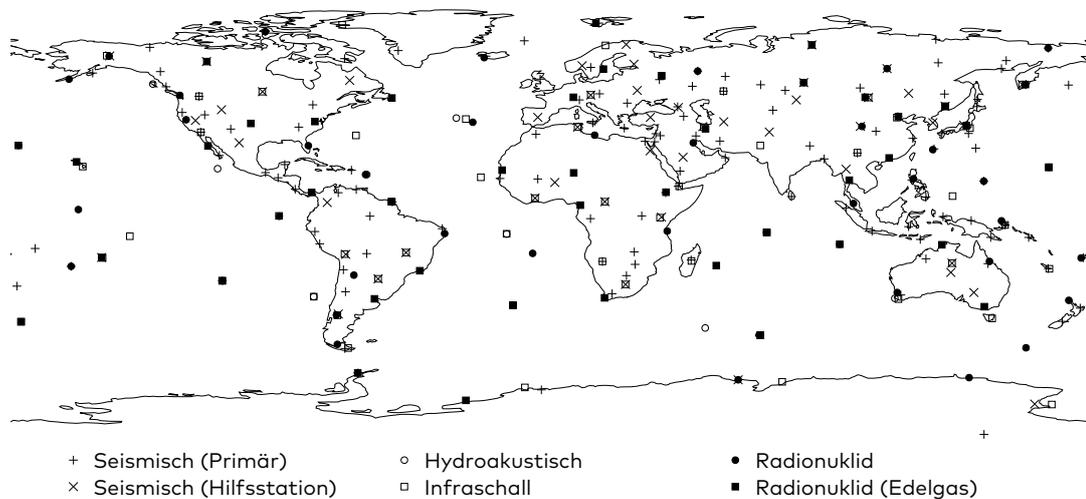


Abbildung 2 – Geplante und bestehende Messstationen des internationalen Messnetzes (IMS) zur Überwachung des CTBT [CTBa]

Das Verifikationsregime setzt für das IMS vier Methoden der technischen Überwachung ein: seismische, hydroakustische, Infrasschall- und Radionuklidmessungen. Während die drei Verfahren der seismischen, hydroakustischen und Infrasschallmessung Wellenausbreitung untersuchen, ist die Messung von Radionukliden das einzige der Verfahren, das dazu geeignet ist zu beweisen, dass es sich bei einer detektierten Explosion um einen nuklearen Test gehandelt hat. Während nämlich Explosionen bis zu einer gewissen Stärke von konventionellen Sprengkörpern erzeugt werden können, kann eine Messung charakteristischer Radioisotope eine nukleare Explosion belegen (“smoking gun”).

Radioisotope sind Stoffe, deren Kerne instabil sind und die deshalb radioaktive Strahlung abgeben. Bei einem nuklearen Test werden durch Kernreaktionen Spaltprodukte erzeugt, bei denen es sich zum größten Teil um radioaktive Stoffe handelt. Diese werden als Partikel durch atmosphärischen Transport bewegt und können so große Distanzen überwinden. Unterwasser- und unterirdische Atomwaffentests geringer Tiefe können so nachgewiesen werden. Gut abgeschirmte Tests unter der Erde oder tief unter Wasser geben praktisch keine radioaktiven Partikel an die Luft ab. Radioaktive Edelgase jedoch reagieren nicht mit anderen Stoffen und dringen über Diffusion und barometrisches Pumpen sogar durch Schichten von Gestein und Sedi-

ment und werden dadurch freigesetzt. Auch sie werden dann durch Luftbewegungen verbreitet.

Atmosphärische Modelle der Luftmassenbewegungen erlauben es, nach dem Nachweis von den charakteristischen Stoffen, die u. a. durch eine nukleare Explosion hervorgerufen werden, in einer Luftprobe zu modellieren, woher diese stammen.

Das IMS besitzt nach der Fertigstellung 80 Radionuklidmessstationen, um Radioaktivität in der Atmosphäre zu messen. Von diesen sind 40 in der Lage, auch Edelgase zu detektieren. Hierzu werden die Radioisotope des Edelgases Xenon herangezogen. Radioxenon aus zivilen Quellen wie z. B. der Abluft kerntechnischer Anlagen stellt eine Störung der Messung dieses internationalen Messnetzes dar. Das Carl Friedrich von Weizsäcker-Zentrum für Naturwissenschaft und Friedensforschung (ZNF) und das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) führen ein gemeinsames Forschungsvorhaben im Rahmen eines koordinierten Forschungsprojektes (CRP) der Internationalen Atomenergie-Organisation (IAEA) durch. Dabei sollen unter anderem für die Abluft medizinischer Isotopenfabriken Messdaten mit Raumtemperaturdetektoren aufgenommen und ausgewertet werden, um die Unterscheidbarkeit der Quellen radioaktiver Edelgase in der Atmosphäre zu verbessern.

Cadmiumzinktellurid (CZT) könnte ein geeignetes Detektormaterial darstellen, um in Isotopenfabriken bereits in den Anlagen die Aktivitätskonzentration des Edelgases Xenon in der Abluft zu messen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein CZT-Detektor untersucht, zur Erstellung eines kompakten Messaufbaus herangezogen und in einer Radioisotopenfabrik eingesetzt. Eine Messkampagne im Nationalen Instituts für Radioelemente in Fleurus (IRE, Belgien) hat eine erste Datenbasis geliefert. Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Evaluierung der Eignung eines solchen Systems.

Im folgenden sollen zunächst die theoretischen Grundlagen der Gammaskopie und Isotopenanalyse zusammen mit einem Vergleich der verschiedenen Detektortypen und den für das IMS relevanten Störfaktoren dargestellt werden. Dem folgen eine Erklärung des Messaufbaus mit den Eigenschaften und der Kalibrierung des Detektors und eine Beschreibung der Messkampagne. Schließlich werden die gewonnenen Daten ausgewertet und mit den Referenzdaten des Betreibers verglichen.

2 Theoretische Grundlagen

Bei der Produktion von Radioisotopen für die Anwendung in der Medizin werden Präparate mit kurzen Halbwertszeiten erzeugt, sodass schnell eine Sättigung in den Brennelementen erreicht wird. Deshalb verbleiben die Targets nur wenige Tage im Reaktor. Im Gegensatz zu Brennelementen in Kernkraftwerken, die über Monate bis Jahre hinweg bestrahlt werden, ähnelt die Dauer der Bestrahlung also viel eher der einer sehr kurzen Kettenreaktion von einigen Millisekunden in einer Kernwaffe. Dies drückt sich in den Verhältnissen der Aktivitäten der Spalt- und Zerfallsprodukte wie den Radioxenonisotopen aus. Deshalb und weil medizinische Isotopenfabriken (MIF) eine viel höhere Aktivität von Xenon-Isotopen ausstoßen als Kernkraftwerke, stellen sie die größte Störung der Messsignale der Radionuklidmessstationen des IMS dar.

Wenn man bestimmt, wie viel Radioxenon die MIF ausstoßen, und den Weg in der Atmosphäre modellieren kann, lässt sich unter Umständen der Ursprung des Signals an der Messstation bestimmen und der den MIF zuzurechnende Anteil abziehen.

Die Messeinrichtungen in der Nähe der beobachteten Quellen müssen in der Lage sein, die radioaktive Strahlung energieaufgelöst zu detektieren, damit verschiedene Radionuklide identifiziert und quantifiziert werden können. Verschiedene Materialien werden hierzu eingesetzt, um über Interaktion mit der radioaktiven Strahlung eine Zählstatistik zu erzeugen. Ein Material, das für den beschriebenen Einsatz eventuell geeignet ist, ist der Halbleiter Cadmiumzinktellurid.

2.1 Radioxenonisotope für die Verifikation des CTBT

Fast alle Spalt- und Aktivierungsprodukte einer Nuklearexplosion sind Feststoffe. Bei unterirdisch durchgeführten Kernwaffentests dringen diese Stoffe, die sich zu Partikeln formen oder an ihnen anhaften, nicht an die Oberfläche und werden deshalb auch nicht in der Atmosphäre verteilt und sind damit dem internationalen Messnetz nicht zugänglich. Im Gegensatz dazu ist ein Austritt der produzierten radioaktiven Edelgase praktisch nicht zu verhindern. Sie sind deshalb als Indikatoren für die Verifikation des CTBT von besonderem Interesse. Die nach einer Nuklearexplosion vorhandenen Edelgase sind dabei Isotope von Argon, Krypton und Xenon.

Nuklid	Produkt	Kumulative Spaltausbeute durch		
		Thermische Neutronen	Schnelle Neutronen	14 MeV-Neutronen
$^{235}_{92}\text{U}$	^{82}Kr	0.000285 ± 0.000076	0.00044 ± 0.00016	1.64 ± 0.31
	^{85}Kr	0.286 ± 0.021	0.286 ± 0.026	0.038 ± 0.012
	^{85m}Kr	1.303 ± 0.012	1.307 ± 0.043	0.47 ± 0.1
	^{99}Mo	6.132 ± 0.092	5.8 ± 0.13	0.0033 ± 0.0015
	^{131}I	2.878 ± 0.032	3.365 ± 0.054	1.59 ± 0.18
	^{133}I	6.59 ± 0.11	6.61 ± 0.13	4.11 ± 0.14
	^{131m}Xe	0.0313 ± 0.003	0.0365 ± 0.0031	0.038 ± 0.014
	^{133}Xe	6.6 ± 0.11	6.61 ± 0.13	0.047 ± 0.0049
	^{133m}Xe	0.189 ± 0.015	0.19 ± 0.015	5.57 ± 0.41
	^{135}Xe	6.61 ± 0.22	6.32 ± 0.18	0.281 ± 0.049
	^{135m}Xe	1.22 ± 0.12	1.23 ± 0.13	6.4 ± 1.8

Tabelle 1 – Die Spaltausbeute einiger Isotope von Interesse [nuc]

Argon entsteht dabei durch die Aktivierung von eventuell vorhandenem Kalzium im umgebenden Gestein oder Boden und emittiert wenige Photonen, so dass die Messung sich als zu aufwendig erweist. Die meisten entstehenden Kryptonisotope besitzen eine zu kurze Halbwertszeit, um vom IMS nachgewiesen zu werden. Das Isotop ^{85}Kr hingegen liegt aufgrund seiner langen Halbwertszeit von 10.7 Jahren in der Atmosphäre als Hintergrund vor und überlagert so die Signale von Kernwaffentests. Zusätzlich liegen die Spaltausbeuten der Kryptonisotope weit unter denen von Xenon (Tabelle 1). Besonders geeignet sind die Radioxenonisotope ^{131m}Xe , ^{133m}Xe , ^{133}Xe und ^{135}Xe , die Halbwertszeiten im Bereich von Stunden und Tagen aufweisen (Tabelle 2) und technisch vergleichsweise einfach quantifizierbar sind. [Sae05]

2.1.1 Xe-Isotope von Interesse und assoziierte Energien

Radioaktive Xenonisotope können dazu genutzt werden, vermutete unterirdische Kernwaffentests zu bestätigen. Dafür ist es jedoch notwendig, die zivilen Quellen von in der Atmosphäre vorhandenem Xenon zu verstehen und unterscheiden zu können. Die hauptsächliche Quelle von Radioxenon ist anthropogen durch den Betrieb ziviler kerntechnischer Anlagen. Dabei stoßen medizinische Isotopenfabriken (MIF) mit etwa 10^{11} bis 10^{13} Bq/d um ein Vielfaches mehr Radioxenon aus als Kernkraftwerke, die in der Größenordnung einiger 10^9 Bq/d emittieren. Eine unterirdische Nuklearexplosion mit einer Sprengkraft von 1 kT TNT-Äquivalent kann einmalig eine Radioxenonaktivität von bis zu 10^{15} Bq freisetzen. [Sae09]

Es gab daher in der Vergangenheit bereits mehrere Bestrebungen, Messeinrichtungen

^{131m}Xe		^{133}Xe		^{133m}Xe		^{135}Xe		^{135m}Xe	
$t_{1/2} = 11.8 \text{ d}$		$t_{1/2} = 5.25 \text{ d}$		$t_{1/2} = 2.2 \text{ d}$		$t_{1/2} = 9.14 \text{ h}$		$t_{1/2} = 15.29 \text{ m}$	
E_γ / keV	P_γ	E_γ / keV	P_γ	E_γ / keV	P_γ	E_γ / keV	P_γ	E_γ / keV	P_γ
4.47	8.12			4.47	7.6			4.47	1.64
		4.674	5.79						
29.46	15.5			29.46	16.0			29.46	3.90
29.78	28.7							29.78	7.22
		30.63	13.54						
		30.97	25.0						
33.69	8.31			33.69	8.61			33.69	2.09
34.49	1.96			34.49	2.03			34.49	0.49
		35.05	7.31						
		35.9	1.78						
		79.613	0.27						
		81	38.0			158.26	0.290		
		160.61	0.066						
163.93	1.91			233.21	10.16	249.77	90		
		302.85	0.0048			408.01	0.359	526.57	80.84
						608.15	2.90	786.89	0.0036

Tabelle 2 – Die Halbwertszeiten und die wichtigsten γ -Zerfallsenergien der Xenon-Isotope ^{131m}Xe , ^{133}Xe , ^{133m}Xe , ^{135}Xe und ^{135m}Xe mit der Anzahl an Photonen pro 100 Zerfälle P_γ [BCD⁺08, BCD⁺16, Tab]

zur Bestimmung der Edelgas-Konzentrationen in der Atmosphäre zu entwickeln. Die *CTBT Preparatory Commission* betreibt bereits die meisten der geplanten 40 Messstationen zu diesem Zweck. Diese sind in der Lage, ^{133}Xe mit einer Empfindlichkeit von besser als 1 mBq/m^3 zu messen. 1999 wurde das International Noble Gas Experiment (INGE) durchgeführt, in welchem verschiedene Messeinrichtungen für radioaktive Edelgase verglichen wurden. Ein System verwendete hierbei hochauflösende Gammaskpektrometrie (SPALAX); die anderen drei untersuchten Systeme basierten auf niedrigauflösender Beta-Gamma-Koinzidenz-Spektrometrie (ARIX, ARSA und SAUNA). [Sae09]

Xenon-Isotope sind zwar Marker von Nuklearwaffentests, jedoch gibt es weltweit mehr als 500 kerntechnische Anlagen, die Radioxenon ausstoßen. Für die Unterscheidung zwischen Kernwaffentests und dem normalen Betrieb von Kraftwerksreaktoren werden die Aktivitätenverhältnisse der Radioxenonisotope herangezogen. Dabei ist die Unterscheidung unter Berücksichtigung der Verhältnisse $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ und $^{133m}\text{Xe}/^{131m}\text{Xe}$ zuverlässig möglich. In der Ebene dieser beiden Isotopenverhältnisse (‘Kalinowski-Pistner-Plot’, Beispiel in Abb. 3) lässt sich eine Trennlinie definieren, die die Einordnung verschiedener Quellen ermöglicht. [KP06]

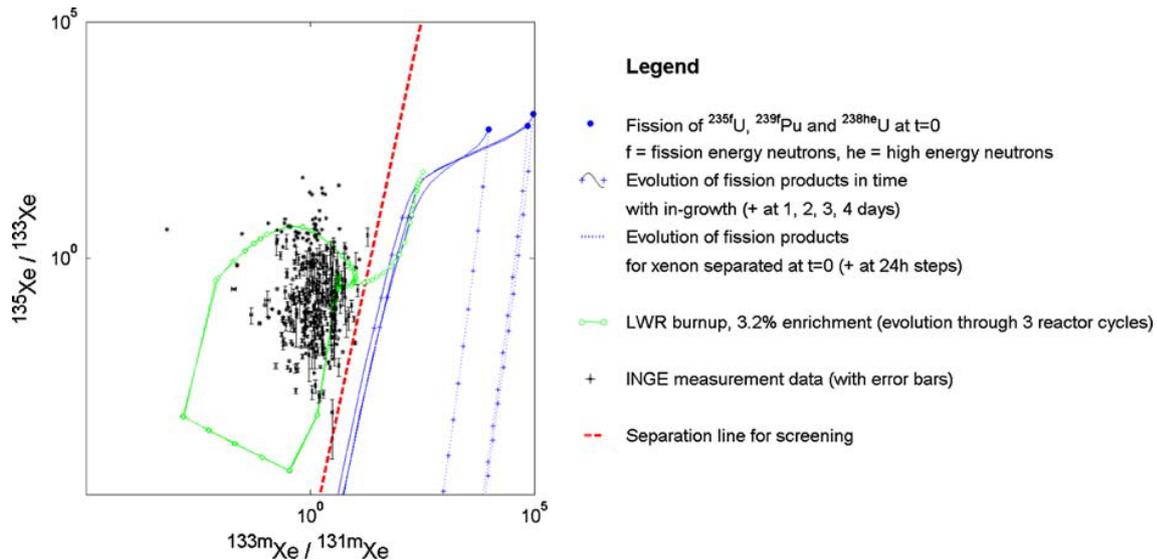


Abbildung 3 – ‘Kalinowski-Plot’: Zeitinvariante Quellunterscheidung von Signalen von atmosphärischen Messungen anhand der Isotopenverhältnisse von $^{133\text{m}}\text{Xe}/^{131\text{m}}\text{Xe}$ und $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ [KAB⁺10]

Im Gegensatz zu Kraftwerksreaktoren im Regelbetrieb verursacht die kurze Bestrahlung von hochangereichertem Uran (HEU), wie sie zur Herstellung von ^{99}Mo verwendet wird, einen Xe-Isotopenvektor, der dem eines Kernwaffentests ähnelt und daher auf der mit Kernwaffentests assoziierten Seite dieser Trennlinie liegen kann. Dies kann die Differenzierung ziviler und militärischer Quellen verkomplizieren und das Vertrauen in das Internationale Monitoringsystem schwächen, da ein Fehlalarm wahrscheinlicher wird. [KAB⁺10]

Nach Angaben der Betreiber gibt es während des Produktionsprozesses im IRE starke Schwankungen in den Isotopenverhältnissen.

Ein konventioneller Ansatz für die Überwachung des Radioxenon in der Abluft von MIF ist es deshalb beispielsweise im IRE, die Gesamtzählrate eines β -Detektors als Grundlage zu verwenden und die verschiedenen Xenonisotope mit einem Faktor als anteilig an dieser Zählrate zu betrachten. Durch eine gezielte Überschätzung der Faktoren ließ sich so eine obere Grenze für die einzelnen Isotope bestimmen. Es konnte jedoch keine Aussage über die jeweilige tatsächliche Aktivität getroffen werden. Eine Methode, die tatsächlich die Aktivitätskonzentrationen feststellen kann, ist weit informativer. [Dec13]

Tabelle 2 führt die Halbwertszeiten und wichtigsten γ -Zerfallsenergien der Xenonisotope von Interesse auf.

2.1.2 Aktivitätskonzentrationen in der Abluft von MIF

Zur Abschätzung der nötigen Empfindlichkeit eines Detektor-Systems ist es notwendig, die zu erwartende Aktivitätskonzentration in der Abluft zu kennen.

In der medizinischen Isotopenfabrik PT Industry Nuklir Indonesia (INUKI) in Serpong (Indonesien) wurde 2012 eine Kampagne zur Bestimmung des Radioxenonausstoßes der Anlage durchgeführt. Während der Kampagne und bei einer Flussrate der Abluft von $F_{\text{Stack}} = 2.2 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{h}$ und einer ausgestoßenen ^{133}Xe -Aktivität von $1.84 \times 10^{13} \text{ Bq}/\text{Woche}$ [ECD⁺15] ergibt sich eine mittlere Aktivitätskonzentration in der Abluft der Anlage von $5 \text{ MBq}/\text{m}^3$.

Für die am INUKI eingesetzte Messeinrichtung wurde ein Marinelli-Becher mit einem Volumen von 1 L als Probenvolumen verwendet.

Für das IRE ist in den eigenen Veröffentlichungen eine Aktivität in der Abluft im Bereich von 5 (Drainage der Cryo-Falle) bis $40 \text{ MBq}/\text{m}^3$ (Öffnen einer Uran-Müll-Box) angegeben. [Dec13]

2.1.3 Verminderung des Xenon-Austoßes

Die beste Möglichkeit, um die Störung des IMS durch Xenon in der Atmosphäre zu verringern, ist die Verringerung der Ausstöße anthropogener Quellen. Dabei ist das Zurückhalten von Xenon besonders schwierig, da es sich um ein Edelgas handelt, welches chemisch wenig reaktiv ist und viele Materialien durchdringen kann. [DSB⁺14] Da jedoch die Xenon-Isotope und die Iod-Mutterisotope eine kurze Halbwertszeit haben, kann für eine Minderung des Austoßes bereits das Verzögern hilfreich sein. Für Xenon werden deshalb Gastanks, Aktivkohle-Verzögerungsstrecken und andere Verfahren verwendet.

Da ^{133}I mit einer Halbwertszeit von 20.87 h zu ^{133}Xe und ^{131}I mit einer Halbwertszeit von 8 d zu ^{131m}Xe zerfallen, ist auch die Verminderung der Abgabe der Iodisotope wichtig. Iod kann durch verschiedene chemische Prozesse gebunden bzw. verzögert werden. [DSB⁺14]

2.2 Atmosphärische Transportrechnung und der globale Xenon-Hintergrund

Es gibt weltweit einige hundert Quellen menschengemachter Radioxenonisotope. MIF sind die hauptsächlichen Verursacher und deshalb für ein lokales Monitoring in bzw. bei den Anlagen besonders interessant. [SRB⁺13] Nur fünf ⁹⁹Mo-Versorger in Australien, Belgien, Kanada, den Niederlanden und Südafrika decken 95% des weltweiten Bedarfs. Die Standorte dieser MIF, die auch international exportieren, sind in Abbildung 4 zu sehen.

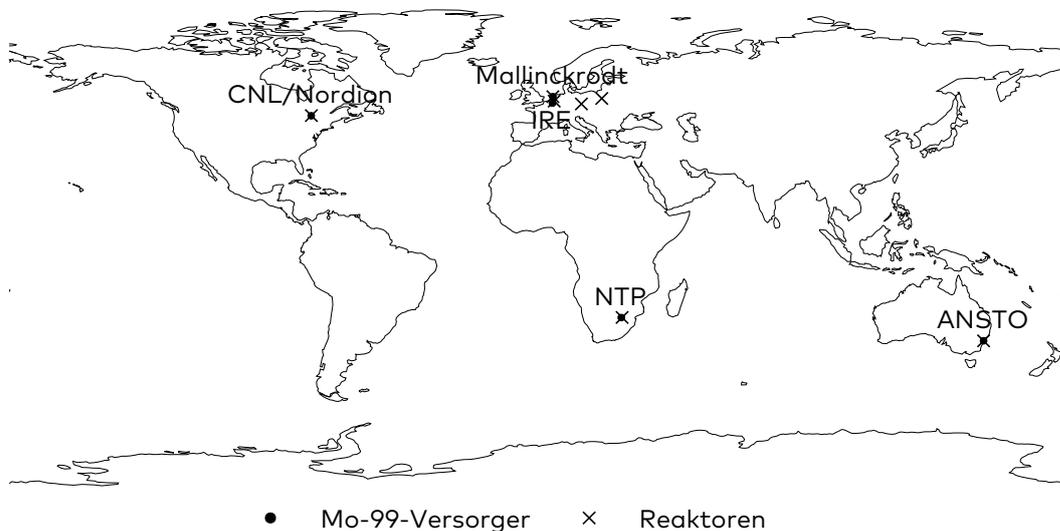


Abbildung 4 – Standorte der ⁹⁹Mo-Versorger, die 95% des weltweiten Bedarfs decken, und der verwendeten Reaktoren. [Nat16]

Um die gewonnenen Erkenntnisse über die Emissionen radioaktiver Edelgase zu verwerten, müssen diese in Relation zu von Messstationen aufgenommenen Signalen gesetzt werden können. Hierzu ist es notwendig, den Transport in der Atmosphäre modellieren zu können, um den Weg, den detektierte Edelgase genommen haben, anzugeben und mit dieser atmosphärischen Transportrückrechnung mögliche Quellregionen zu benennen.

Die umfassende Lösung wäre hierbei, für alle bekannten Quellen den Ausstoß zu messen und mittels atmosphärischer Transportrechnung den modellierten Hintergrund an den Messstationen anzugeben und von jeder gemessenen Aktivitätskonzentration zu subtrahieren. Da die vorhandenen Unsicherheiten jedoch zu groß sind, wird ein anderer Weg gewählt: Wird ein Xenon-Peak gemessen, kann überprüft werden, ob

der simulierte Hintergrund ebenfalls einen solchen aufweist und so den Anstieg der Aktivitätskonzentration zu erklären vermag. Dabei sind nicht nur die Ausstöße der MIF zu berücksichtigen, sondern auch die anderer nuklearer Anlagen, da die abgegebene Aktivität eines Kernwaffentests, so wie bei dem nordkoreanischen Test 2013, sehr gering ausfallen kann und auch von geringen Signalen überlagert werden kann. An geeigneten Modellen für die atmosphärische Transportrechnung wird weiter geforscht und evaluiert, wobei sie bei dieser Überlegung sicherlich der Faktor ist, der sich am wenigsten genau bestimmen lässt. Die grossen Unsicherheiten ($\pm 40\%$), die in der Modellierung entstehen, sind nicht nur den Transportrechnungen zu schulden. Während die Aktivitätskonzentration im Stack-Monitoring zwar recht genau bestimmt werden kann, sind die Informationen über die Rate der abgegebenen Abluft teils mit deutlich mehr Unsicherheit behaftet. [EBA⁺16]

2.3 Medizinische Radionuklide

Technetium-99m (^{99m}Tc) ist das dominierende Zerfallsprodukt von Molybdän-99 (^{99}Mo). Das Zerfallsschema ist in Abbildung 5 dargestellt.

^{99m}Tc wird für die medizinische Bildgebung in der Beobachtung physiologischer und metabolischer Prozesse in Gewebe und Organen verwendet. Mit der *Single Photon Emission Computed Tomography* (SPECT) werden Bilder von Gewebe und Organen erzeugt. Indem einzelne Gammastrahlen aufgenommen werden, um die Konzentrationsverteilung eines radioaktiven Tracer-Materials, das sich an Gewebe von Interesse konzentriert, zu messen, entsteht hierbei ein Bild. Das am häufigsten hierfür eingesetzte Radionuklid ist ^{99m}Tc , welches in weltweit 80% aller nuklearmedizinischen Maßnahmen eingesetzt wird. Technetium-99m ist ein besonders geeignetes Material, da es eine Halbwertszeit von etwa 6 h besitzt, die ausreichend lang ist, um in der Nuklearmedizin praktikabel zu sein und gleichzeitig geringe Dosen in den Patienten deponiert und keine α - oder β -Strahlung abgibt. Darüber hinaus gibt es γ -Strahlung mit einer Photonenenergie von 140 keV ab, die von vielen Bildsensoren detektiert werden kann.

^{99}Mo und ^{99m}Tc können aufgrund ihrer kurzen Halbwertszeiten nicht gelagert werden und müssen deshalb regelmäßig produziert und rasch verteilt werden. In der

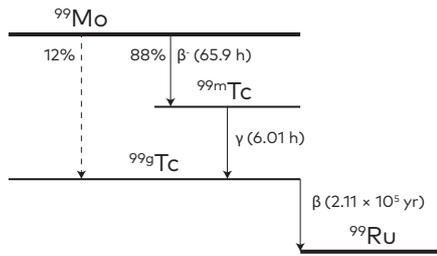


Abbildung 5 – Die ^{99}Mo Zerfallskette. Etwa 12% des ^{99}Mo zerfallen zu ^{99g}Tc im Grundzustand (gestrichelter Pfeil), während etwa 88% in den metastabilen Zustand ^{99m}Tc zerfallen, der unter Abgabe von Gammastrahlung in den Grundzustand übergeht. ^{99g}Tc zerfällt in das stabile Rutherfordium-99 (^{99}Ru). [Nat16]

Vergangenheit haben deshalb Ausfälle einzelner Produktionsbetriebe Engpässe in der Versorgung mit ^{99}Mo bedeutet. [Nat16]

^{131}I und ^{133}Xe sind die zwei anderen wichtigen Isotope in der Nuklearmedizin. ^{133}Xe wird dabei als Edelgas eingesetzt, um die Verteilung und Austauschrate von Luft in der Lunge zu messen, während ^{131}I zur Therapie und Diagnostik verschiedener Krankheiten eingesetzt wird.

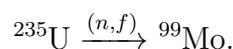
2.3.1 Herstellung von ^{99}Mo

Da das in der nuklearen Medizin verwendete ^{99m}Tc als Produkt des radioaktiven Zerfalls von ^{99}Mo gewonnen wird, ist dessen Herstellung vorrangig relevant für die weitere Betrachtung.

Zur Herstellung von ^{99}Mo sind verschiedene Verfahren geeignet, die auf Reaktoren oder Beschleunigern basieren. Das am weitesten verbreitete Verfahren ist die Produktion mit Uran-Targets in Forschungsreaktoren.

Reaktorbasierte Herstellung Durch den Neutronenbeschuss von Uran oder Molybdän wird seit Jahrzehnten ^{99}Mo erzeugt. Dabei gibt es zwei mögliche Reaktionen:

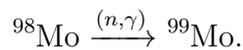
1. Kernspaltung von ^{235}U über



Bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von ^{235}U entstehen verschiedene Spaltprodukte. Etwa 6% entfallen dabei auf ^{99}Mo ; weitere

relevante Spaltprodukte sind ^{131}I und ^{133}Xe . Dieser Prozess gilt als besonders effizient und dies insbesondere, wenn hochangereichertes Uran als Target verwendet wird. Die Massenhäufigkeitsverteilung der Spaltprodukte von ^{235}U ist in Abbildung 6 dargestellt.

2. Die Aktivierung von ^{98}Mo über



Hierbei fängt ein ^{98}Mo -Atom ein Neutron ein und geht unter Abgabe von Gammastrahlung zu ^{99}Mo über. Diese Methode ist jedoch wesentlich ineffizienter, da der Wirkungsquerschnitt der Aktivierung von ^{98}Mo durch thermische Neutronen um drei Größenordnungen kleiner als der der induzierten Spaltung von ^{235}U ist.

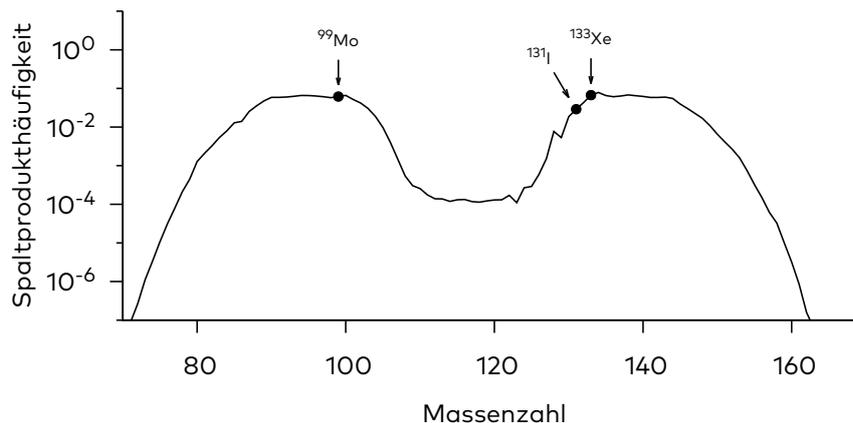


Abbildung 6 – Massenhäufigkeitsverteilung der Spaltprodukte von ^{235}U . [jen11]

Beschleunigerbasierte Herstellung ^{99}Mo und ^{99m}Tc können durch die Bestrahlung von Uran oder Molybdän mit Neutronen, Protonen oder Photonen aus Beschleunigern hergestellt werden. Der Bau und Betrieb von Beschleunigern für die ^{99}Mo -Produktion ist zwar deutlich preiswerter als der eines Reaktors und erzeugt weit weniger radioaktiven Abfall, jedoch liegen die Produktionskapazitäten weit unter denen eines Reaktors. Verschiedene mögliche Reaktionen werden hierbei erforscht, von denen aber heute keine in der Produktion von Isotopen für medizinische Zwecke herangezogen wird [Nat16].

Wenn in einem Target der Anteil des ^{235}U am Urangehalt über 20% liegt, spricht man von hochangereichertem Uran (*'highly enriched uranium'* - HEU). Liegt er darunter, bezeichnet man dies als schwach angereichertes Uran (*'lightly enriched uranium'* - LEU).

Da hochangereichertes Uran, welches sich auch noch in den Abfallprodukten findet, zur Herstellung von Kernwaffen eingesetzt werden kann, wird das Material streng kontrolliert, um der Proliferation vorzubeugen. Es gibt weltweite Bestrebungen, auf die Verwendung von HEU-Targets bei der Herstellung von ^{99}Mo zu verzichten und stattdessen LEU-Targets zu verwenden. Durch den deutlich geringeren ^{235}U -Anteil in LEU-Targets ist die Produktion weitaus ineffizienter und liefert nur etwa ein Fünftel des ^{99}Mo -Ertrags. Etwa 25% der Weltproduktion werden bereits mit LEU-Targets im OPAL-Reaktor (Australien) und SAFARI-1-Reaktor (Südafrika) hergestellt

Beim Institut für Radionuklide (IRE) in Belgien werden Isotope für die Diagnose und Therapie in der Nuklearmedizin hergestellt. Die hergestellten Isotope sind ^{99}Mo , ^{131}I und ^{133}Xe . Die Isotope werden gewonnen, indem sie in einem chemischen Prozess aus hochangereichterten Urantargets (HEU), welche wie oben beschrieben mit Neutronen beschossen wurden, herausgelöst werden. Nachdem die gewünschten Isotope herausgelöst sind, bleiben die Reste als Abfallprodukte zurück, welche in flüssigen, festen und gasförmigen Bestandteilen vorliegen. Während die Entsorgung und Einlagerung der flüssigen und festen Bestandteile sich vergleichsweise einfach gestaltet, sind die gasförmigen Abfallprodukte nicht einfach in der Handhabung und eine Abgabe an die Umwelt nicht komplett vermeidbar [Dec13].

2.4 Gammaspektrometrie

Radionuklide sind Stoffe, deren Atomkerne instabil sind und spontan unter Abgabe von ionisierender Strahlung ihren Zustand oder ihre Zusammensetzung ändern. Dabei gibt es verschiedene Arten des Zerfalls: Beim α -Zerfall wird ein α -Teilchen aus zwei Protonen und zwei Neutronen emittiert, beim β -Zerfall ein Elektron oder ein Positron sowie ein (Anti-)Neutrino, wobei die Massenzahl unverändert bleibt.

Die Emission von Gammastrahlung ist kein Zerfallsprozess im engeren Sinne, sondern die Abgabe eines hochenergetischen Photons beim Übergang eines angeregten

Atomkerns in einen Zustand niedrigerer Energie. Dabei ist Gammastrahlung oft ein Folgeprodukt der Alpha- oder Betastrahlung [Gil11].

Ziel der Gammaskpektrometrie ist es, Gammastrahlung energieaufgelöst zu quantifizieren. Dies geschieht über die Interaktion von Gammaquanten in Detektormaterialien. Da Radionuklide jeweils Gammastrahlung mit einer charakteristischen Energieverteilung emittieren, können die so gewonnenen Spektren zur Identifizierung herangezogen werden.

2.4.1 Wechselwirkungen von Gammastrahlung mit Materie

Elektromagnetische Strahlung interagiert mit Feststoffen über vier Wechselwirkungen: den Photoeffekt, die inkohärente (Compton-)Streuung, die kohärente Streuung und die Paarbildung. Abhängig von der Energie der Gammateilchen unterscheiden sich die Wirkungsquerschnitte dieser Effekte um viele Größenordnungen.

Für die später betrachteten Energiebereiche sind im Wesentlichen der Photoeffekt und die Comptonstreuung relevant, die hauptsächlich zu dem Abschwächungskoeffizienten von Cadmiumzinktellurid beitragen.

Photoelektrische Absorption ist ein Effekt, bei dem ein Photon vernichtet wird, indem es seine gesamte Energie an *ein* Elektron abgibt und dieses aus seiner Bindung löst (Abbildung 7a).

Der **Comptoneffekt** ist eine Wechselwirkung, bei der das Photon nur einen Teil seiner Energie über einen Streuprozess auf ein Teilchen überträgt. Der Vorgang ähnelt dabei in seiner Beschreibung einem inelastischen Stoß (Abbildung 7b). Ein einzelnes Photon kann dabei mehrfach über die Comptonstreuung interagieren und deponiert dabei jedes Mal Energie.

Wird ein Photon **kohärent gestreut**, regt es einen Atomkern an, welcher daraufhin unter Abgabe eines Photons mit derselben Energie in seinen Grundzustand übergeht.

Bei der **Paarbildung** wird praktisch die gesamte Energie des einfallenden Photons in ein Teilchen-Antiteilchen-Paar von Elektron und Positron umgewandelt. Da hierfür mindestens die Ruheenergie der beiden Teilchen benötigt wird, ist dieser Effekt erst für Gammastrahlung oberhalb einer Energie von etwa 1022 keV möglich. Da die Radioxenonisotope Gammastrahlung mit einer Energie von weniger als 800 keV abgeben, lässt sich dieser Effekt im Folgenden vernachlässigen.

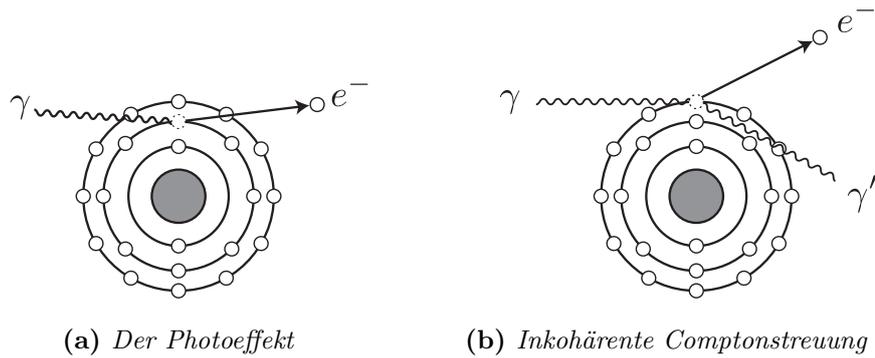


Abbildung 7 – Diagramme des Photoeffekts und der Comptonstreuung (nach [Buz08])

2.4.2 Wirkungsquerschnitt

Der Wahrscheinlichkeit der Interaktion der einfallenden Strahlung mit einem bestrahlten Stoff wird eine Größe zugeordnet, die als Wirkungsquerschnitt bezeichnet wird.

Da die Detektion über die Interaktion von Gammateilchen mit dem Detektormaterial geschieht, sind die Wirkungsquerschnitte der verschiedenen Wechselwirkungen ausschlaggebend für die Detektoreigenschaften. Die Anteile und der gesamte Massenschwächungskoeffizient für $\text{Cd}_{0,9}\text{Zn}_{0,1}\text{Te}$ sind in Abbildung 8 aufgetragen. Für die für diese Arbeit relevanten Energien von 80 keV bis 600 keV dominieren zunächst der Photoeffekt und später die Comptonstreuung die Größe des Wirkungsquerschnitts, während die kohärente Streuung eine untergeordnete Rolle spielt und die Paarbildung nicht relevant ist.

Der photoelektrische Massenschwächungskoeffizient τ ist in erster Näherung mit

$$\tau \propto \frac{Z^n}{E^m} \quad \text{mit } n, m = 3 \dots 5 \quad (1)$$

mit der Kernladungszahl Z und der Photonenenergie E beschrieben, also stark abhängig von der Kernladungszahl und der Energie, was die Effizienz im höherenergetischen Bereich beschränkt und die Kernladungszahl eines Detektormaterials zu einem wichtigen Indikator für die Effizienz macht [Gil11].

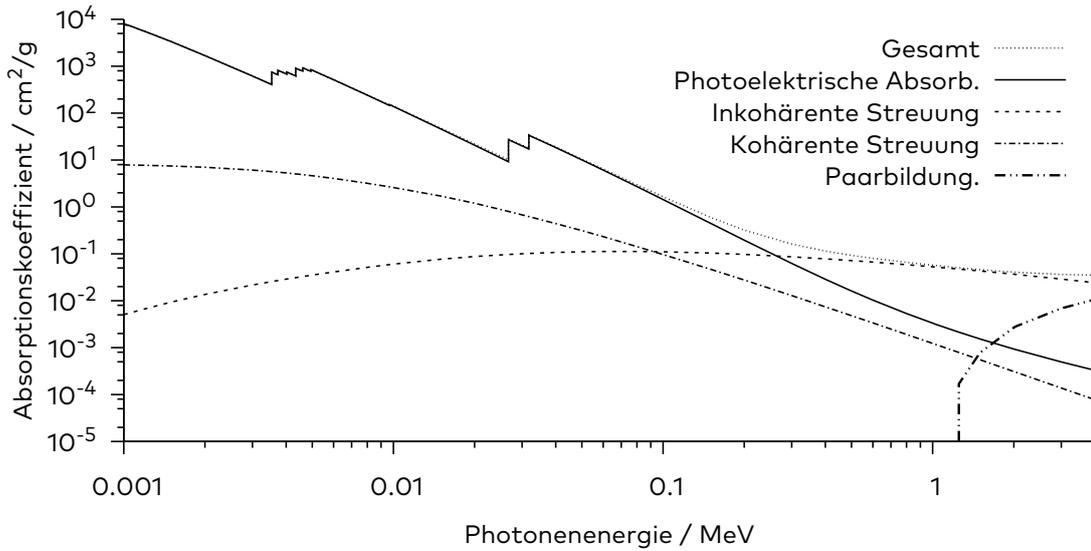


Abbildung 8 – Der Absorptionskoeffizient von $Cd_{0.9}Zn_{0.1}Te$ [BHS⁺ 10]

2.4.3 Gammaspektren

Das Spektrum einer ^{137}Cs -Quelle (Abb. 9) zeigt anschaulich die Detektoransprache auf eine Quelle, die monoenergetische Gammastrahlung emittiert. Zu sehen sind ein Peak (‘Photopeak’) bei $E_{kin} = h \cdot \nu_{\gamma} = 662 \text{ keV}$ und ein breites Aktivitätsspektrum (‘Compton-Kontinuum’) im unteren Energiebereich. Die scharfe obere Kante dieses Kontinuums ist die Compton-Kante. Sie befindet sich bei

$$E_{\text{Compton}} = (E - E')_{\text{max}} = E \left(1 - \frac{1}{1 + \frac{2E}{m_e c^2}} \right) \quad (2)$$

$$= 477.65 \text{ keV für den } 662 \text{ keV-Peak von } ^{137}\text{Cs},$$

mit E und E' , der Energie des Photons vor und nach der Comptonstreuung, der Masse des Elektrons m_e und der Lichtgeschwindigkeit c . Diese Kante ist im Spektrum ebenfalls deutlich zu erkennen. Das Compton-Kontinuum wird verursacht durch Streuung und Reflektion im Detektor, da die Comptonstreuung nicht nur ein Elektron mit $E_{kin} < h \cdot \nu_{\gamma}$ erzeugt, sondern auch ein gestreutes Gammaquant mit der Energie $h \cdot \nu' < h \cdot \nu_{\gamma}$, welches nur einen Teil seiner Energie deponiert hat. Durch einen Compton-Streuprozess mit einem (besonders wahrscheinlichen) Streuwinkel von etwa 180° geben Photonen die Energie E_{Compton} ab und besitzen danach noch eine Energie von $E_{kin} - E_{\text{Compton}} = 185 \text{ keV}$ für den 662 keV -Peak von ^{137}Cs . Hierdurch entsteht ein weiterer Peak (‘Rückstreupeak’) bei dieser Energie.

Da beim Photoeffekt die gesamte Energie des Photons deponiert wird, ist die Lage des Photopeaks indikativ für die Energie des Photons und er wird deshalb dazu verwendet, die Strahlungsmenge einer bestimmten Energie zu quantifizieren.

Die Peaks im Spektrum sind aufgrund verschiedener Effekte verbreitert. Dies begrenzt die Energieauflösung des Detektors. Zur Verbreiterung der Peaks führen z. B. die Fluktuationen in der Detektor- und Zähllektronik. Auch verursacht eine unvollständige Sammlung der Ladungsträger eine Verbreiterung des Peaks zu niedrigeren Energien (*Tailing*).

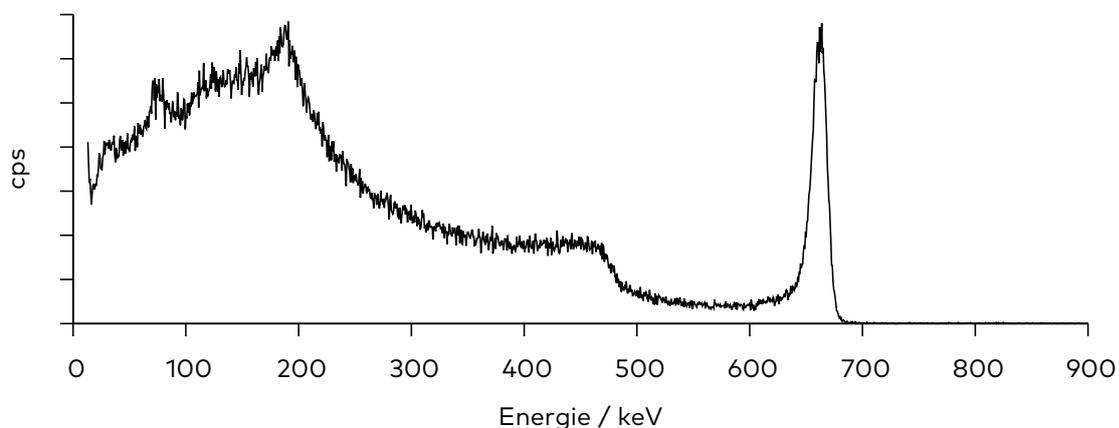


Abbildung 9 – Das mit einem CZT-Detektor aufgenommene Gamma-Spektrum einer ^{137}Cs -Quelle; Messdauer: 2587 s

2.5 Halbleiterdetektoren

Als Halbleiter bezeichnet man Feststoffe, deren Leitfähigkeit zwischen denen von Leitern und Nichtleitern liegt. Sie ist für tiefe Temperaturen sehr gering, nimmt aber bei höheren Temperaturen zu. Halbleiter können aber auch durch andere äußere Einwirkungen leitend werden. So können durch ionisierende Strahlung Ladungsträger im Halbleitermaterial eines Halbleiterdetektors erzeugt werden, die zu anliegenden Elektroden wandern und damit einen elektrischen Strom darstellen.

Ein Halbleiterkristall kann durch Einbringen von Störstellen dotiert werden. Dabei wird ein Element in die Kristallstruktur eingebracht, welches entweder mehr (p-Dotierung) oder weniger Bindungselektronen (n-Dotierung) besitzt und so ein zusätzliches Elektron einbringt oder eine Leerstelle (Loch) erzeugt. Ein Halbleiterdetektor erfordert das Zusammenbringen unterschiedlich dotierter Halbleiter. Das

Einbringen von Dotierungsatomen bedeutet, dass in der Bandstruktur des Halbleiters neue Zustände direkt über dem Valenzband bzw. direkt unter dem Leitungsband hinzukommen, was die Leitfähigkeit des dotierten Materials erhöht.

In Abbildung 10 ist dargestellt, wie sich die Ladungsträgerverteilung im Halbleiterkristall am n-p-Übergang verändert. Die zusätzlich vorhandenen Ladungsträger wandern auf die entgegengesetzt dotierte Seite, wobei Elektronen und Löcher rekombinieren und sich damit auslöschen (a). Dies erzeugt eine Verarmungszone (b) ohne freie Ladungsträger, die gleichzeitig die elektrische Neutralität des Materials aufhebt und eine Raumladung (d) und damit ein Kontaktpotential V_0 herstellt (c). Ein angelegtes elektrisches Feld V_b kann die Ausdehnung der Verarmungszone beeinflussen und entstehende freie Ladungsträger regelrecht absaugen. Die Breite der Verarmungszone ergibt sich hierbei als

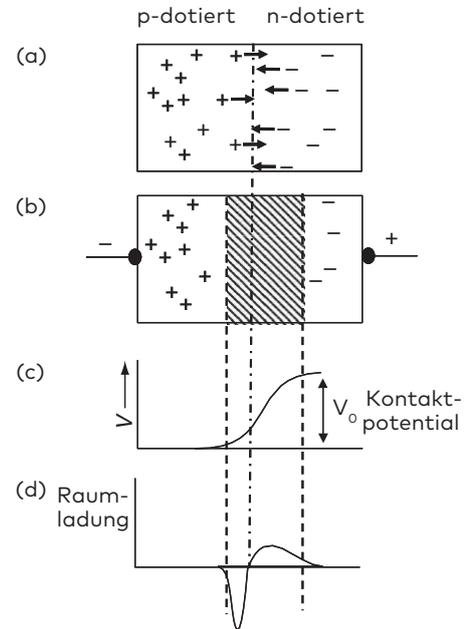


Abbildung 10 – Schema eines p-n-Übergangs im Halbleiter (nach [Gil11])

$$d \approx [2\kappa\mu\rho(V_0 + V_b)]^{1/2} \quad (3)$$

mit der Dielektrizitätskonstante κ , dem spezifischen Widerstand ρ und der Beweglichkeit der Majoritätsladungsträger μ . In der Gammaspektrometrie wird die Spannung so gewählt, dass die Verarmungszone fast das gesamte Detektorvolumen abdeckt. Der spezifische Widerstand ρ ist dabei mit

$$\rho = 1/(eN\mu) \quad e: \text{Elementarladung} \quad (4)$$

abhängig von der Dichte der Dotierungsatome N . Um eine große Verarmungszone mit einer geringen Spannung erzeugen zu können, ist also eine geringe Dotierung notwendig. Da die Sammlung der Elektron-Loch-Paare im Detektor relativ schnell vonstatten gehen muss, ist eine hohe Ladungsträgermobilität nötig. In einem späteren Abschnitt werden die verschiedenen üblichen Detektortypen auf diese Eigenschaften

hin verglichen.

Die Anzahl der erzeugten Ladungsträger hängt von der Energie des einfallenden Teilchens ab. So lässt sich über eine elektronische Weiterverarbeitung des Strompulses eine Aussage über die Energie treffen. In Abbildung 11 sind die Verarbeitungsschritte des Signals dargestellt, die schließlich ein Spektrum hervorbringen.

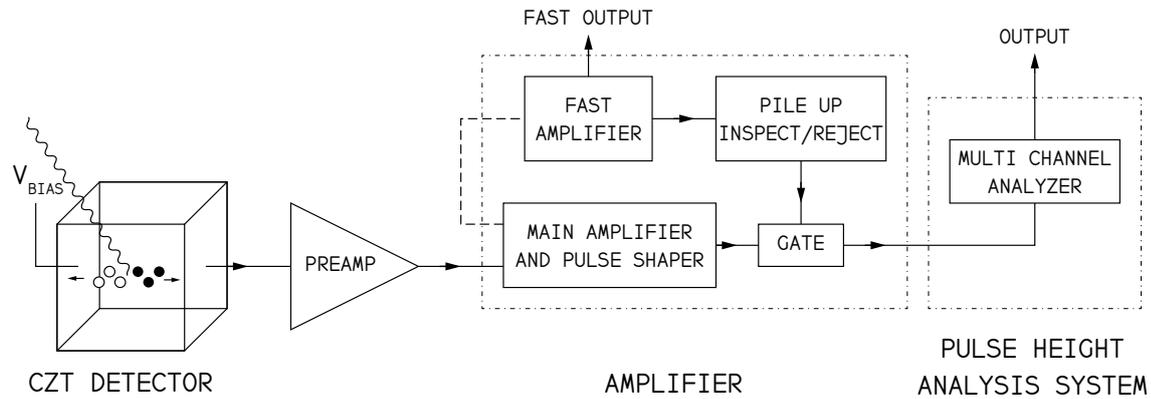


Abbildung 11 – Grundlegendes Funktionsprinzip der Elektronik eines Spektrometrie-Systems mit CZT-Detektor (nach [Sze04, FSG82])

An das Detektormaterial wird ein elektrisches Feld angelegt und ihm damit die freien Ladungsträger entzogen. Hochenergetische Photonen interagieren über den Photoeffekt oder die Compton-Streuung mit dem Detektormaterial und produzieren dort Elektron-Loch-Paare. Dabei ist entscheidend, dass die Anzahl der produzierten Elektron-Loch-Paare in einem direkten Verhältnis zu der Energie des einfallenden Photons steht. Die Elektronen und Löcher bewegen sich zu den gegenüberliegenden Elektroden und verursachen einen geringen Stromfluss. Das so entstandene Signal wird nun elektronisch weiterverarbeitet. Dies geschieht in der Regel, indem die Ladungsbewegung in einen Spannungspick übersetzt wird, dessen Form dann elektronisch ausgewertet und durch einen Multi-Channel-Analyzer zählbar aufbereitet wird.

Dabei ergeben sich noch einige Schwierigkeiten, die den Prozess verkomplizieren: Der Analog-Digital-Konverter kann nur ein Ereignis gleichzeitig betrachten und muss deshalb während der Auswertung eines Pulses gesperrt werden. Für diese Zeit findet keine Zählung statt und sie muss in der Auswertung von der realen Messzeit abgezogen werden, um die 'live time' zu erhalten, in der das System Ereignisse zu der Zählstatistik hinzufügt. Die Zeit, in der die Zähl Elektronik sperrt, wird Totzeit genannt.

Falls kurz nacheinander einfallende Teilchen einen Puls erzeugen, entsteht ein sogenannter 'pile-up' in der Ausgabe des Verstärkers. Nahezu gleichzeitige Ereignisse können sich dabei vollständig oder anteilig aufsummieren und führen zu einer 'falsch' bestimmten Energie - einem Summationspeak. Falls die Ereignisse jedoch weit genug auseinander liegen um den Puls deutlich zeitlich zu verbreitern, ist es möglich das Zählereignis zurückzuweisen (*'pile-up rejection'*).

2.6 (Cd, Zn)Te-Detektoren

Cadmiumzinktellurid (CZT) ist eine Legierung von Cadmiumtellurid und Zinktellurid. Es ist als Kristall für Zimmertemperaturdetektoren mit guter Effizienz und Energieauflösung für vielfältige Anwendungen in der Gamma- und Röntgenspektrometrie einsetzbar. Cadmiumzinktellurid wird in Detektoranwendungen in der Zusammensetzung $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$ mit einem Zinkanteil von $x = 0.1 \dots 0.2$ eingesetzt. Im Folgenden sollen die Eigenschaften von CZT-Detektoren betrachtet sowie ein Vergleich mit anderen üblichen Detektoren angestellt werden.

2.6.1 Entwicklung und Eigenschaften

CZT als Detektormaterial wird seit den 1970er-Jahren erforscht. Durch die Entwicklung von Gerätegeometrien und verbesserte Materialeigenschaften sind CZT-Detektoren mittlerweile in der Lage, über einen großen Energiebereich hochaufgelöste Spektren zu liefern [STY⁺01].

Gilmore [Gil11] nennt sieben Kriterien, die einen idealen Detektor für die Gamma-spektrometrie kennzeichnen:

- Ein Signal, das sich proportional zur Gammaenergie verhält
- Eine gute Effizienz
- Eine einfache Auswertung des Detektorsignals
- Eine gute Energieauflösung
- Eine gute Stabilität in Bezug auf Zeit, Temperatur und Betriebsparameter
- Ein angemessener Preis
- Eine angemessene Größe

Im weiteren Verlauf werden CZT-Detektoren in Bezug auf diese Kriterien mit anderen üblichen Detektoren verglichen.

Die Auswertung des Detektorsignals wird später für ein Modell eines CZT-Detektors ('MicroSPEC') erklärt. Da der Detektor über eine integrierte Zählelektronik und digitale Schnittstelle verfügt, ist sie bei diesem Modell allein mit einem Computer und auf einfache Weise möglich.

Der MicroSPEC zeichnet sich durch ein im Vergleich extrem kleines Gehäuse mit den Abmessungen $25\text{ mm} \times 25\text{ mm} \times 70\text{ mm}$ und einen geringen Preis, der über eine Größenordnung unter dem handelsüblicher Germanium-Detektoren liegt, aus.

2.6.2 Vergleich mit anderen verbreiteten Detektoren

Für die Gammaskopimetrie werden im wesentlichen zwei Detektortypen eingesetzt: Halbleiterdetektoren und Szintillationszähler.

In Tabelle 3 sind verschiedene Eigenschaften von für die Gammaskopimetrie geeigneten Detektormaterialien aufgeführt. Während Silizium für viele andere Einsatzzwecke als hochreiner Kristall benötigt wird und deshalb preiswert und in großen Mengen verfügbar ist, hat es gleichzeitig eine geringe Kernladungszahl und ist deshalb eher für Strahlung im Röntgenbereich geeignet (siehe Gl. (1)). Germanium hingegen ist das am weitesten verbreitete Detektormaterial, muss jedoch für den Betrieb stark abgekühlt werden.

CZT kann bei Zimmertemperatur betrieben werden und ist für einen Energiebereich von wenigen keV bis zu über einem MeV geeignet. (Tabelle 4)

Die deutlichen Unterschiede verschiedener Detektormaterialien in der Halbwertsbreite der Photopeaks sowie den weiteren Wechselwirkungen lassen sich anhand verschiedener eigener Messungen von ^{137}Cs -Quellen in Abbildung 12 ablesen. Die Zählraten der Spektren sind skaliert, um eine Vergleichbarkeit zu schaffen, da sich Messzeit, Probenstärke und Probenabstand zwischen den Messungen unterscheiden. Deutlich zu erkennen ist, dass die Halbwertsbreite des CZT-Detektors zwischen der des Natriumiodid- und der des Reinstgermaniumdetektors liegt.

Material	Kernladungszahl Z	Betriebs-temperatur	Bandlücke / eV	ϵ / eV	Dichte / gcm ⁻³	Ladungsträgermobilität	
						Elektronen	Löcher
Si	14	Raumtemp.	1.106	3.62	2.33	1350	480
Ge	32	77 K	0.67	2.96	5.32	3.60×10^4	4.20×10^4
CdTe	48, 52	Raumtemp.	1.47	4.43	6.06	1000	80
CdZnTe	48, 30, 52	Raumtemp.	1.57	4.64	5.78	1000	50-80
HgI ₂	80, 53	Raumtemp.	2.13	4.22	6.3	100	4
GaAs	31, 33	Raumtemp.	1.45	4.51	5.35	8000	400
TlBr	81, 35	-20°C	2.68	?	7.56	—	—
PbI ₂	82, 53	—	2.6	7.68	6.16	8	2
GaSe	31, 34	—	2.03	6.3	4.55	—	—
AlSb	13, 51	—	1.62	5.05	4.26	—	—
CdSe	48, 34	—	1.75	?	5.74	—	—

Tabelle 3 – Einige Parameter von für die Gammaspektrometrie geeigneten Detektormaterialien. ϵ : Die durchschnittlich zur Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares benötigte Energie [Gil11].

Material	Detektorgröße	Energieauflösung bei:			Energiebereich
		5.9 keV	122 keV	661.66 keV	
Ge	50 mm × 50 mm × 5 mm planar	0.145	0.5	—	2-100
CdTe	25 mm × 25 mm × 2 mm Raumtemp.	—	10-12	—	6-350
CdTe	10 mm × 10 mm × 10 mm (-30°C)	—	1.93	2.89	10-1000
CdZnTe	10 mm × 10 mm × 10 mm (-30°C)	—	9	23	30-1400
CdZnTe	15 mm × 15 mm × 10 mm	—	8.5	12	20-1400
HgI ₂	100 mm × 100 mm × 1 mm	1.5	—	—	2-60
TlBr	2 mm × 2 mm × 2 mm	—	6	—	10-1000
NaI(Tl)	∅51 mm × 2.5 mm	2.9	—	—	2-70
NaI(Tl)	∅51 mm × 25 mm	—	31	—	20-200

Tabelle 4 – Auflösung und Energiebereich verschiedener Niedrigenergie-Gammadetektoren [Gil11]

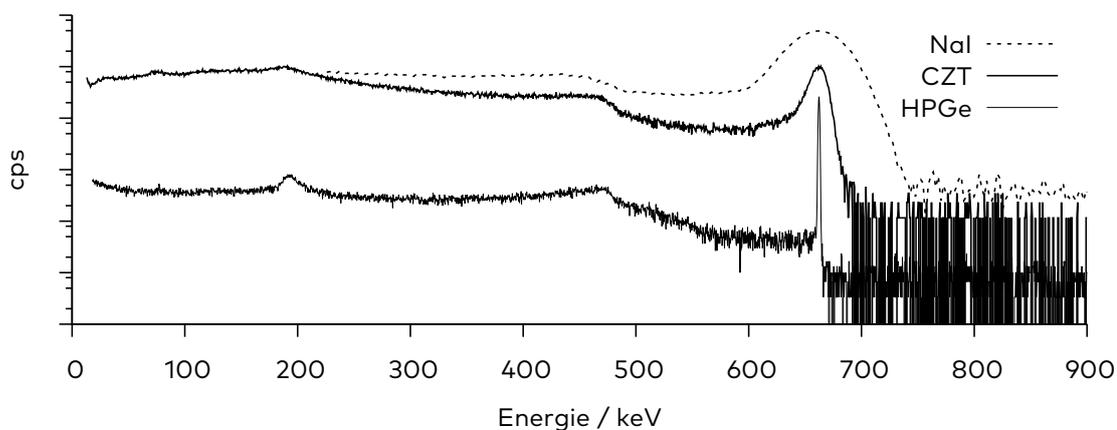


Abbildung 12 – Das Gammaspektrum von ¹³⁷Cs-Quellen, aufgenommen mit einem CZT-, NaI- und HPGe-Detektor in unterschiedlichen Messreihen mit unterschiedlichen Quellen

2.7 Peak-Suche nach Mariscotti

Die Analyse von Gammapektren durch einen Computer ist keine triviale Aufgabe. Zwar kann im Idealfall an jeden Peak eine Gauß-Funktion angefitet werden, jedoch unterliegen real aufgenommene Spektren Unsicherheiten in der Zählrate, Hintergrundaktivitäten, Instabilitäten der Elektronik sowie Überlagerungen von Peaks. Dies schränkt die Genauigkeit der Auswertung ein und kann sogar die Erkennung von Peaks als solche unmöglich machen.

M. A. Mariscotti machte 1966 einen Vorschlag für eine computergestützte Auswertung von Gamma-Spektren, die Peakpositionen und -flächen automatisiert bestimmen soll [Mar67].

Da es sich bei den Messwerten um diskrete Werte handelt, bei denen jedem Kanal ein Wert zugeordnet ist, kann für die Analyse nicht die Ableitung herangezogen werden, sondern es werden Differenzen zwischen den Messwerten gebildet, die den Ableitungen einer kontinuierlichen Funktion entsprechen.

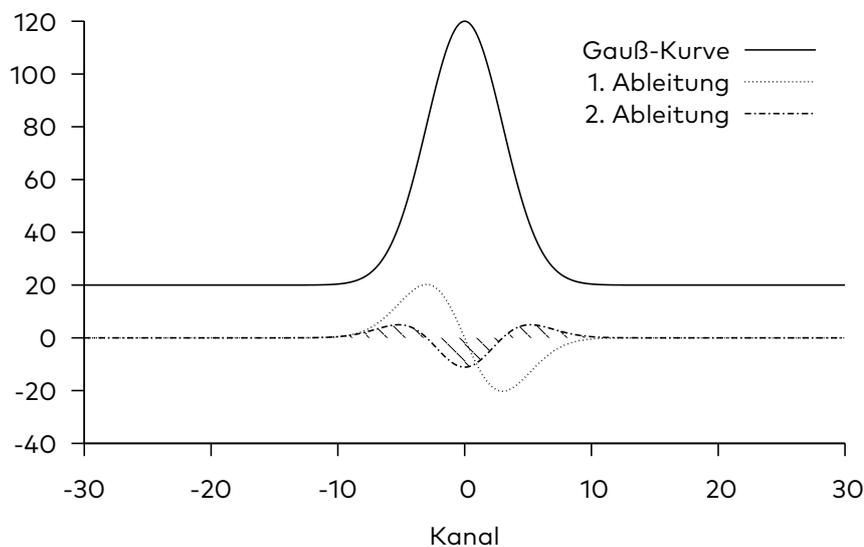


Abbildung 13 – *Peaksuche nach Mariscotti: Gauß-Funktion mit der ersten und zweiten Ableitung.*

Für die automatisierte Peaksuche wird dafür das Spektrum geglättet und die Differenz der partiellen Steigungen (zweite Differenz) betrachtet, die der zweiten Ableitung entspricht. Dabei ergibt sich für eine Gauß-Funktion ein charakteristisches Muster von einem negativen Bereich, umgeben von zwei Positiven (Abbildung 13). Da der geglättete Untergrund in erster Näherung linear ist, lässt sich der Betrag

der zweiten Differenz, die dann unabhängig vom Untergrund ist, zur Identifikation heranziehen. Der Algorithmus ist dabei insbesondere in der Lage, zwei sich überlappende, nahe beieinander liegende Peaks anzunähern.

In Abbildung 14 sind die Peaks eines aufgenommenen Spektrums zusammen mit den geglätteten Werten und der ersten und zweiten Differenz aufgetragen. Gut zu erkennen ist das beschriebene Muster in den zweiten Differenzen für jeden Peak. Gleichzeitig ist zu beobachten, dass bei kleinen Peakflächen durch die statistische Natur der Messung höhere Schwankungen der Zählrate auftreten, durch die die Auswertung erschwert wird.

Wie zuvor beschrieben, handelt es sich bei den Peaks in den real aufgenommenen Spektren nicht um gauß-förmige Peaks, da das *Tailing* zu einer Verbreiterung hin zu niedrigeren Energien führt. Für die Analyse wurden jedoch mithilfe der 'peak'-Software Gauß-Funktionen gefittet, die die Peaks in erster Näherung gut beschreiben.

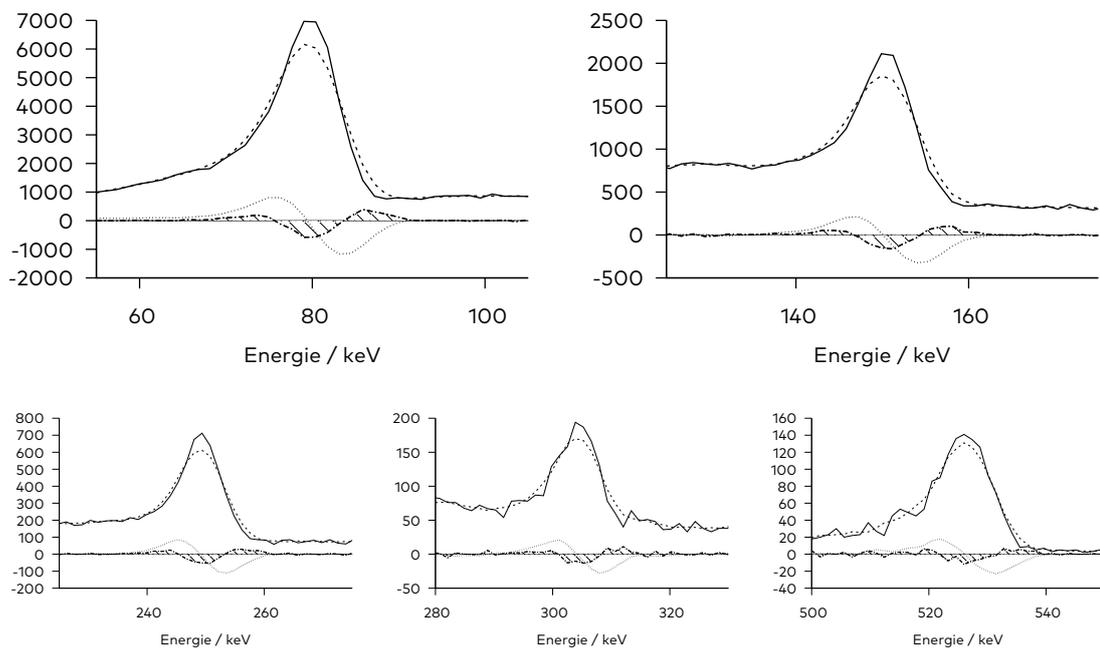


Abbildung 14 – Peaks eines Beispielspektrums aus der Messkampagne (durchgezogen), geglättetes Spektrum (gestrichelt), erste (gepunktet) und zweite Differenz (schraffiert)

3 Experimenteller Aufbau und Messmethoden

3.1 CZT-Detektor “MicroSpec”

Ein “MicroSpec” CdZnTe-Detektor der Firma Ritec wurde vom Bundesamt für Strahlenschutz für die Messungen zur Verfügung gestellt. Der Detektor enthält einen 1.5 cm^3 großen Kristall. Das Modell wird vom Bundesamt für Strahlenschutz verwendet und auf seine Tauglichkeit bei der atmosphärischen Radioisotopenmessung hin untersucht.

Laut Hersteller misst der MicroSpec-Detektor mit einer maximalen Zählrate von 10^5 *counts per second*, einer integralen Nichtlinearität von $<0.3\%$, und einem Temperaturdrift von $<0.02\%$ pro $^\circ\text{C}$. Der Detektor besitzt einen eingebauten Temperatursensor, dessen Messwerte ebenfalls ausgelesen werden. Die angegebene Energieauflösung (Halbwertsbreite) beträgt bei 662 keV weniger als 3.5% .

Mit einer Größe von $70\text{ mm} \times 25\text{ mm} \times 25\text{ mm}$ ist das System äußerst kompakt. Der Detektor verfügt dabei über eine komplette elektronische Signalkette im Gehäuse und wird über ein USB-Kabel angeschlossen, welches den Detektor mit Strom versorgt und die aufgenommenen Daten an einen Computer übermittelt.

3.1.1 Charakterisierung des MicroSpec-Detektors

Als erster Test des Detektors wurde eine Uran-Erz-Probe gemessen (Abb. 15). Um die Spektren auswerten zu können, ist zunächst eine Energiekalibrierung des Detektors notwendig, um den Kanalnummern Energien zuzuordnen zu können und aus den Zählraten Aussagen über Quellstärken zu treffen.

Energieauflösung des MicroSpec-Detektors

Anhand einer Messung mit einer ^{137}Cs -Quelle (Abb. 12) konnte die vom Hersteller angegebene Energieauflösung bestätigt werden. Die Halbwertsbreite des Detektors beträgt bei 662 keV nur etwa 2.2% (Abb. 16).

Energie-Kalibrierung des MicroSpec-Detektors

Die Kalibrierung der Energie-Kanal-Zuordnung und des Ansprechvermögens des

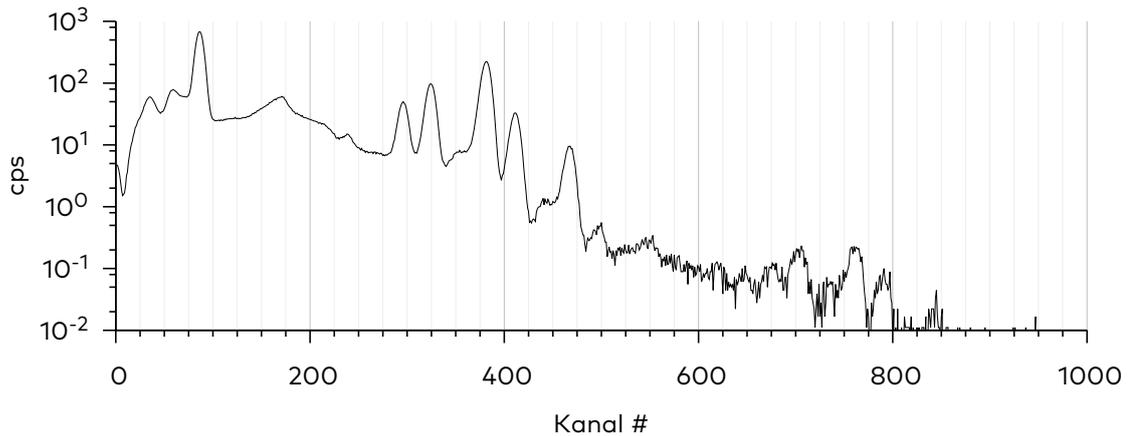


Abbildung 15 – Das mit einem CZT-Detektor aufgenommene Gamma-Spektrum einer Uran-Erz-Quelle; Messdauer: 300 s, Abstand etwa 5 cm

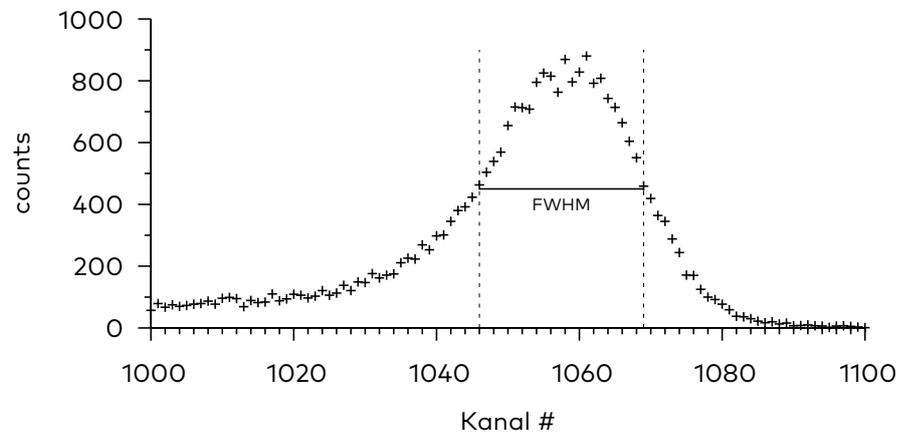


Abbildung 16 – Bestimmung der Halbwertsbreite des CZT-Detektors bei 662 keV mithilfe der Messung einer ^{137}Cs -Quelle im Abstand von 10 cm mit einer Messzeit von 2587 s

Detektors kann mithilfe von Referenzpräparaten vorgenommen werden. Zu diesem Zweck standen eine ^{133}Ba -Quelle (50.5 kBq) und eine ^{152}Eu -Quelle (50.7 kBq) zur Verfügung. Die Spektren wurden jeweils im Abstand 5 cm (^{133}Ba 6788 s; ^{152}Eu 6563 s) und 10 cm (^{133}Ba 3313 s; ^{152}Eu 56408 s) aufgenommen. Abbildung 17 stellt das ^{133}Ba -Spektrum (5 cm) und das ^{152}Eu -Spektrum (10 cm) sowie die Energie-Kanal-Zuordnung dar. Die Zuordnung ist in sehr guter Näherung proportional.

Kalibrierung des Ansprechvermögens des MicroSpec-Detektors

Für die Gammaskopimetrie ist es von Interesse, die gemessene Zählrate in Relation zu einer Aktivität zu setzen.

Zusammen decken die beiden Isotope ^{133}Ba und ^{152}Eu die für die Xenon-Messung

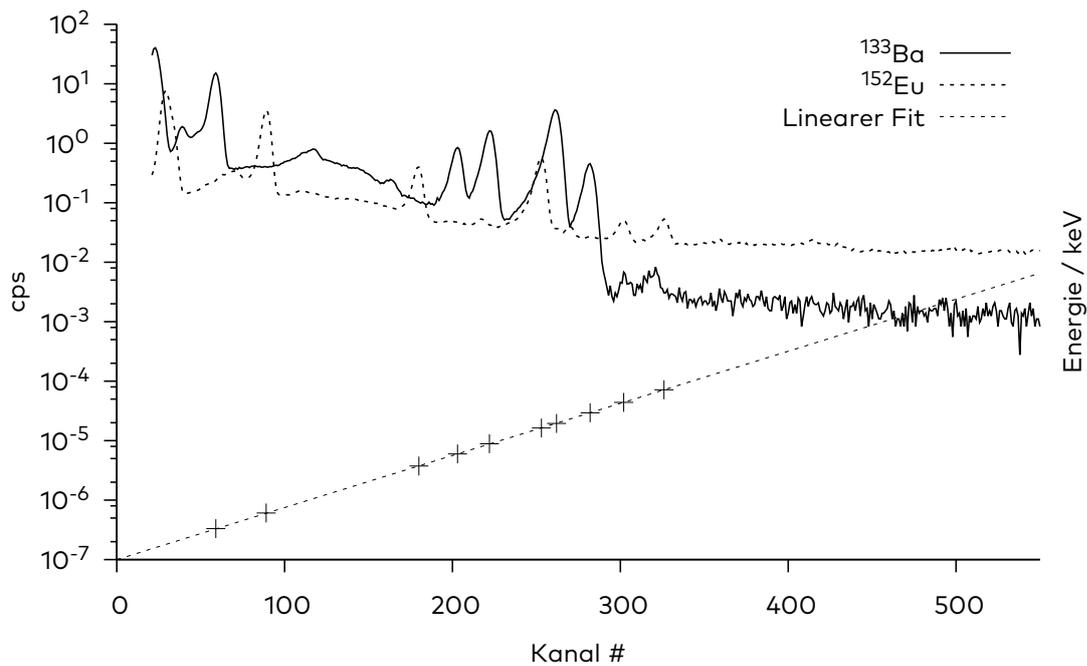


Abbildung 17 – ^{133}Ba -Spektrum (5 cm) und ^{152}Eu -Spektrum (10 cm) mit dem linearen Fit der Energie-Kanal-Zuordnung. Die zugehörigen Zerfallsenergien und Emissionswahrscheinlichkeiten finden sich in Tabelle 5.

notwendigen Energien gut ab (Xenon: Tabelle 2, Barium und Europium: Tabelle 5). Somit ist ihre Messung geeignet als Grundlage zu dienen, um im Folgenden eine Abschätzung über die absolute Effizienz des Messaufbaus am IRE anzustellen.

Eine solche Effizienz hängt im höchsten Maße von der geometrischen Anordnung von Detektor und Quelle ab. Berechnet wird dieses Vollenergieansprechvermögen als

$$\epsilon = \frac{N_0}{A \cdot P_\gamma \cdot t} = \frac{N_{\text{gemessen}}}{N_{\text{theoretisch}}} \quad (5)$$

mit der Peakfläche N , der Quellaktivität A , der Emissionswahrscheinlichkeit P_γ und der Messdauer t .

Mit den aufgenommenen ^{133}Ba - und ^{152}Eu -Spektren (Abb. 18 und 19) kann eine energieabhängige Effizienzkurve für eine Punktquelle in einem Abstand von 5 cm erzeugt werden, die das Vollenergieansprechvermögen für alle Gammaenergien angibt.

In Abbildung 20 ist das aus den beiden Messungen bestimmte Ansprechvermögen für eine Punktquelle im Abstand 5 cm aufgetragen. Der Messwert bei 160 keV ist deutlich überschätzt, da die Comptonkante des 302.85 keV-Peaks bei 164.3 keV liegt. Aus diesem Grund wurde der Peak für die folgende Analyse nicht verwendet.

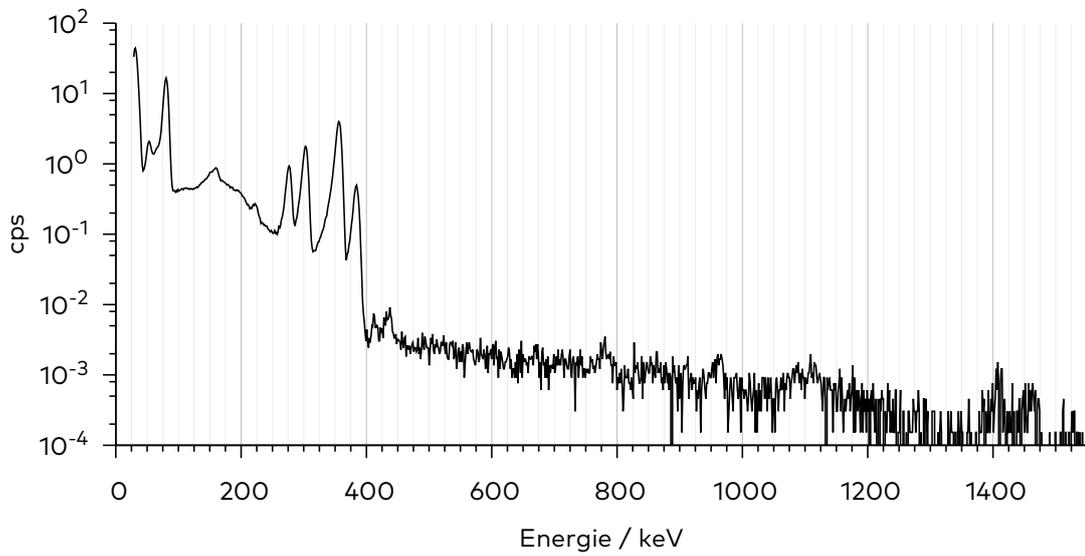


Abbildung 18 – ^{133}Ba -Spektrum (Abstand 5cm); Messdauer 6563 s

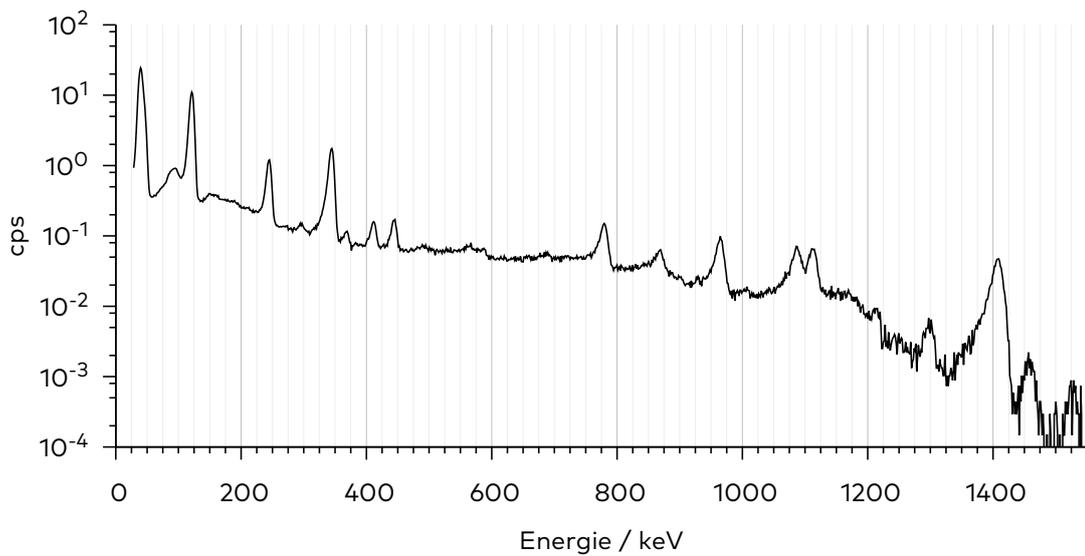


Abbildung 19 – ^{152}Eu -Spektrum (Abstand 5cm); Messdauer 6787 s

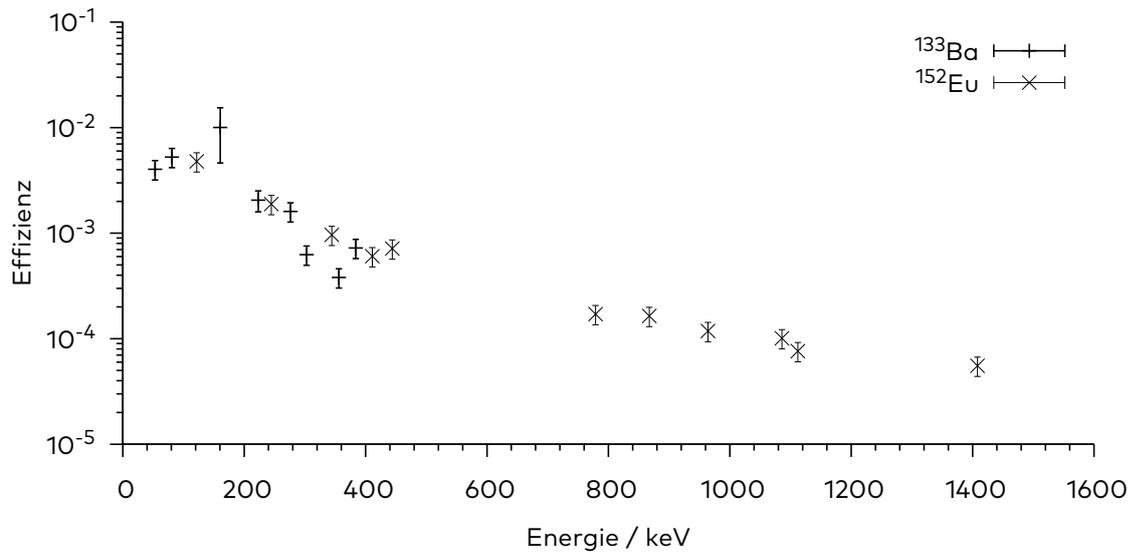


Abbildung 20 – Kalibrierung des Ansprechvermögens des CZT-Detektors mit einer ^{133}Ba - und einer ^{152}Eu -Punktquelle im Abstand von 5 cm.

^{133}Ba		^{152}Eu		^{241}Am		^{137}Cs	
E_γ / keV	P_γ						
30.97	96.2						
53.16	2.14			59.54	35.92		
79.61	2.63						
80.9979	33.31	121.7817	28.41				
160.61	0.63						
223.2368	0.45	244.6974	7.55				
276.3989	7.13						
302.8508	18.31	344.2785	26.59				
356.0129	62.05	411.1165	2.238				
383.8485	8.94	443.965	2.238			661.66	84.99
		778.9045	12.97				
		867.38	4.243				
		964.079	14.5				
		1085.837	10.13				
		1112.076	13.41				
		1212.948	1.416				
		1299.142	1.633				
		1408.013	20.85				

Tabelle 5 – Die wichtigsten γ -Zerfallsenergien von ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{241}Am und ^{137}Cs mit der Anzahl an Photonen pro 100 Zerfälle P_γ [$\text{BCD}^+ 04$, $\text{BCD}^+ 06$, $\text{BCD}^+ 10$, $\text{BCD}^+ 16$]

3.2 Messaufbau

Um den Detektor auf seine Eignung zur Messung von Radioxenonisotopen in der Abluft kerntechnischer Anlagen zu überprüfen, ist die beste Möglichkeit, ihn in einer solchen Anlage aufzubauen und idealerweise mit Referenzdaten zu vergleichen. Im Institut für Radionuklide (IRE) in Belgien war es möglich, dies zu tun.

3.2.1 Stack-Monitoring des IRE durch die Betreiber

Die Betreiber des IRE haben, um die gesetzlich vorgegebenen Grenzwerte für den Ausstoß radioaktiver Materialien einhalten zu können, einen eigenen Messaufbau zur Bestimmung der Aktivitäten in der Abluft. Im Schornstein wird dafür Abluft abgezweigt und einem Messaufbau zugeführt. Die Abluft wird durch Glasfaserfilter gepumpt, um Aerosole herauszufiltern, und dann über mit Triethylamin (TEDA) getränkte Aktivkohlekartuschen geführt, die Gase aus der Abluft zurückhalten können und damit die Aktivitätskonzentration vor dem Detektor um etwa einen Faktor 12 erhöhen und als Messvolumen dienen. [Dec13] Die Kartuschen sind in ein Aluminiumgehäuse eingefasst und dieses in einem Stahlgehäuse untergebracht. Die von den angesammelten Radioisotopen abgegebene Gammastrahlung wird von einem neben den Kartuschen und ausserhalb des Stahlgehäuses platzierten Reinst-Germanium-Detektor aufgenommen. Das resultierende Spektrum wird automatisch ausgewertet und die Aktivitäten werden zusammen mit dem Spektrum gespeichert. [Dec13] Dieser Aufbau ist doppelt vorhanden, sodass eine Ausfallsicherheit gewährleistet wird. Vom IRE eine mittlere Radioaktivität von 4.6×10^{12} Bq/d abgegeben. [Sae09]

Die Germaniumdetektoren wurden durch das IRE zuverlässig kalibriert, indem eine bekannte Menge an ^{133}Xe in einer an die Belüftung angeschlossenen *Heißen Zelle* freigesetzt wurde. Mit der integralen Zählrate der Detektoren kann so das Verhältnis zwischen der tatsächlich freigesetzten Menge an Radioxenon und der Zählrate des Detektors angegeben werden.

3.2.2 Ein kompakter Aufbau mit einem CZT-Detektor

Da der ‘MicroSpec’-Detector über einen Micro-USB Anschluss mit Strom versorgt wird, welcher gleichzeitig die Datenschnittstelle darstellt, die in Echtzeit ausgelesen

werden muss, ist für den Betrieb ein Computer notwendig. Da keine aufwändigen Berechnungen während der Messzeit durchgeführt werden, reicht dazu ein leistungsschwacher Miniaturcomputer aus. Für den Messaufbau wurde ein ‘Raspberry Pi’-Computer verwendet (Abb. 21). Da dieser Computer auf ein Minimum an notwendigen Komponenten reduziert ist, ist es notwendig, zusätzlich ein eigenes Modul zur Zeitmessung zu installieren, damit die aufgenommenen Spektren mit einem Zeitsempel versehen werden können.

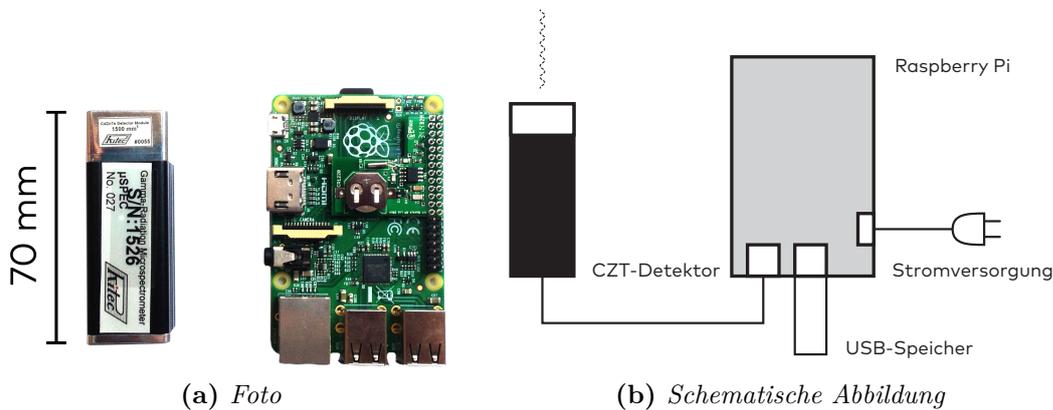


Abbildung 21 – *MicroSpec-Detektor und Raspberry Pi Minicomputer (Version 2, Modell B)*

Zusammen mit dem Detektor in einem Plastikgehäuse ergibt der Minicomputer einen sehr kompakten Aufbau, der leicht auf einem Stativ montiert werden kann (Abb. 22). Die Stromversorgung erfolgt über ein Netzteil, welches an das übliche Stromnetz angeschlossen werden kann und den Computer und darüber den Detektor mit einer Spannung von 5 V versorgt. Der Computer wurde so präpariert, dass Spektren mit einer Messdauer von 10 min aufgenommen, auf dem internen Speicher abgelegt und auf einen eventuell angeschlossenen USB-Speicher kopiert werden. Für die Inbetriebnahme sind die Verbindung des Detektors mittels eines Micro-USB-Kabels und eine Verbindung zum Stromnetz notwendig. Die Software zur Ansprache des Detektors startet dann selbsttätig. Der USB-Speicher kann während der laufenden Kampagne entfernt und ausgelesen werden, um die zuvor aufgenommenen Spektren zu analysieren.

Für die Kampagne wurde der Aufbau mit dem CZT-Detektor auf einem Stativ angebracht und wie der HPGe-Detektor vor dem Stahlgehäuse platziert (Abb. 22). Dabei wurde der Detektor in einem Abstand von etwa 3 cm von den Aktivkohle-

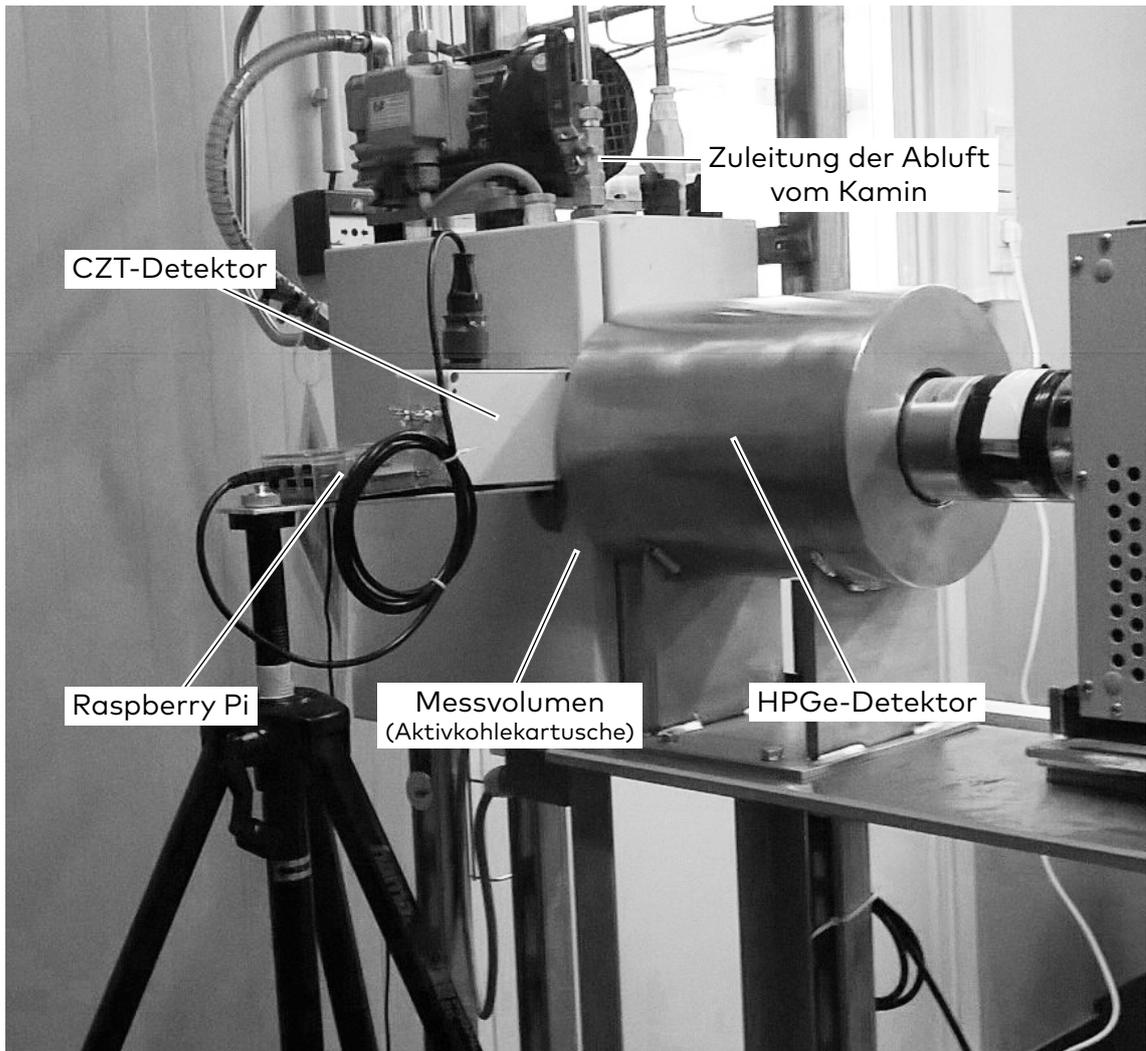


Abbildung 22 – *Messaufbau während der Kampagne: Raspberry Pi und MicroSpec auf Stativ, Messvolumen und HPGe-Detektor*

kartuschen plaziert. Abbildung 23 zeigt den Messaufbau. Da die Spektren auf dem USB-Speicher aufgezeichnet werden war es möglich, schon während der Kampagne Messdaten zu gewinnen, eine vorläufige Auswertung vorzunehmen und damit den korrekten Betrieb der Anordnung zu überprüfen. Gleichzeitig standen die Betreiberdaten der Aktivitäten verschiedener Xenonisotope zur Verfügung, die im Folgenden zum Vergleich herangezogen werden sollen.

3.3 Analytische Betrachtung

Die Messgeometrie ist zusammen mit den Detektoreigenschaften ausschlaggebend für die gemessenen Spektren und die anschließende Auswertung. Für eine erste Abschätzung des Vollenergieansprechvermögens des Detektors für den in Belgien vor-

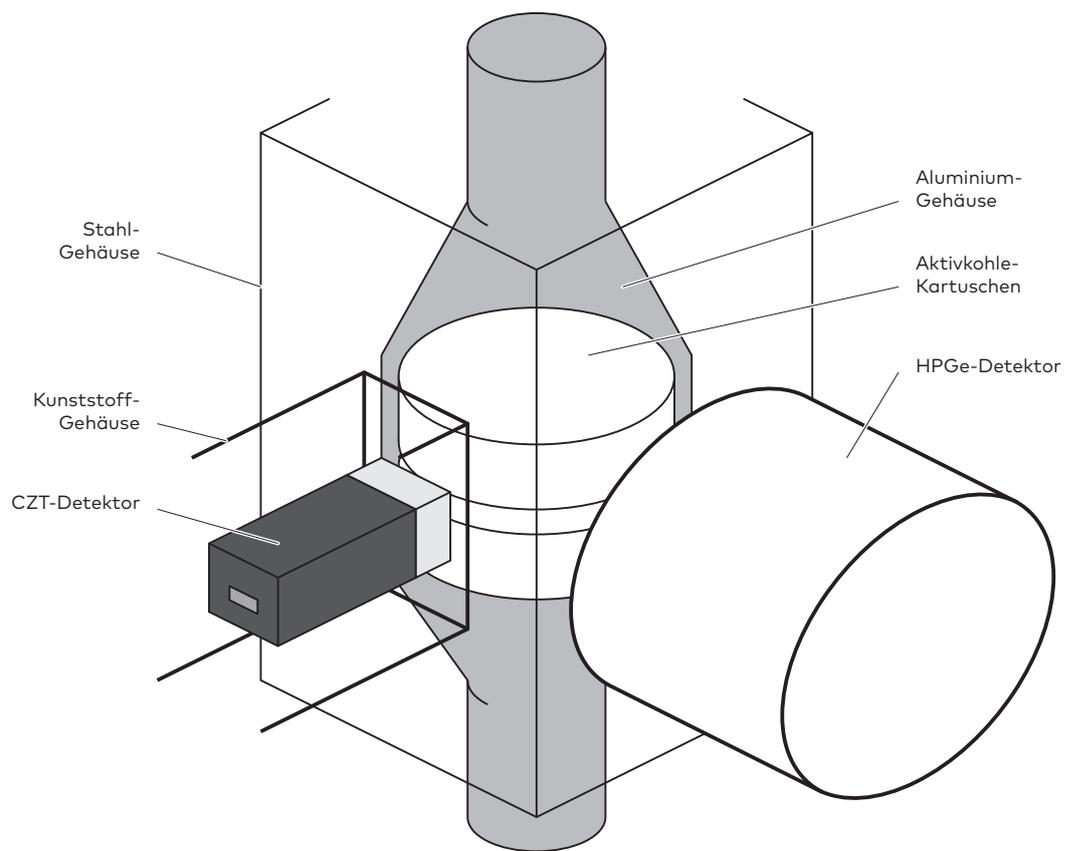


Abbildung 23 – Messaufbau während der Kampagne: *Raspberry Pi*, *MicroSpec*, Messvolumen und *HPGe*-Detektor

liegenden Aufbau soll zunächst ein analytischer Ansatz gewählt werden.

Zur Modellierung können die Absorptionskoeffizienten der verschiedenen vorhandenen Materialien sowie das gemessene Ansprechvermögen des Detektors herangezogen werden. Für die Betrachtung wird ein 1D-Strahlengang berechnet.

Die Absorptionskoeffizienten lassen sich in Form einer parametrisierten Funktion in Abhängigkeit von materialspezifischen Koeffizienten annähern [OLS⁺93]. Der Massenschwächungskoeffizient μ/ρ lässt sich dabei jeweils in einem Bereich zwischen den Absorptionskanten mit einem Satz von bis zu vier Parametern p_i als

$$\mu/\rho = \exp [p_1 + p_2(\ln \lambda) + p_3(\ln \lambda)^2 + p_4(\ln \lambda)^3] + \sigma_{\text{KN}} Z N_A / M \quad (6)$$

annähern. Dabei sind $p_1 \dots p_4$ materialspezifische Parameter, Z die Kernladungszahl, M die atomare Masse, $\lambda = \frac{hc}{E}$ die Wellenlänge der Photonen, N_A die Avogadro-Konstante und σ_{KN} der Streuwirkungsquerschnitt der inkohärenten Streuung nach der Klein-Nishina-Gleichung

$$\sigma_{\text{KN}} = 2\pi r_e^2 \left[\frac{1+k}{k^2} \left[\frac{2(1+k)}{1+2k} - \frac{\ln(1+2k)}{k} \right] + \frac{\ln(1+2k)}{2k} - \frac{1+3k}{(1+2k)^2} \right] \quad (7)$$

mit $k = E/mc^2$, r_e dem klassischen Elektronenradius ($2.817\,939 \times 10^{-15}$ m), $mc^2 = 511.0034$ keV und E der Photonenenergie in keV.

Dabei wird die Aktivkohleschüttung als reiner Kohlenstoff (der C-Anteil beträgt $> 98\%$) mit einer Dichte von 0.45 g/cm³, das Stahlbehältnis als Eisen, das Plastikgehäuse als Polyethylen und die Luft als nicht-absorbierend angenommen. In Abbildung 24 sind die so berechneten Massenschwächungskoeffizienten zu sehen.

Polyethylen setzt sich aus Kohlenstoff und Wasserstoff in den Anteilen 85.63% und 14.37% zusammen und kann anteilig aus den Absorptionskoeffizienten der beiden Elemente modelliert werden. [BS93]

Der simulierte Strahlengang durchläuft den halben Durchmesser der Aktivkohlekartrusche (beginnt also in deren Mitte) und den Aluminiumhalter, das Stahlgehäuse und das Plastikgehäuse jeweils orthogonal. In Abbildung 25 ist für verschiedene Energien die Transmission beim Durchgang durch die Messanordnung aufgetragen. Die Anteile an der Abschwächung der verschiedenen Bestandteile und die Gesamt-

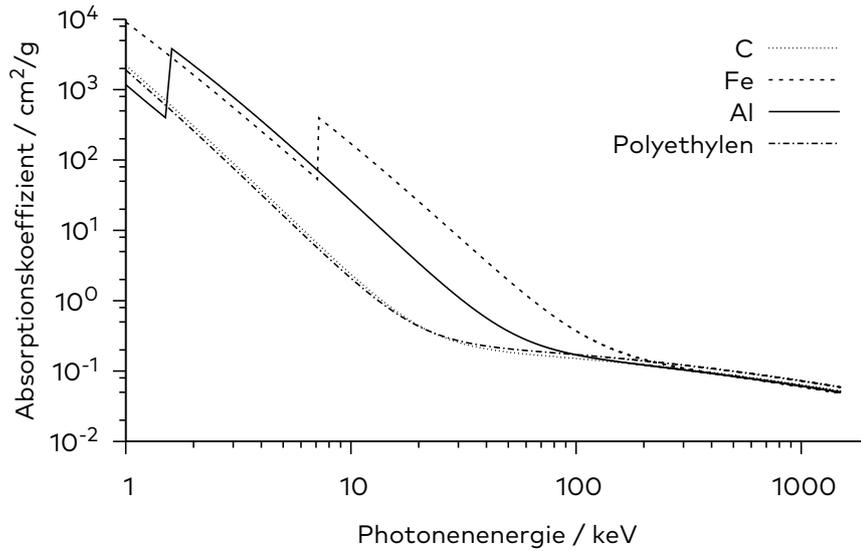


Abbildung 24 – Die modellierten Absorptionskoeffizienten der im Messaufbau vorhandenen Materialien

abschwächung der Anordnung abhängig von der Energie sind in Abbildung 26 dargestellt. Die Transmission $T(E)$ ergibt sich dabei aus den Absorptionskoeffizienten und dem Beer-Lambert'schen-Gesetz zu

$$T(E) = \exp\left(-\sum_{i=1}^N \int_0^l \mu_i \cdot n_i(z) dz\right) \quad (8)$$

mit dem Absorptionskoeffizienten μ_i und dem Materialanteil n_i oder im Falle von homogenen, nicht vermischten Materialien als

$$T(E) = \prod_i \exp(-\mu_i \cdot l_i) \quad (9)$$

mit der durchschrittenen Weglänge l_i für jedes Material.

Die Effizienz des Detektors für eine Punktquelle lässt sich ebenfalls modellieren. Die Messwerte zusammen mit einem Spline- und Polynomfit sind in Abbildung 27 aufgetragen. Der Fit durch ein einzelnes Polynom selbst in höheren Ordnungen ist nicht geeignet, die Messpunkte sinnvoll anzunähern. Mit dieser modellierten Effizienz $\epsilon_{\text{Punktquelle}}$ und der Transmission $T(E)$ lässt sich ein Vollenergieansprechvermögen ϵ_{total} mit

$$\epsilon_{\text{total}}(r) = \epsilon_{\text{Punktquelle}}(E) \cdot k_r \cdot T(E) \quad \text{mit} \quad k_r = r_0^2/r^2 \quad (10)$$

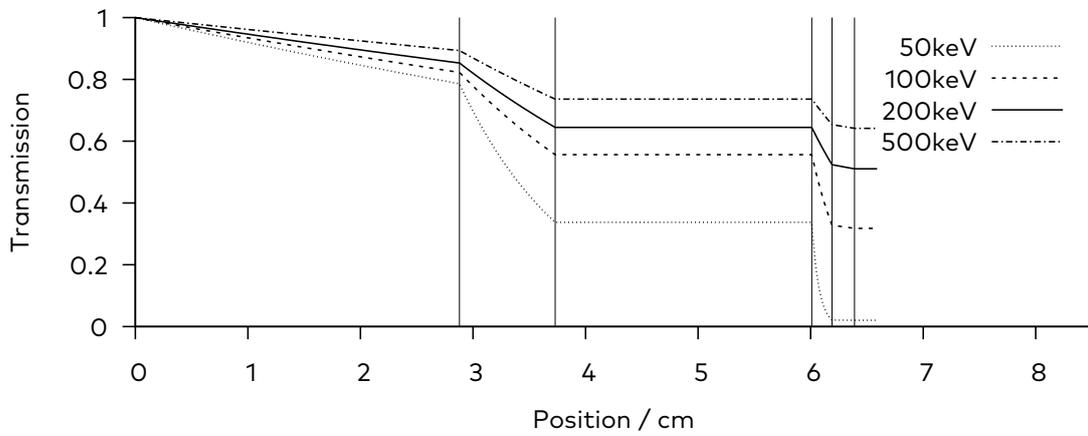


Abbildung 25 – Die Transmission beim Durchgang durch die verschiedenen Materialien des Messaufbaus für unterschiedliche Photonenenergien

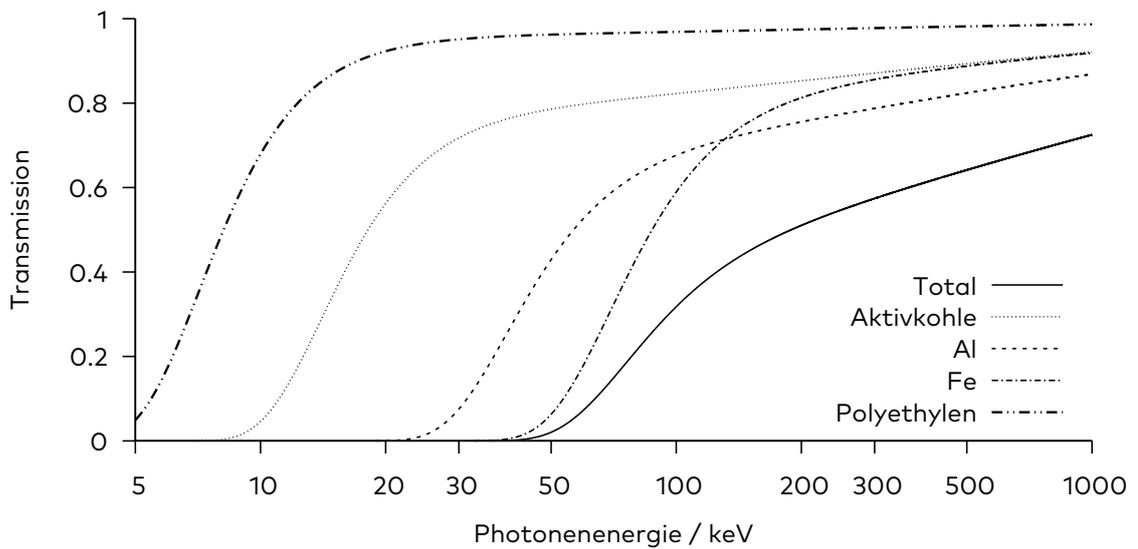


Abbildung 26 – Die Transmission des gesamten Messaufbaus und der verschiedenen Bestandteile.

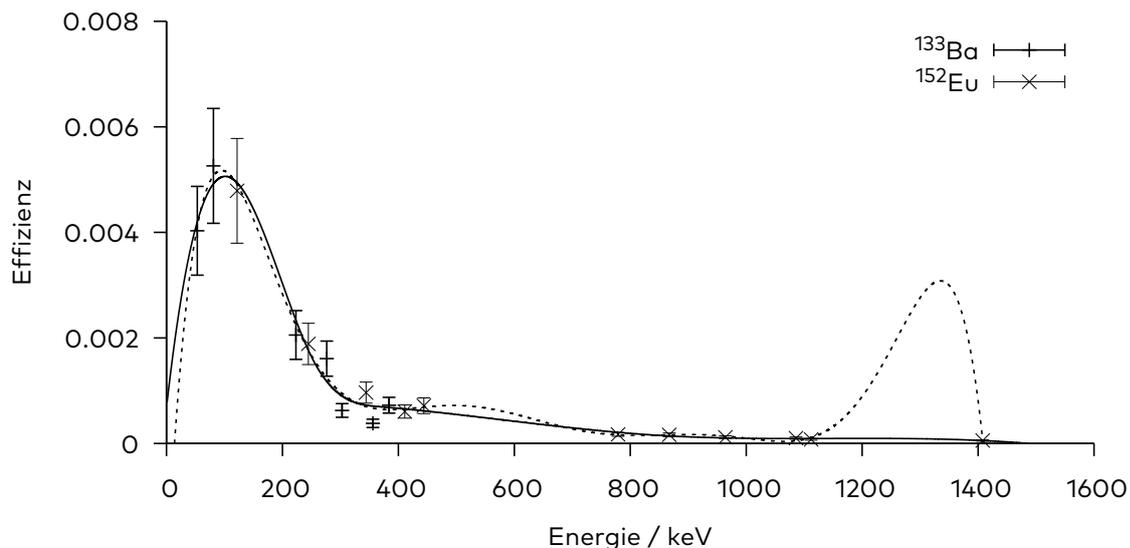


Abbildung 27 – Effizienz des CZT-Detektors für eine Punktquelle im Abstand von 5 cm ohne Abschirmung zusammen mit einer Spline-Interpolation (durchgezogene Linie) und einem Polynomfit (10. Ordnung, gestrichelt).

angeben, mit dem Quellabstand r (hier 6.39 cm) und dem Abstand der Referenzquelle r_0 . Das modellierte Vollenergieansprechvermögen des Messaufbaus im IRE ist in Abbildung 28 dargestellt. Erneut ist zu erkennen, dass die Spline-Interpolation für die Modellierung geeigneter ist als ein einzelner Polynomfit selbst höherer Ordnung. Dieses modellierte Vollenergieansprechvermögen ist eine analytische Abschätzung, die im Folgenden durch den Aufbau eines analogen Messaufbaus ergänzt und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen wird.

3.4 Vergleichsmessung

Um eine quantifizierbare Aussage über die Aktivitäten der Messreihe in IRE treffen zu können, ist ein genau Kenntnis des Vollenergieansprechvermögens notwendig. Das soeben rechnerisch abgeschätzte Ansprechvermögen wurde deshalb experimentell überprüft.

Dafür wurde eine Messanordnung erstellt, die den Gegebenheiten im IRE nachempfunden ist (Abbildung 29). Eine schematische Darstellung der Anordnung im IRE ist in Abbildung A1 im Anhang zu finden. Dabei wurde nur eine statt der im IRE verwendeten zwei Aktivkohlekartuschen eingesetzt, da sich die Xenon-Isotope im wesentlichen gleichmäßig in der Aktivkohle verteilen und die Anordnung symmetrisch

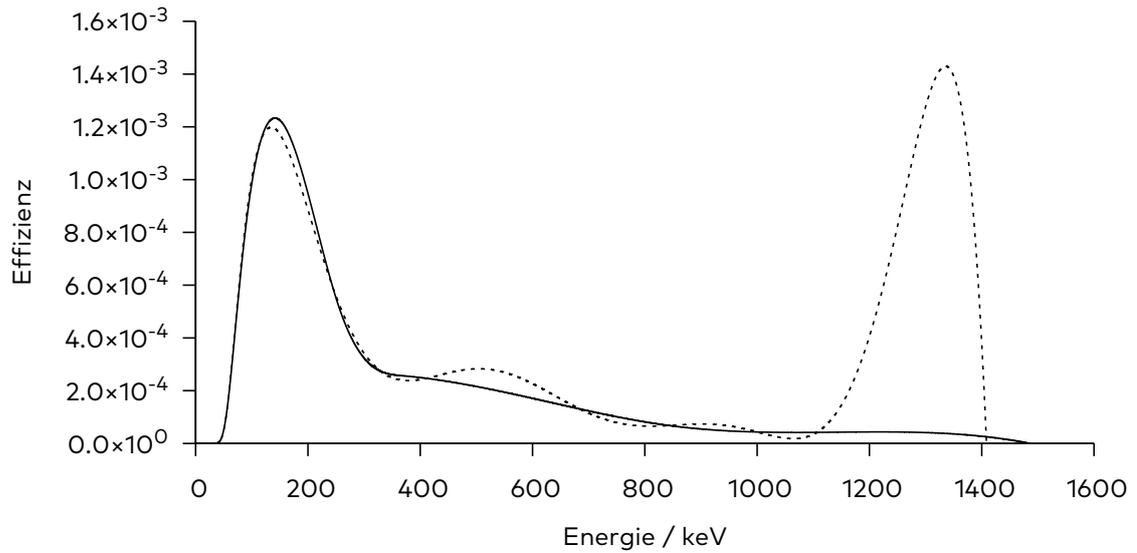


Abbildung 28 – Das modellierte Vollenergieansprechvermögen des Messaufbaus im IRE. Die Effizienz des Detektors wurde mit einer Spline-Interpolation (durchgezogene Linie) und einem Polynomfit (10. Ordnung, gestrichelt) modelliert.

ist. Da keine Lösung, mit der eine Volumenquelle erzeugt würde, zum Aufbringen auf die Aktivkohle zur Verfügung stand, wurde auf vorhandene Punktquellen zurückgegriffen. Trotzdem sollten die Verhältnisse im IRE möglichst angenähert werden, weshalb eine baugleiche Aktivkohlekartusche eingesetzt wurde, in die die Punktquellen mittig eingebracht wurden, um in etwa die mittlere Abschirmung in der Kartusche zu erreichen.

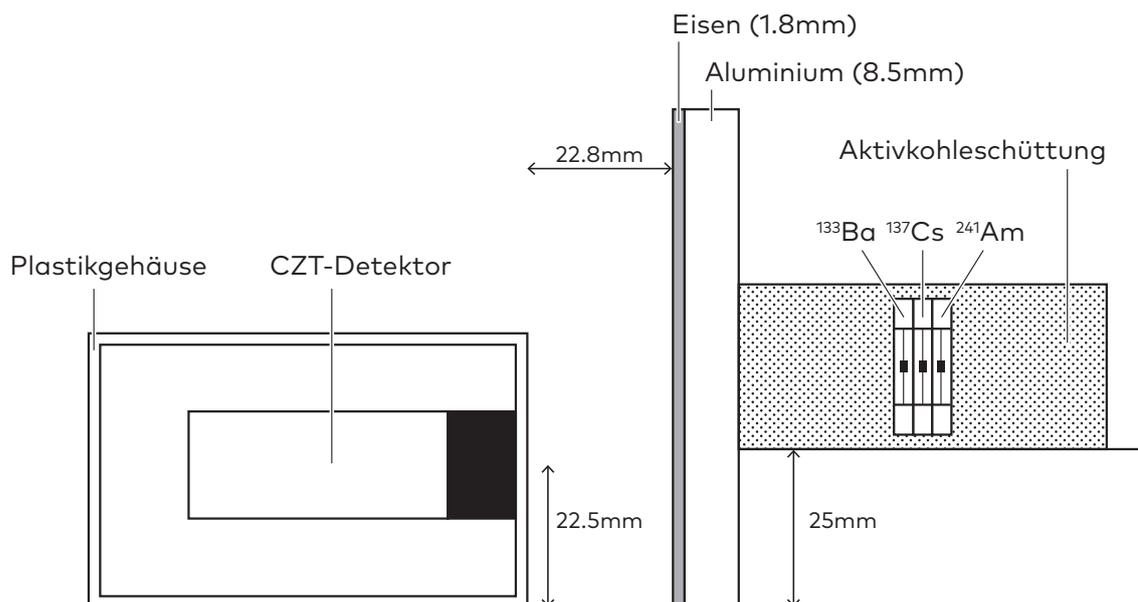


Abbildung 29 – Schematische Darstellung des Aufbaus, der den Messaufbau im IRE zur Charakterisierung des Ansprechvermögens nachstellt

Zur Kalibrierung der Messanordnung werden verschiedene Quellen verwendet, um für möglichst viele verschiedene Energien ein Ansprechvermögen angeben zu können. In einer Aktivkohleschüttung wurden hierzu zunächst drei Punktquellen mittig positioniert. Die Isotope ^{241}Am , ^{133}Ba und ^{137}Cs decken hierbei verschiedene niedrige Gammaenergien ab (Abbildung 30). Um die Lücke im Energiespektrum zwischen den beiden ^{133}Ba -Linien bei 81 keV und 276.4 keV zu schliessen, wurde dasselbe Experiment noch einmal mit einer ^{152}Eu -Quelle durchgeführt.

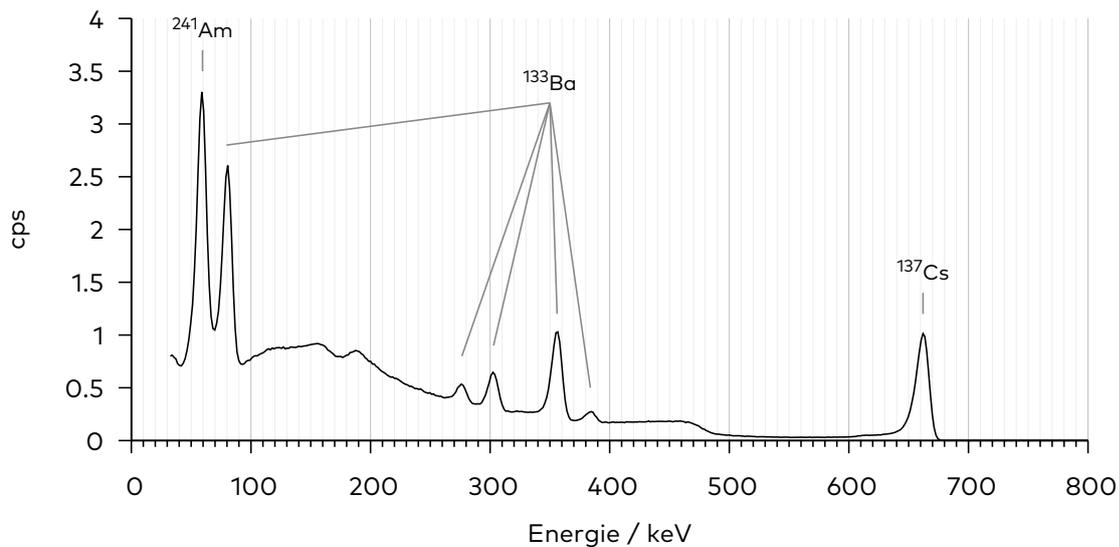


Abbildung 30 – Spektrum der in der ersten Messreihe im IRE-Nachbau eingebauten Punktquellen (^{241}Am , ^{133}Ba und ^{137}Cs); Messzeit: 3157 s im Abstand von 6.4 cm.

Aus den Spektren lässt sich wie zuvor die absolute Effizienz bestimmen. In Abbildung 31 ist das aus den gemessenen Peakflächen berechnete Ansprechvermögen zusammen mit einer Spline-Interpolation dargestellt und mit dem analytisch hergeleiteten verglichen. Auffällig ist, dass das Maximum bei 120 keV deutlich höher liegt als bei der berechneten Kurve. Die Unsicherheit des betreffenden Messwertes schliesst jedoch beide Kurven mit ein, sodass das berechnete und das experimentell bestimmte Ansprechvermögen als in Übereinstimmung befindlich betrachtet werden können. Für die folgende Analyse der Aktivitätskonzentrationen wird das durch die Messung gewonnene und als Spline beschriebene Ansprechvermögen verwendet.

3.4.1 Untergrundmessung

Zur Bestimmung des Untergrundes wurde eine sogenannte ‘Nullmessung’ ohne platzierte Quellen vorgenommen. (Abbildung 32) Die Isotope ^{212}Pb , ^{214}Pb , ^{214}Bi und

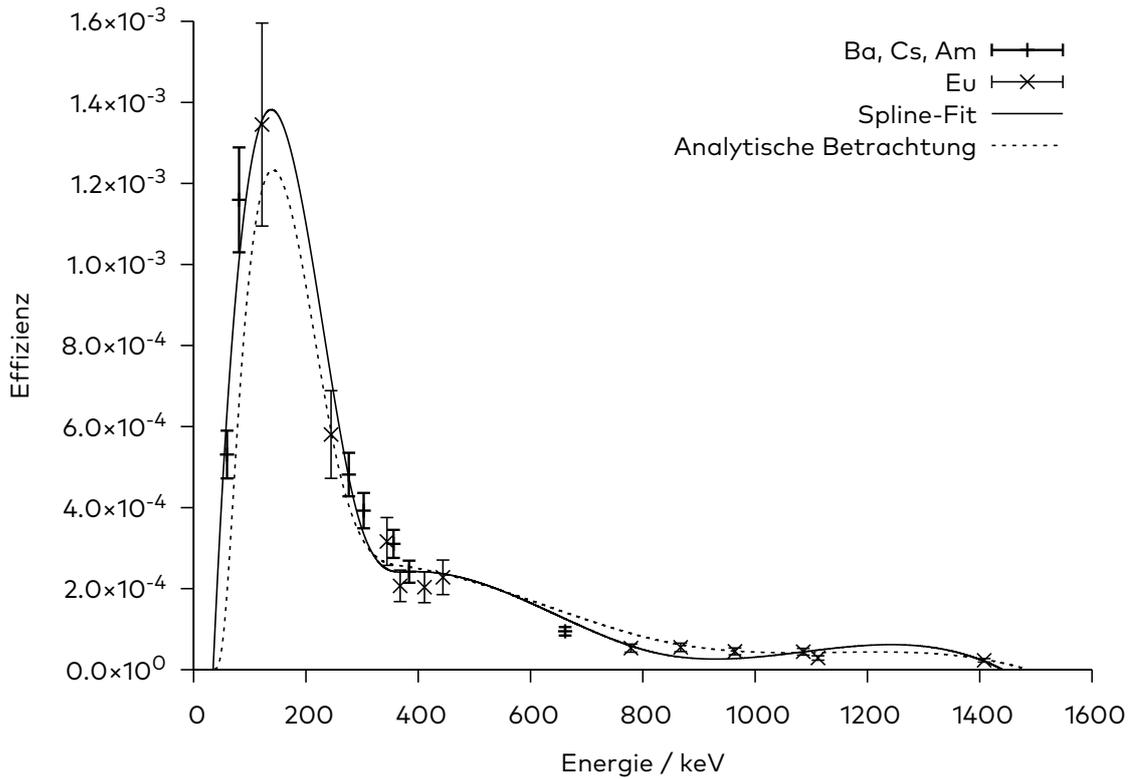


Abbildung 31 – Absolute Effizienz des IRE-Nachbaus mit vier Punktquellen (^{241}Am , ^{133}Ba und ^{137}Cs) und einer ^{152}Eu -Quelle sowie die in der analytischen Betrachtung bestimmten Effizienz

^{40}K lassen sich im so gewonnenen Spektrum identifizieren. Die Gammapeaks haben dabei Zählraten von lediglich 4.4×10^{-3} cps bis 1.8×10^{-2} cps und spielen deshalb bei den durchgeführten Messreihen keine Rolle.

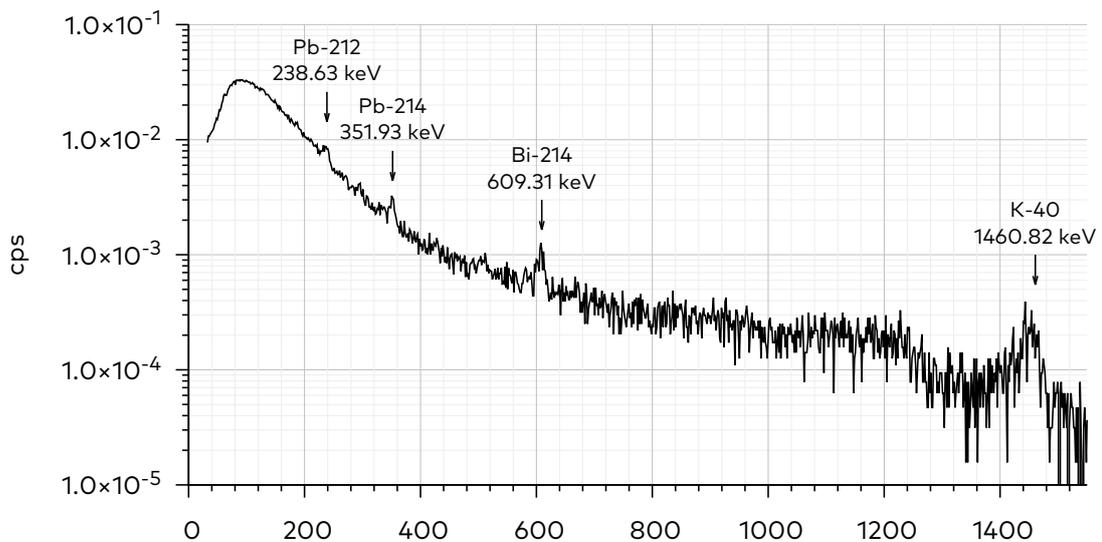


Abbildung 32 – Spektrum der ‘Nullmessung’ des IRE-Nachbaus ohne plazierte Quellen mit den identifizierten Untergrundpeaks. Messdauer: 63 804 s

3.5 Datenverarbeitung und Analysesoftware

Der Detektor kann mit einer vom Hersteller bereitgestellten Software für das Windows-Betriebssystem und einem vom BfS entwickelten Treiber für das Linux-Betriebssystem angesprochen werden. Für die durchgeführten Messungen wurde ein Linux-System verwendet. Die Äquivalenz von Herstellersoftware und Linux-Treiber konnte experimentell mit zwei vergleichenden Messungen einer ^{152}Eu -Quelle bestätigt werden (Abbildung 33).

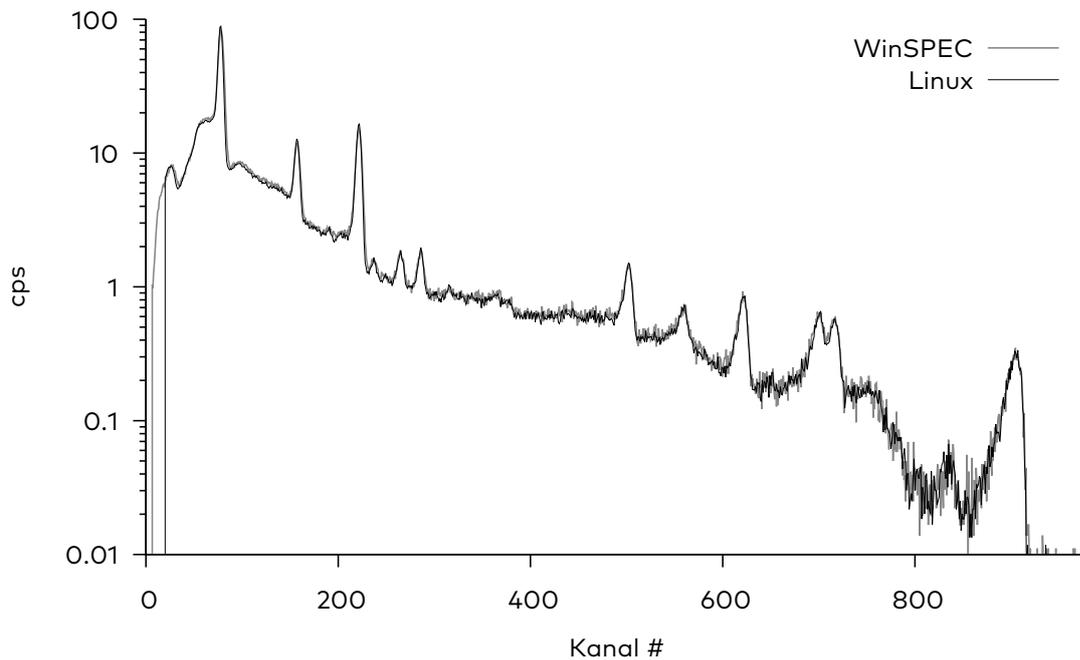


Abbildung 33 – Vergleich der WinSPEC-Betreibersoftware und dem Linux-Treiber für den MicroSpec-Detektor anhand des Spektrums einer ^{152}Eu -Quelle

Die Schritte der Datenverarbeitung sind in Abbildung 34 grafisch dargestellt. Über den verwendeten Treiber werden die von der Steuerungselektronik des Detektors erzeugten Zählraten aggregiert. Die so gewonnenen Spektren werden auf dem Computer abgelegt und liegen dort im ‘mwsd’-Format vor, welches in ein geeigneteres Format umgewandelt (*‘geparst’*) und in eine für diese Arbeit erstellte Datenbank übertragen wird. Mit dieser Datenbank ist es dann möglich, die Spektren aufzutragen und gruppiert aufzusummieren, um so für die folgende Analyse Spektren mit höheren Zählraten und geringerem Rauschen zu erzeugen. Auch hierfür wurde eigens eine Software geschrieben, die diese Schritte automatisiert ausführt. Die so summierten Spektren werden mit dem Analyse-Programm ‘peak’, welches für das Bundes-

amt für Strahlenschutz entwickelt wurde, mittels einer Peaksuche nach Mariscotti automatisiert analysiert und die (Peak-)Aktivitäten bestimmt. Hierbei werden aus den bestimmten Peakflächen die Aktivitäten verschiedener Isotope berechnet. Das Programm benötigt hierzu eine Energiekalibrierung, das Ansprechvermögen und die Energieauflösung sowie eine Nuklidbibliothek mit den Gammaemissionsdaten der zu betrachtenden Isotope. Die Spektrumsdaten werden dem Programm über das standardisierte XML-Format 'N42' bereit gestellt und von diesem die Analyseergebnisse in einer XML-Datei abgelegt.

Informationen über die gefitteten Funktionen lassen sich über eine temporäre Datei des Programms auslesen, weshalb diese zusammen mit der XML-Datei gespeichert und ausgewertet wird. Dies erlaubt es, die gefitteten Gauß-Kurven in den Spektren einzuzeichnen und die Plausibilität der Analyse so abzuschätzen.

Schließlich kann in einem letzten Schritt mit den vom Betreiber zur Verfügung gestellten Aktivitätsdaten ein Vergleich angestellt werden.

Für die Schritte (3) bis (7) in Abbildung 34 wurden eine Datenbank und eine Software entwickelt, die die Analyseschritte automatisiert ausführen kann und es so erlaubt, aus den 4182 Spektren der ersten dreieinhalb Wochen des Messzeitraumes zeitlich aufgelöste Erkenntnisse zu gewinnen.

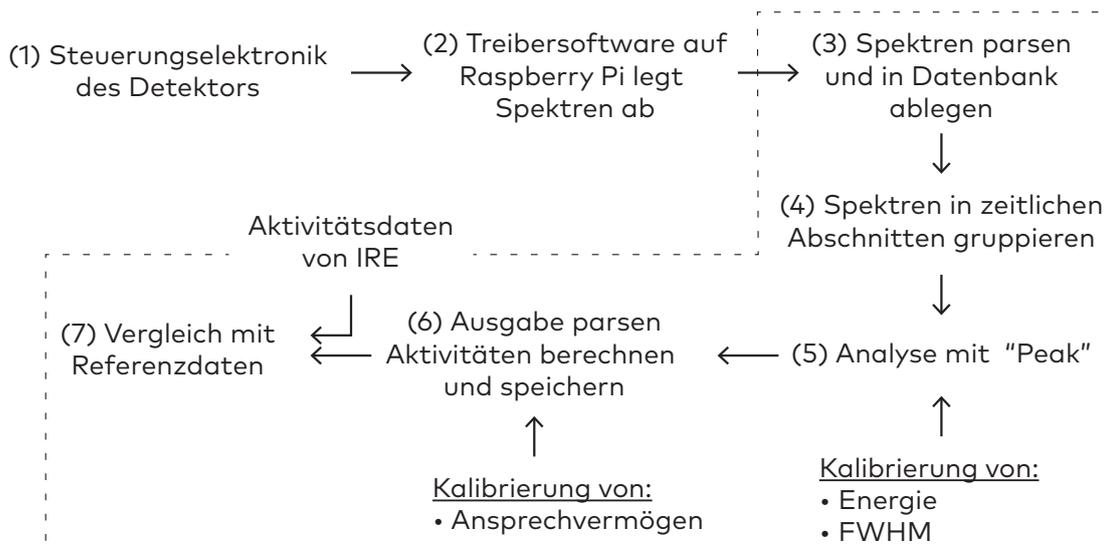


Abbildung 34 – Schematische Darstellung der Schritte der Datenverarbeitung; gestrichelt: Die Schritte (3) bis (7) werden von einer eigens entwickelten Software und Datenbank automatisiert vollzogen

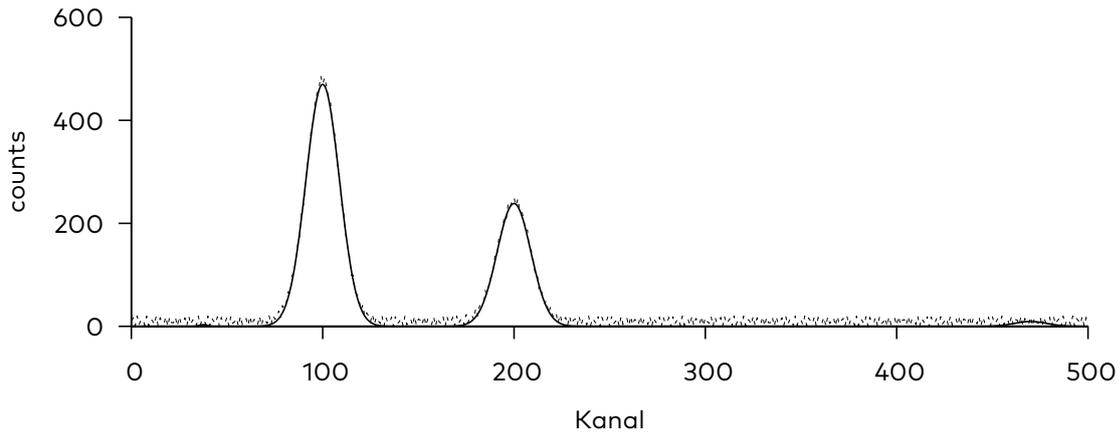


Abbildung 35 – *Künstliches Spektrum und von 'peak' angefittete Peaks*

Um die korrekte Funktion des Analyse-Programms 'peak' zu überprüfen, wurde ein künstliches, leicht verrauschtes Spektrum zusammen mit einer künstlichen Nuklid-Bibliothek verwendet. In Abbildung 35 ist das Spektrum zusammen mit den gefitteten Peaks zu sehen. Zu erkennen ist, dass die beiden vorgesehenen Peaks bei 100 keV und 200 keV sehr gut angenähert werden und gleichzeitig bei 470 keV und 37.5 keV bei der Peaksuche vermeintliche Peaks im Rauschen gefunden werden, die nur statistischen Fluktuationen entspringen. Die Berechnung der Nachweisgrenzen ist also notwendig, um die Messergebnisse einordnen zu können.

Auch das automatische Auswerten von Peaks in der IRE-Messreihe liefert mit der 'peak'-Software weitestgehend zuverlässige Ergebnisse. In Abbildung 36 ist ein Beispielspektrum mit einer Messzeit von 1 h zusammen mit den gefitteten Peaks und dem gefitteten Hintergrund dargestellt. Beachtenswert ist, dass bei etwa 38 keV ein Peak ermittelt wird, der so nicht vorhanden ist. Dies belegt erneut, dass die automatisierte Auswertung von Gammaspektren nicht trivial ist.

Die Software 'peak' war für die Analyse zwar in der Lage, die Peakflächen gut zu bestimmen. Ein Fehler beim Einlesen der Daten über das Ansprechvermögen, der bei der Analyse zu Tage getreten ist, machte es jedoch unmöglich, mit 'peak' Aussagen über die Aktivitäten zu treffen. Es wurde deshalb dieser Teil des Programms durch eine eigene Auswertung ersetzt, die aus den Peakflächen und der Kalibrierung des Ansprechvermögens die Aktivitäten der verschiedenen Isotope bestimmt.

Da jedoch gerade für die Kalibrierungsmessungen eine hohe Genauigkeit und die Möglichkeit zur manuellen Kontrolle nötig sind, wurde für die Auswertung noch

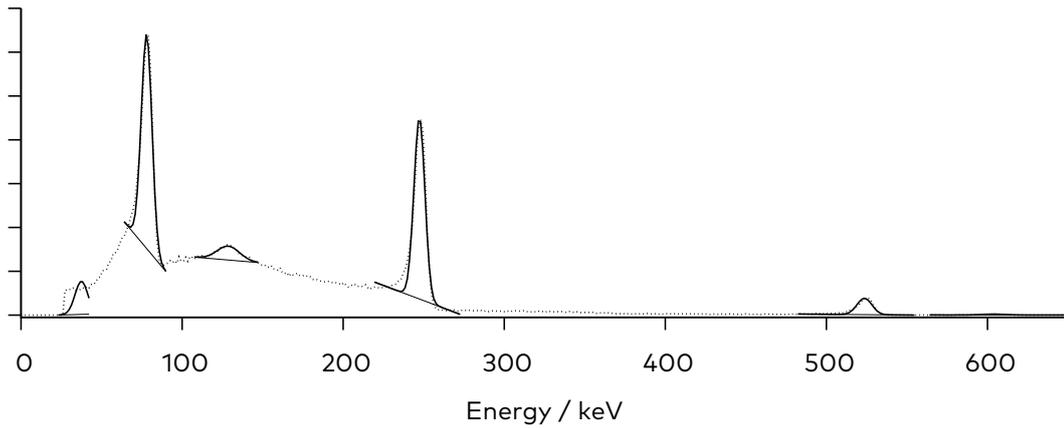


Abbildung 36 – *Beispiel für die automatisierte Auswertung eines 1 h-Spektrums mit der peak' Software mit den gefitteten Peaks und dem gefitteten Hintergrund*

eine einfache Software geschrieben, mit der Peakflächen über einem als linear angenommenen Hintergrund bestimmt werden können. (Abb. 37) Somit ist die Eingabe des Hintergrunds und der Peakbreite und die unmittelbare Kontrolle über ein grafisches Interface möglich.

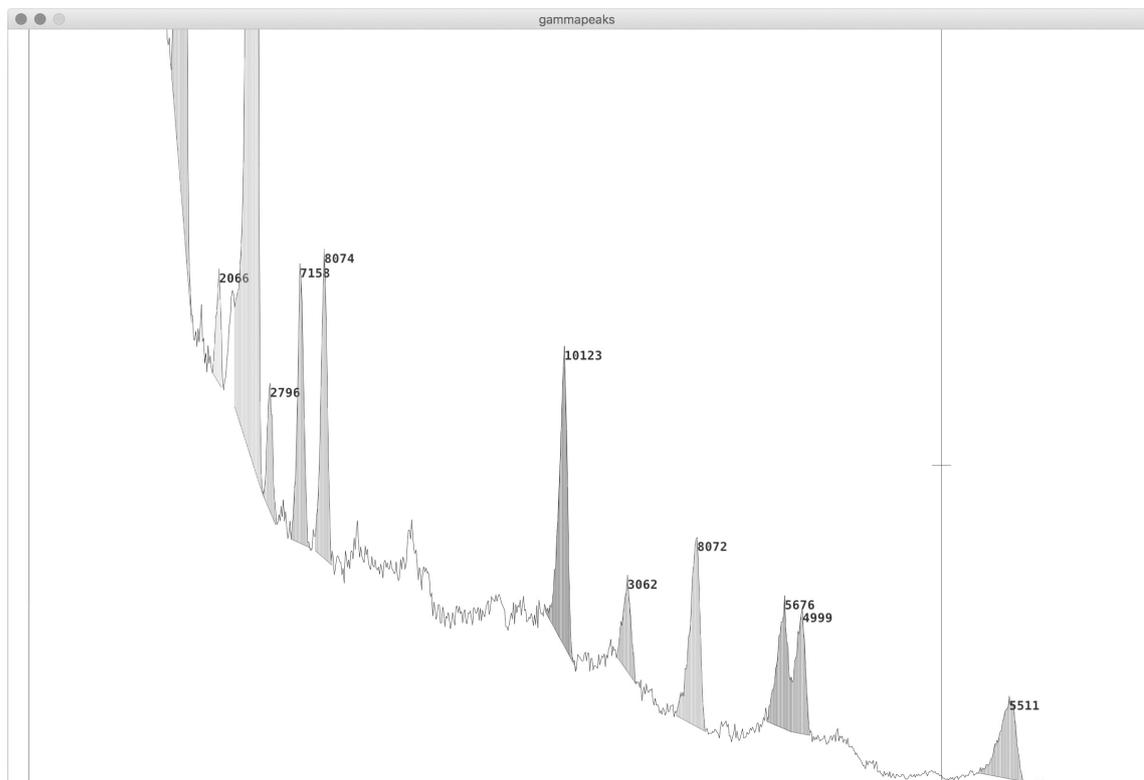


Abbildung 37 – *Interface der für diese Arbeit erstellten Software zur Vermessung von Peakflächen*

4 Ergebnisse und Diskussion

Der Messaufbau war insgesamt etwa drei Monate im Institut für Radionuklide (IRE) in Betrieb. Für dreieinhalb Wochen liegen die vom Betreiber gemessenen Aktivitätskonzentrationen vor, sodass sich die Auswertung im Folgenden auf diesen Zeitraum beziehen wird, da bereits Regelmäßigkeiten zu erkennen sind und insbesondere der Vergleich zu den Betreiberdaten als Referenz gezogen werden soll. Deutlich zu erkennen ist die sich wöchentlich wiederholende Struktur in einer Zeitserie der Gesamtzählrate über den für die Analyse herangezogenen Zeitraum (Abbildung 38). Diese wird im Folgenden noch anhand der Aktivität einzelner Isotope genauer ausgewertet.

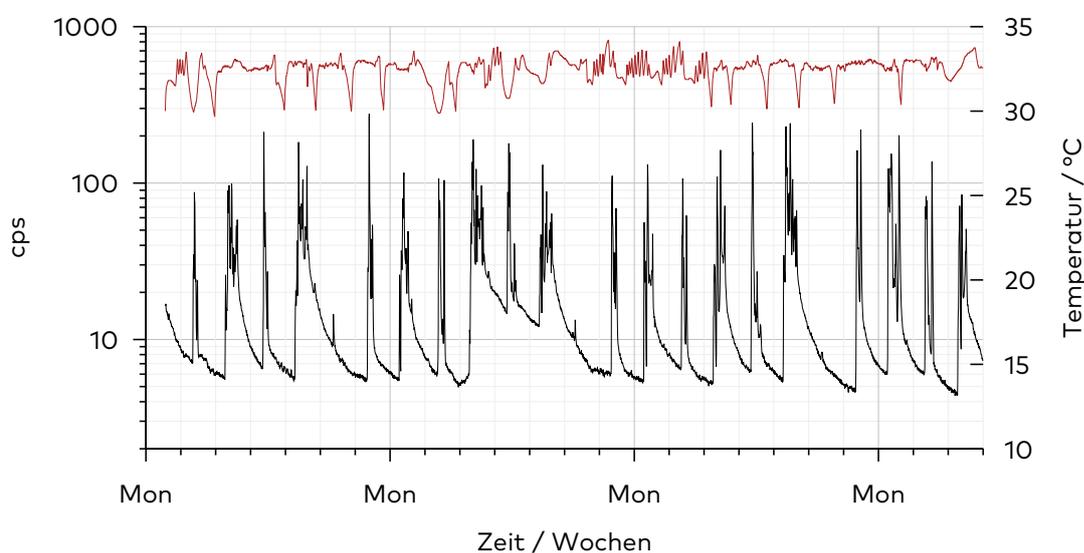


Abbildung 38 – Gesamtzählrate (unten) und Temperatur (oben) im für die Analyse gewählten Ausschnitt von dreieinhalb Wochen. Zu erkennen ist die sich wöchentlich wiederholende Struktur der Gesamtzählrate.

In Abbildung 39 ist die Variation der Zählraten von drei unterschiedlichen Wochen dargestellt. Die Betreiber geben an, montags, mittwochs und freitags zu produzieren und diese Tage stechen durch mehrstündig erhöhte Zählraten hervor. Aber auch in den dazwischen liegenden Tagen werden offensichtlich Arbeitsschritte durchgeführt, bei denen Radioaktivität mit der Abluft abgeführt wird. Ganz deutlich ist der Samstag als Ruhetag zu erkennen, was nicht weiter verwunderlich ist, da die hergestellten Isotope schnell verwendet werden müssen und eine übliche Arbeitswoche in medizinischen Einrichtungen montags beginnt und die benötigten Isotope dann zur Verwendung bereit stehen müssen.

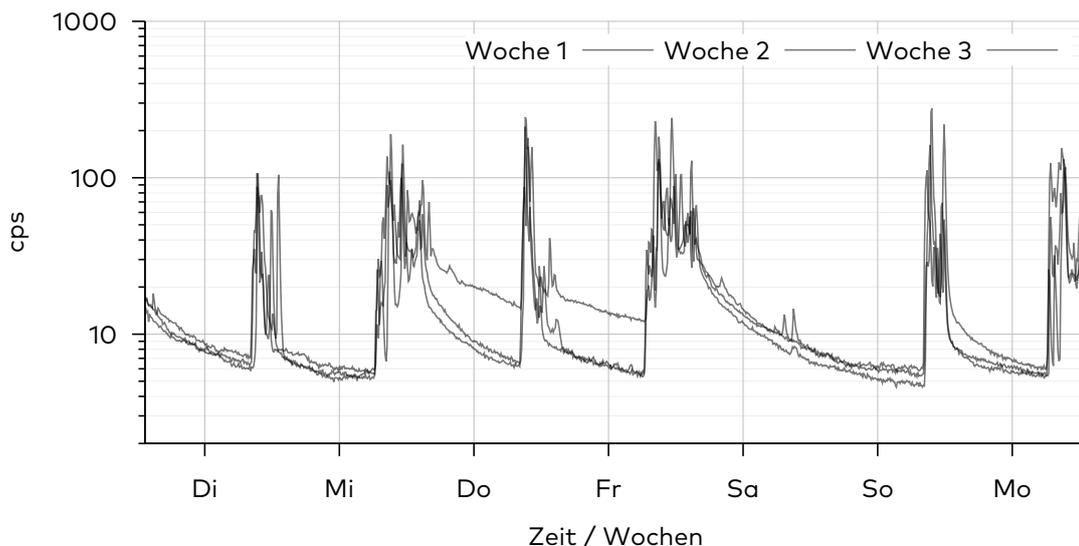


Abbildung 39 – Die Gesamtzählraten von drei aufeinanderfolgenden Wochen

4.1 Messdaten der Kampagne

Die Aktivitäten der betrachteten Isotope variieren im zeitlichen Verlauf über verschiedene Größenordnungen. Spektren mit einer kurzen Messzeit erhöhen die zeitliche Auflösung, aber unterliegen in einem höheren Maße statistischen Effekten, wodurch die Identifikation der Isotope erschwert oder unmöglich wird. Spektren mit langer Messzeit hingegen können eventuell kürzer vorhandene Aktivitäten nicht mehr auflösen. Das Summieren von Spektren erzeugt einen Kompromis aus diesen Effekten. In Abbildung 40 ist ein über die gesamte Messdauer aufsummiertes Spektrum aufgetragen mit einigen identifizierbaren Xenon- und Iod-Peaks. Natürlich sind die Spektren deutlich verrauschter, wenn nur über einen Zeitraum von Minuten bis Stunden summiert wird. Abbildung 41 zeigt eines der während der Kampagne aufgenommenen Spektren mit einer Messzeit von 10 min. Das Spektrum weist aufgrund der kurzen Messzeit und der damit einhergehenden, mit großen Unsicherheiten behafteten Zählstatistik ein deutliches Rauschen auf. So weisen die Peaks bei 81 keV, 249.77 keV und 526.57 keV eine statistische Unsicherheit von 3%, 9% bzw. 26% auf. In einem späteren Abschnitt sollen verschiedene Zeitfenster der Summation verglichen werden. Zunächst wurden jeweils die Spektren einer Stunde aufsummiert und die Aktivitäten durch das ‘peak’-Programm bestimmt.

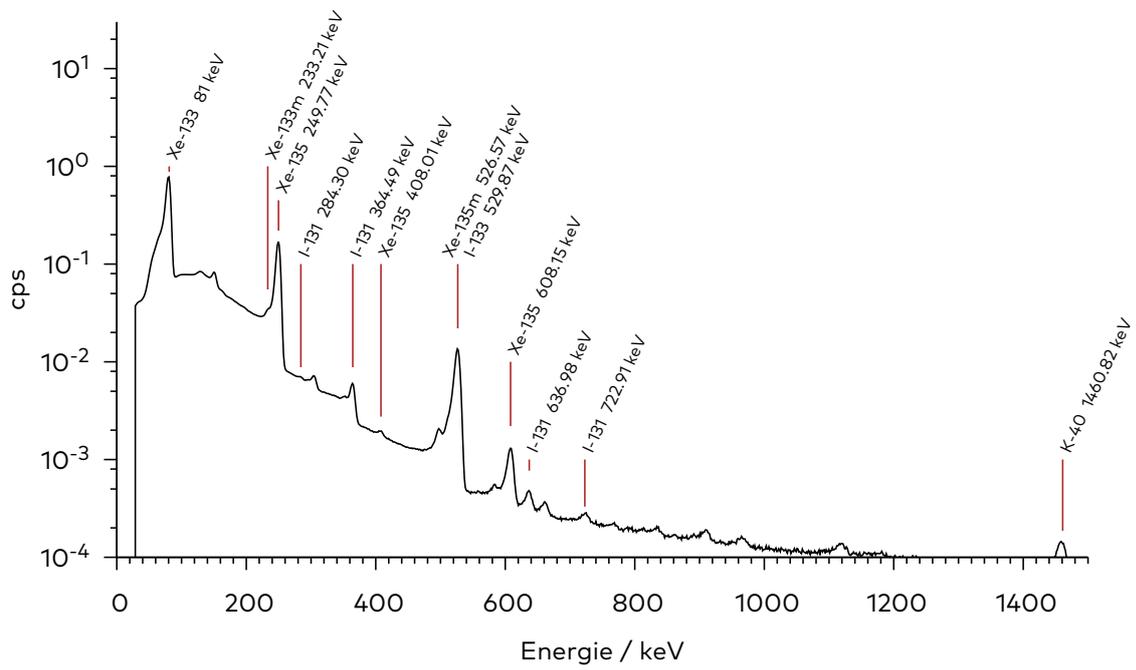


Abbildung 40 – Die mittlere Zählrate während der dreimonatigen Kampagne mit den wichtigsten Xe- und I-Gammaenergien

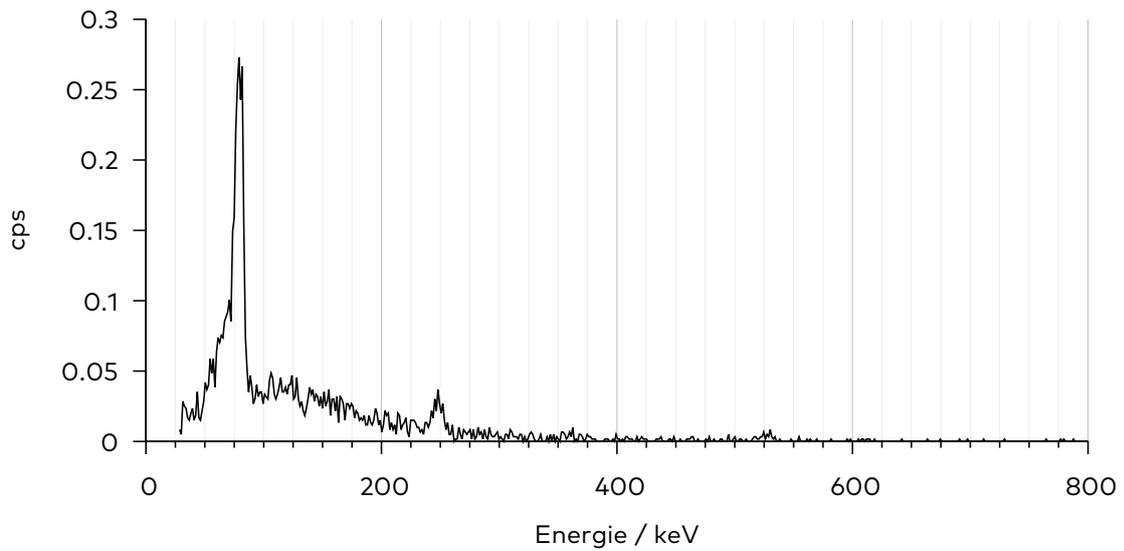


Abbildung 41 – Ein einzelnes 10 min-Spektrum aus der Messkampagne im IRE

4.2 Aktivitätskonzentrationen von Xenon und Iod und Vergleich mit der betreibereigenen Messeinrichtung

Durch die Summation und Analyse der Spektren lassen sich die Aktivitäten der Xenon- und Iod-Isotope auswerten und aggregieren. In Abbildung 42 sind für den Auswertungszeitraum von drei Wochen die Aktivitäten aufgetragen.

Zu dem Auswertungszeitraum von drei Wochen stehen die Daten des betreibereigenen Monitoring-Systems mit HPGe-Detektor des IRE zur Verfügung. Um einen Vergleich anzustellen, werden die gemessenen Aktivitäten für das Betreibersystem (*IRE*) und den Aufbau mit dem Cadmiumzinktellurid-Detektor (*CZT*) jeweils für einen Zeitraum von 48 h aufsummiert. Diese Werte werden verglichen und in den Abbildungen 43 bis 49 als Verhältnis aufgetragen, sofern genug Messpunkte für einen sinnvollen Vergleich vorhanden sind.

Die Betreiber geben in den Referenzdaten die Aktivitätskonzentrationen in Bq/m^3 in der Abluft an und diese wurden deshalb für die Darstellung so skaliert, dass die Gesamtaktivität von ^{135}Xe in beiden Messreihen identisch ist, um die Messreihen vergleichen zu können.

Die beiden metastabilen Isotope ^{131m}Xe und ^{133m}Xe werden von dem System mit dem CZT-Detektor nur sporadisch ermittelt.

Für ^{131m}Xe liegen keine Vergleichsdaten vor. Die stärksten γ -Linien von ^{131m}Xe liegen unter 35 keV und befinden sich unterhalb bzw. gerade noch innerhalb des vom Detektor aufgenommenen Energiespektrums und sind deshalb für die Analyse nicht geeignet. Die geringe Emissionswahrscheinlichkeit bei der einzigen höheren Energie von 163.93 keV gibt einen Hinweis darauf, warum ^{131m}Xe praktisch nicht beobachtet wurde.

Auch bei ^{133m}Xe liegen die wichtigsten Gammaenergien unter 35 keV. Die für die Analyse verwendete γ -Linie bei 233.21 keV besitzt eine geringe Emissionswahrscheinlichkeit von 10.6% und befindet sich nah an der 249.77 keV-Linie des ^{135}Xe , sodass der schwächere Peak des ^{133m}Xe von dem weitaus stärkeren des ^{135}Xe überlagert wird.

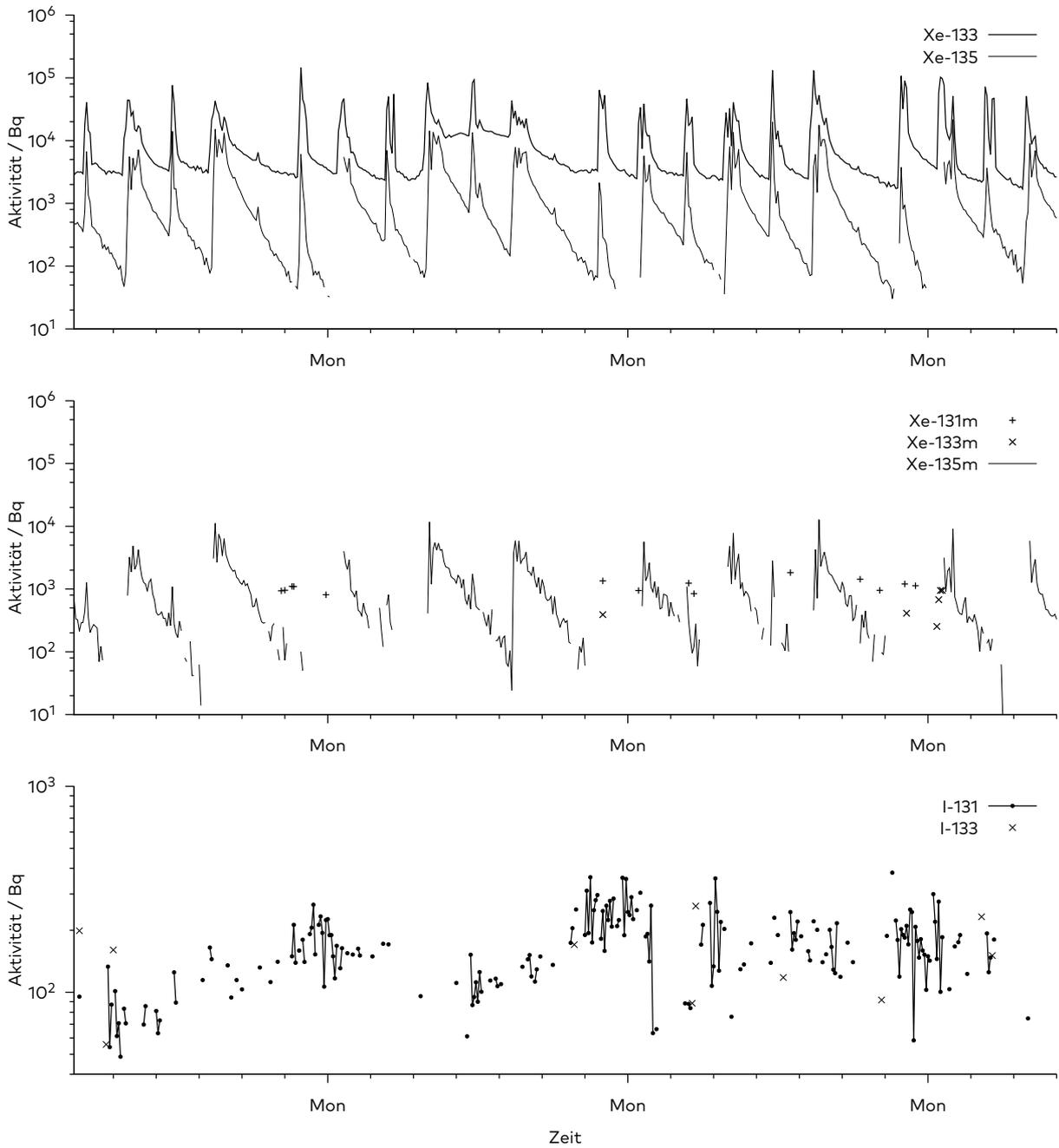


Abbildung 42 – Die aus den Messdaten des CZT-Detektors im IRE bestimmten Aktivitäten der betrachteten Xenon- und Iod-Isotope im Messzeitraum. Die Aktivitäten wurden aus jeweils für eine Stunde aufsummierten Spektren bestimmt.

Für die drei Xenonisotope ^{133}Xe , ^{135}Xe und ^{135m}Xe , die fast durchgehend nachgewiesen werden konnten, liegen Vergleichsdaten der Messeinrichtung des IRE vor. Die Messreihen sind jeweils in sehr guter Übereinstimmung. Das Verhältnis variiert jeweils mit einer Standardabweichung von 2-9% und der Faktor zwischen den beiden Messreihen ist für alle drei Isotope in etwa gleich (^{133}Xe : 0.94, ^{135m}Xe : 0.92, auf ^{135}Xe wurde skaliert).

Die Aktivkohlekartuschen werden nach Betreiberangaben einmal wöchentlich gewechselt, was sich sehr gut an der ^{131}I -Konzentration nachvollziehen lässt, da sich das Isotop in den Kartuschen anlagert und sich über sieben Tage nahezu linear in der Aktivität erhöht, um dann wieder auf den Ursprungswert zurückzufallen.

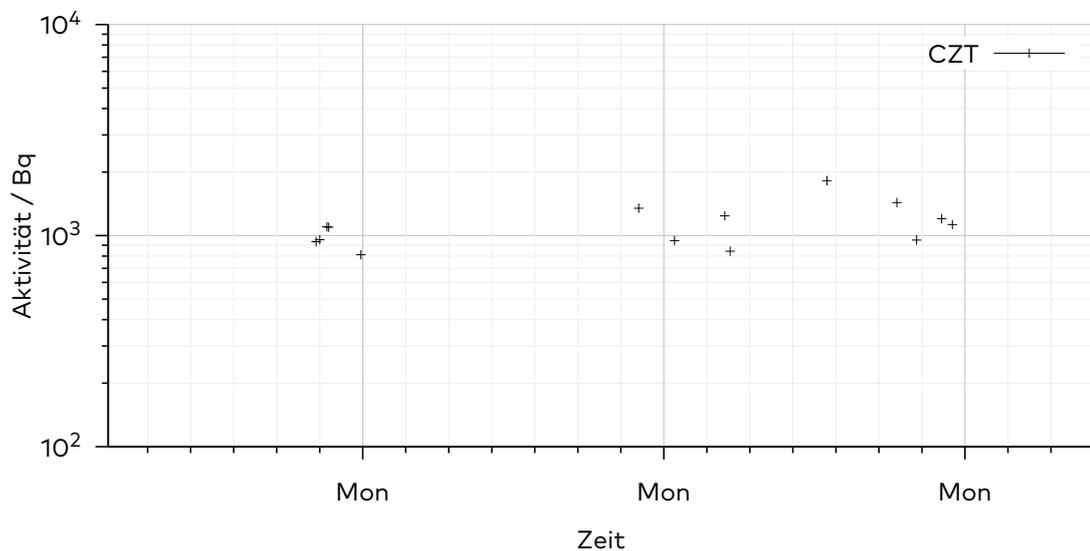


Abbildung 43 – Der zeitliche Verlauf der ^{131m}Xe -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde

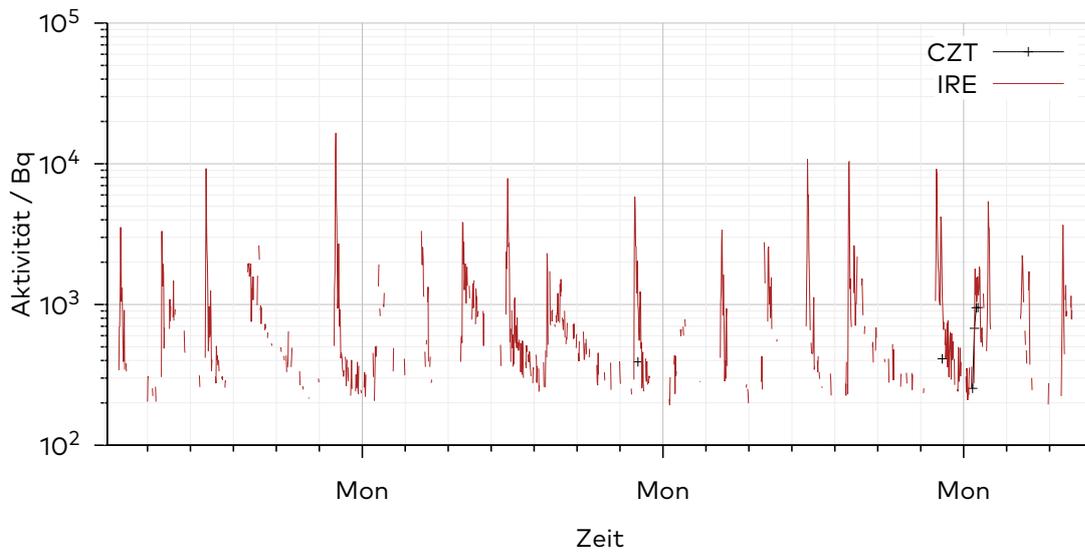


Abbildung 44 – Der zeitliche Verlauf der ^{133m}Xe -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde zusammen mit den Betreiberdaten. ^{133m}Xe wurde durch den CZT-Detektor praktisch nicht beobachtet.

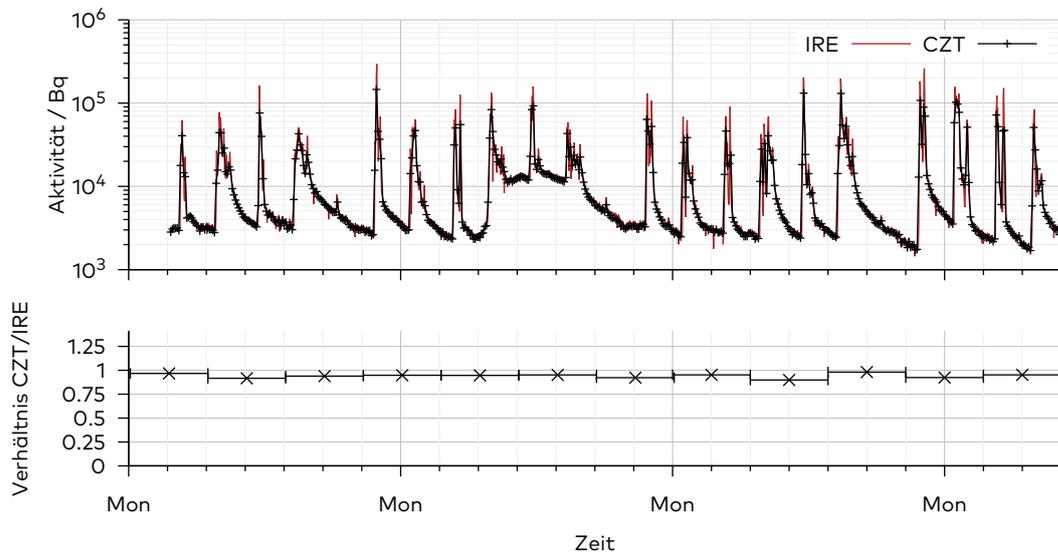


Abbildung 45 – Der zeitliche Verlauf der ^{133}Xe -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde zusammen mit den Betreiberdaten. Die Aktivitäten wurden für beide Messreihen für jeweils 48 h aufsummiert und das Verhältnis aufgetragen.

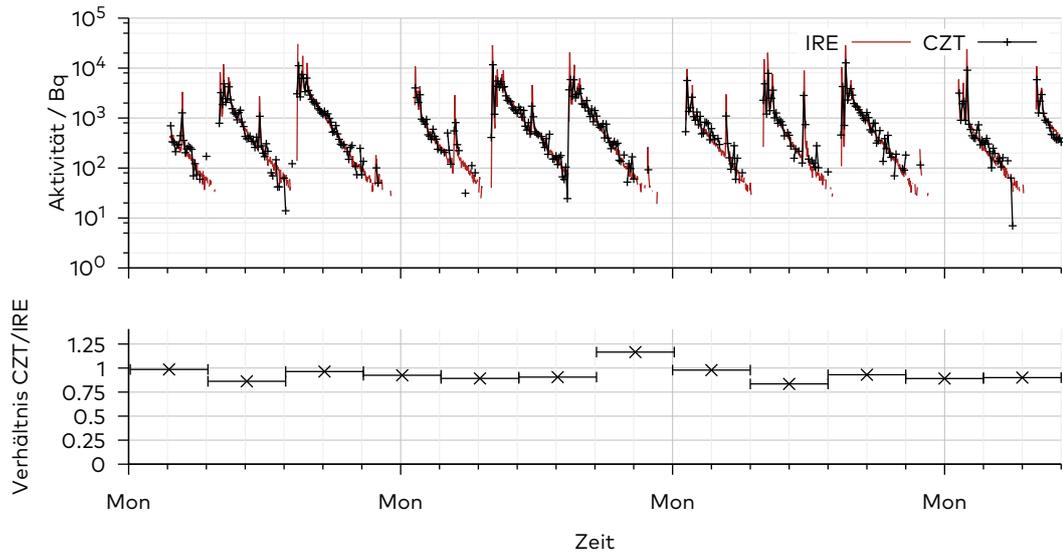


Abbildung 46 – Der zeitliche Verlauf der ^{135m}Xe -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde zusammen mit den Betreiberdaten. Die Aktivitäten wurden für beide Messreihen für jeweils 48h aufsummiert und das Verhältnis aufgetragen.

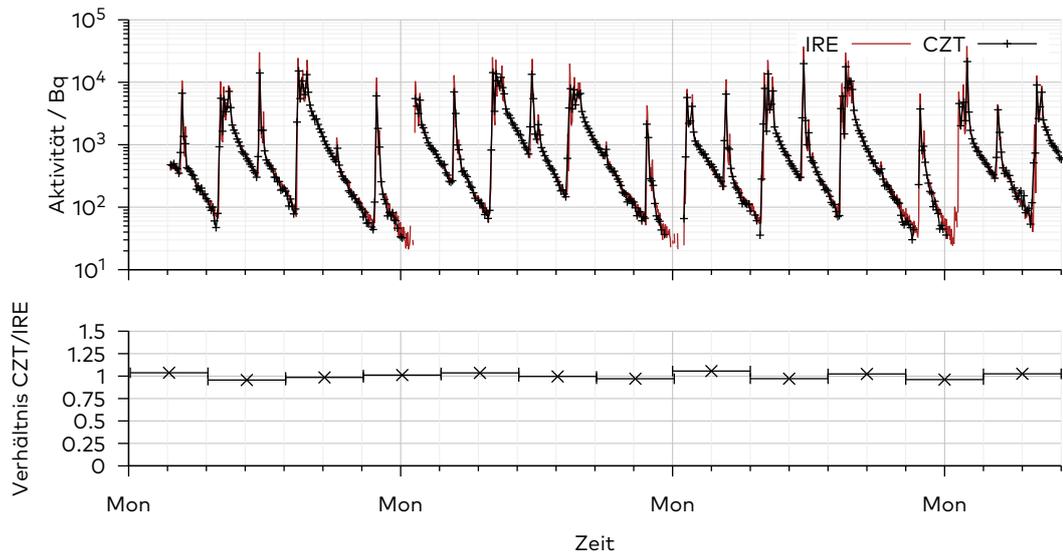


Abbildung 47 – Der zeitliche Verlauf der ^{135}Xe -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde zusammen mit den Betreiberdaten. Die Aktivitäten wurden für beide Messreihen für jeweils 48h aufsummiert und das Verhältnis aufgetragen.

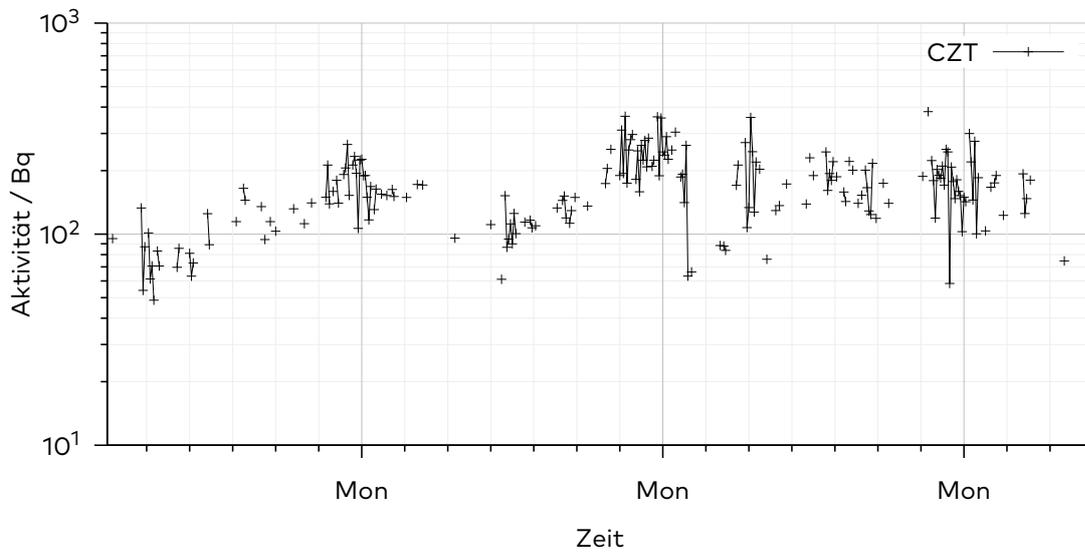


Abbildung 48 – Der zeitliche Verlauf der ^{131}I -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde. Für ^{131}I lagen keine Referenzdaten des Betreibers vor.

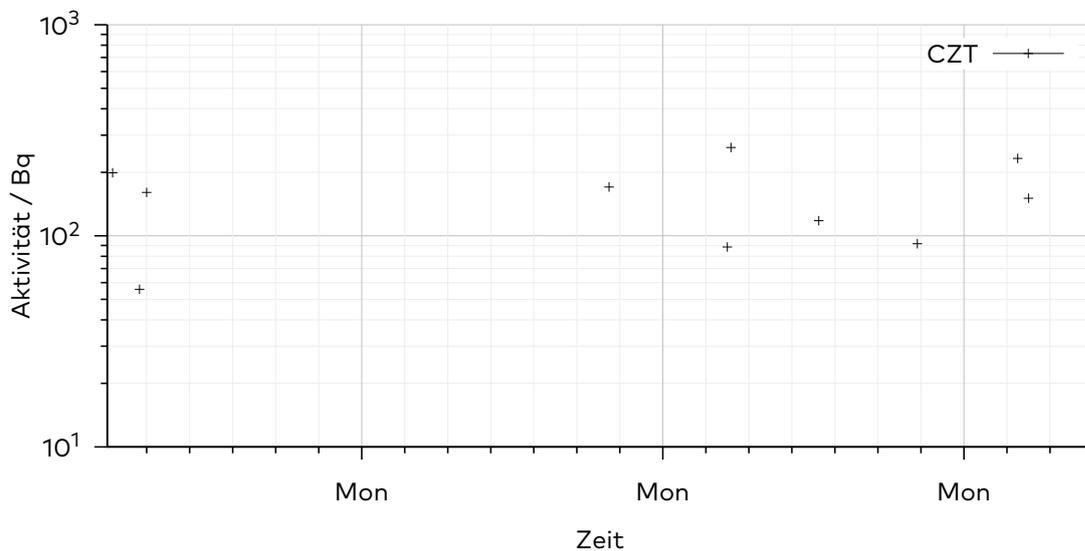


Abbildung 49 – Der zeitliche Verlauf der ^{133}I -Aktivität im IRE als Ergebnis der automatisierten Spektrenanalyse mit einer Summationszeit von einer Stunde. Das Isotop wurde nur sporadisch nachgewiesen. Für ^{133}I lagen keine Referenzdaten des Betreibers vor.

4.2.1 Nachweisgrenzen

Um zu unterscheiden, ob eine gemessene Aktivität tatsächlich zu einem Radionuklid gehört oder eine Messung des Nulleffektes darstellt, wird die Erkennungsgrenze der Messanordnung herangezogen. Die Nachweisgrenze dient dazu, die Eignung einer Messeinrichtung für eine gewünschte Empfindlichkeit festzustellen. Nach *KTA 1503.1 Überwachung der Ableitung gasförmiger und an Schwebstoffen gebundener radioaktiver Stoffe (Fassung 6/02)* lassen sich die Nachweis- und Erkennungsgrenze angeben als

$$\text{Nachweisgrenze } G_N = f \cdot k_N \cdot S \quad (11)$$

$$\text{Erkennungsgrenze } G_E = f \cdot k_E \cdot S \quad (12)$$

mit

$$S = \sqrt{\frac{2 \cdot b \cdot \bar{R}_0(E_\gamma)}{t_m}} \quad (13)$$

mit der Fußbreite einer Gammalinie b ($= 1.7 \cdot \text{FWHM}$) als Anzahl von Kanälen, der mittleren Zählrate des Nulleffektes pro Kanal $\bar{R}_0(E_\gamma)$, der Messdauer t_m , dem Kalibrierfaktor f (= Kehrwert des Ansprechvermögens) und den Faktoren für die statistische Sicherheit $k_N(=3.29)$ und $k_E(=1.645)$.

Da für die Messkampagne keine Untergrundmessung vorlag, musste der Nulleffekt aus den lokalen Minima der Zählrate über den gesamten Messzeitraum abgeschätzt werden. Dies bedeutet, dass auch die angegebenen Nachweis- und Erkennungsgrenzen nur eine Annäherung darstellen. Für die Rechnung wurde jeweils die stärkste Gammalinie der Isotope verwendet.

In Tabelle 6 sind die bestimmten Grenzen angegeben und in den Abbildungen 50 bis 55 sind die gemessenen Daten zusammen mit den Betreiberdaten und den berechneten Nachweis- und Erkennungsgrenzen dargestellt.

Die berechneten Grenzen sind in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen. Für Aktivitäten unterhalb der Erkennungsgrenze kann kein Wert mehr bestimmt werden.

	Xe-131m	Xe-133	Xe-133m	Xe-135	Xe-135m	I-131	I-133
E_γ	163.9	81	233.2	249.8	526.6	364.5	529.8
G_N/Bq	6703	389	1100	120	103	178	95
G_E/Bq	3351	195	550	60	52	89	48

Tabelle 6 – Nachweis- und Erkennungsgrenze für die betrachteten Xenon- und Iod-Isotope bei einer Messzeit von 1 h

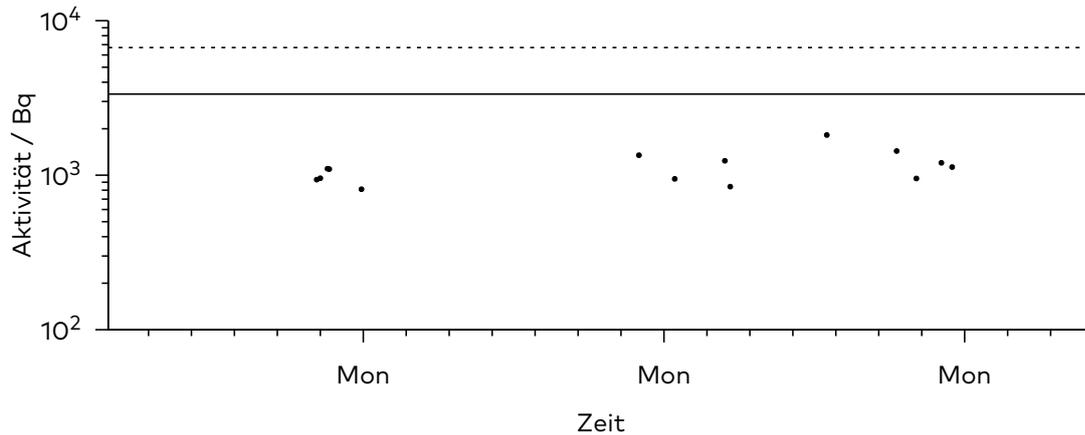


Abbildung 50 – Die gemessene ^{131m}Xe -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

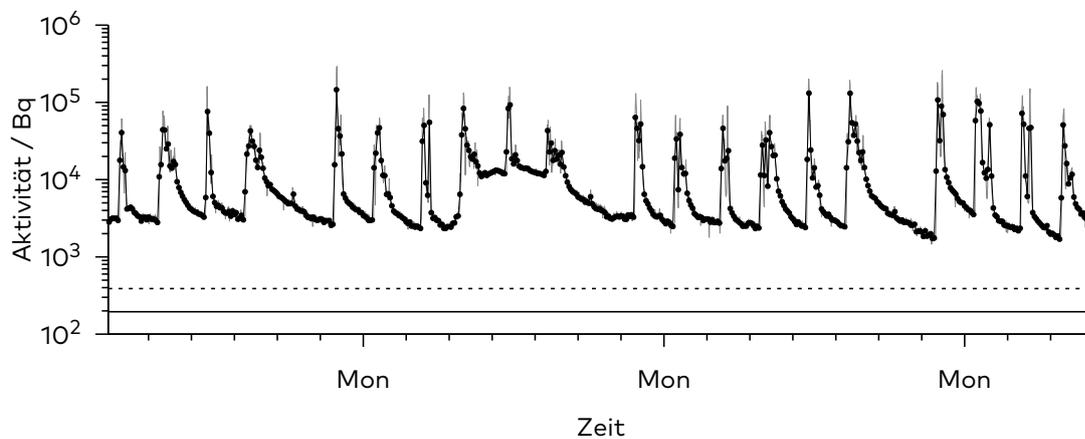


Abbildung 51 – Die gemessene ^{133}Xe -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

4.2.2 Vergleich verschiedener Zeitfenster

Die Summation von Spektren in 1 h-Fenstern ist zunächst eine willkürliche Wahl. Bei der Wahl des Zeitfensters sorgt eine längere Zeit für ein weniger verrauschtes Spektrum, in dem kurze Pulse verschwinden und insgesamt eine geringere zeitliche

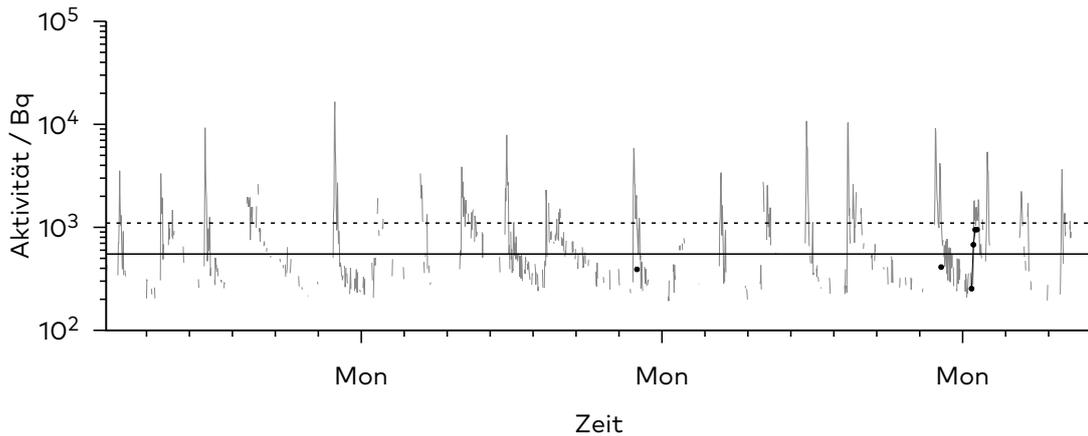


Abbildung 52 – Die gemessene ^{133m}Xe -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

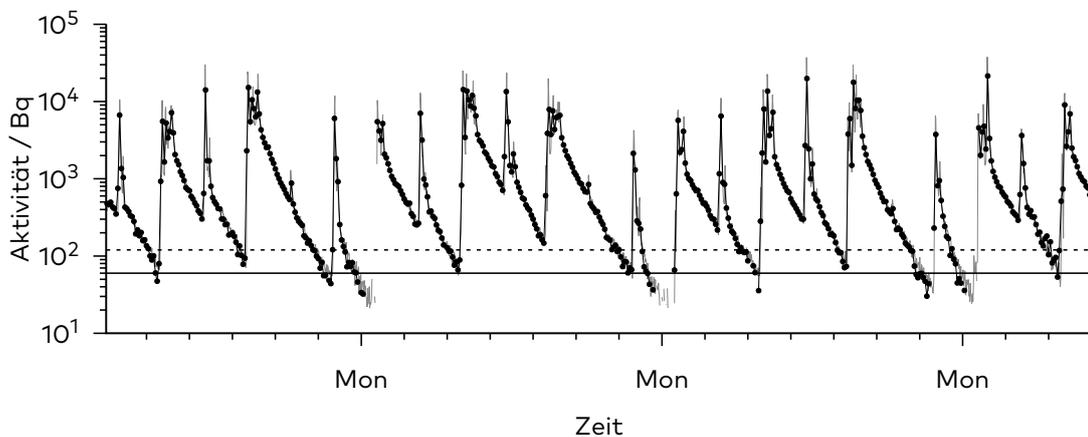


Abbildung 53 – Die gemessene ^{135}Xe -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

Auflösung erreicht wird. Bei zu kurzen Zeitfenstern hingegen sind gegenebenenfalls die Peakflächen gegenüber dem Untergrund nicht groß genug, um eine zuverlässige Analyse anzustellen. Die Wahl des Zeitfensters ist also eine Abwägung, die einen Kompromis mit sich bringt und stark von den vorliegenden Messwerten abhängt.

Für die Analyse wurden sechs verschiedene Summationszeiten getestet: 30 min, 1 h, 2 h, 3 h, 4 h und 6 h. Hierbei wurden die Verhältnisse der integralen Aktivitäten für die Isotope wie zuvor für jeweils 48 h bestimmt. Abbildung 56 zeigt für die verschiedenen Zeitfenster die mittleren Verhältnisse der Aktivitäten für die verschiedenen Isotope zusammen mit ihrer Standardabweichung als Fehlerbalken. Da die Messung möglichst zuverlässig sein soll, ist natürlich eine geringe Abweichung zwischen gemes-

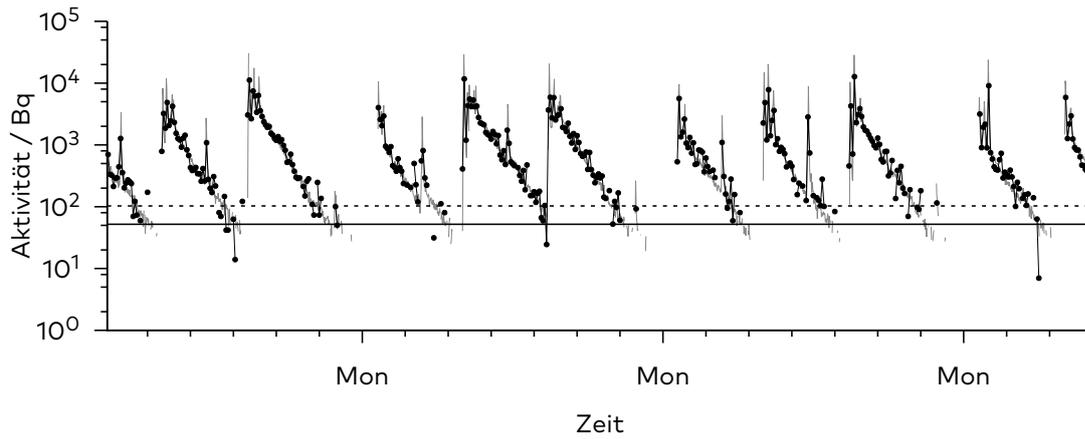


Abbildung 54 – Die gemessene ^{135m}Xe -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

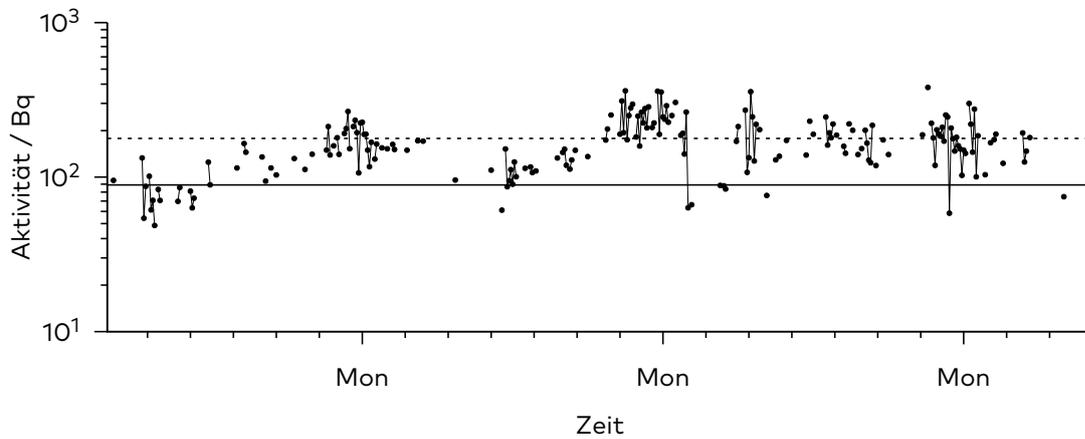


Abbildung 55 – Die gemessene ^{131}I -Aktivität im IRE (schwarz), die Referenzdaten (grau), die Nachweis- (gestrichelt) und Erkennungsgrenze (durchgezogen)

senem Wert und Referenz wünschenswert. In Abbildung 57 sind die Abweichungen abhängig vom gewählten Zeitfenster dargestellt.

^{133m}Xe kann wie zuvor beschrieben praktisch nicht nachgewiesen werden, während die Verhältnisse zwischen Betreiberdaten und gemessenen Aktivitäten für die anderen Xenonisotope für die verschiedenen Zeitfenster wenig variieren.

Betrachtet man die Standardabweichung (Abb. 57) der Verhältnisse zwischen gemessener Aktivität und Referenzwert, so lässt sich kein klarer Trend ausmachen. Die Standardabweichung des Verhältnisses zwischen gemessenen Aktivitäten und den Referenzdaten des Betreibers bewegen sich zwischen 2 und 14%.

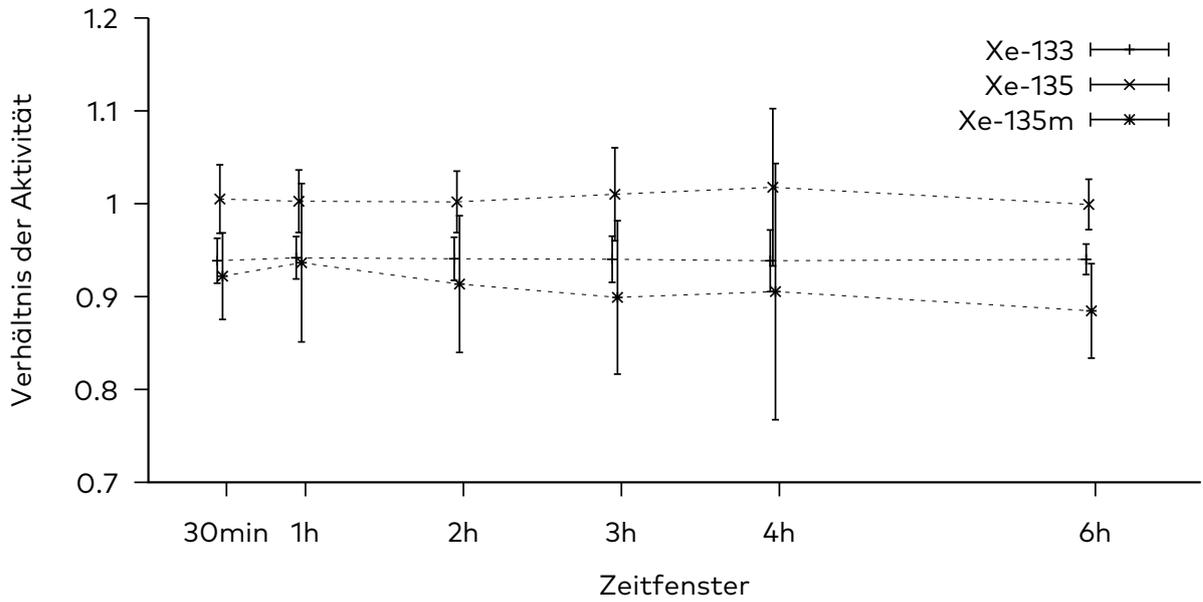


Abbildung 56 – Verhältnisse zwischen gemessener Aktivität und Referenzwert für verschiedene Zeitfenster

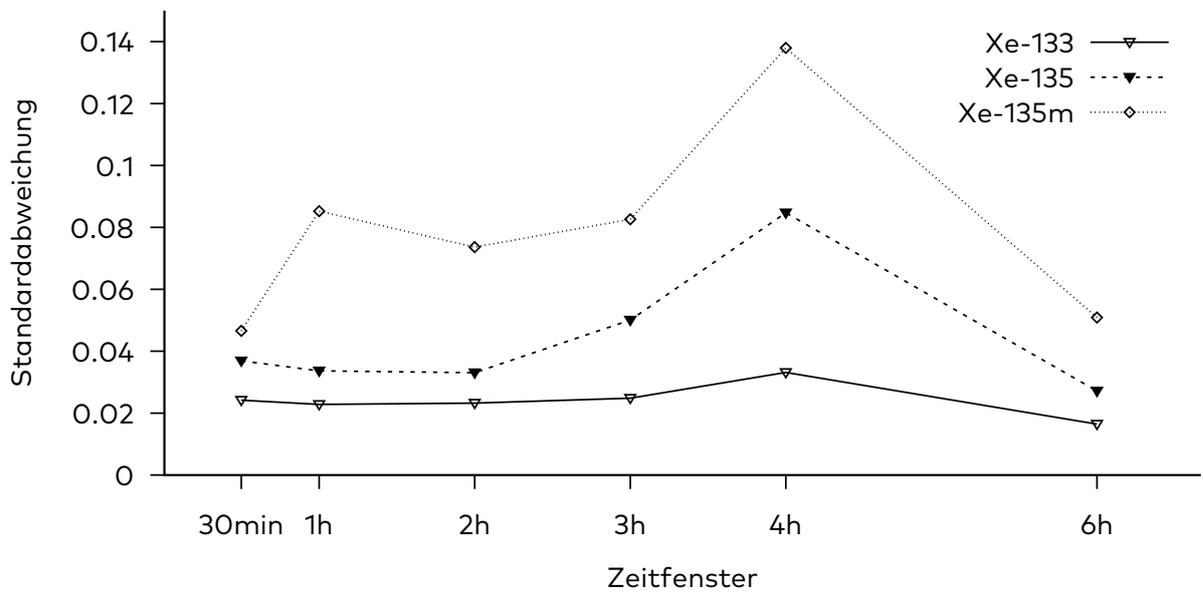


Abbildung 57 – Standardabweichung der Verhältnisse zwischen gemessener Aktivität und Referenzwert für verschiedene Zeitfenster

5 Zusammenfassung und Ausblick

Das internationale Messnetz (IMS) zur Überwachung des Kernwaffenteststopp-Vertrags verwendet u. a. die Analyse radioaktiver Stoffe in der Atmosphäre zum Nachweis von Kernwaffenexplosionen. Die größte Störung dieser Signale wird durch medizinische Isotopenfabriken hervorgerufen, die zwar nur an wenigen Standorten weltweit existieren, aber um Größenordnungen mehr Radioxenonisotope ausstoßen als Kernkraftwerke.

Cadmiumzinktellurid-Detektoren zeichnen sich insbesondere dadurch aus, dass sie bei Raumtemperatur betrieben werden können und in der Anschaffung vergleichsweise preiswert sind. Der Einsatz von CZT-Detektoren, die für die lokale Überwachung bestehender Quellen besonders geeignete Eigenschaften besitzen, könnte die Interpretierbarkeit der Messungen des IMS verbessern.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine kompakte Messeinrichtung mit einem CZT-Detektor konzipiert, aufgebaut und in der medizinischen Isotopenfabrik IRE in Belgien eingesetzt.

Entscheidend für die Gammaspektrometrie ist die genaue Kenntnis über die Detektoreigenschaften und die verwendeten Messgeometrien. Zur Kalibrierung der Ansprache des Detektors wurden verschiedene Referenzisotope verwendet und aus den Messungen konnte das Vollenergieansprechvermögen bestimmt werden.

Mit dieser Kalibrierung konnte rechnerisch die Effizienz des Detektors in der Messanordnung im IRE bestimmt werden, um quantitative Aussagen treffen zu können. Zusätzlich wurde mit einem Nachbau der Messanordnung der Kampagne die berechnete Effizienz experimentell überprüft und bestätigt.

Über einen Zeitraum von drei Monaten wurden im IRE kontinuierlich Messdaten aufgenommen. Für die ersten dreieinhalb Wochen lagen die Messdaten des Betreibers vor und es wurde für diesen Zeitraum eine Analyse der gewonnenen Daten angestellt und mit den betriebsübigen Überwachungswerten verglichen. Hierzu wurde für diese Arbeit eine Software mit eigener Datenbank entwickelt, die die Spektren katalogisieren, summieren und analysieren kann und damit die Auswertungsschritte teilweise automatisiert. Dies ermöglicht es, aus mehreren Tausend Spektren zeitlich aufgelöste Aktivitätsverläufe zu bestimmen und miteinander zu vergleichen.

Die Xenon-Isotope ^{133}Xe , ^{135}Xe und ^{135m}Xe konnten zuverlässig automatisiert identifiziert und quantifiziert werden und sind in guter Übereinstimmung mit den Betreiberdaten. Die für die Überwachung des CTBT u. a. verwendeten Isotope ^{131m}Xe und ^{133m}Xe konnten nicht nachgewiesen werden. Die Anlagerung von ^{131}I in der Messkartusche der Betreiberanlage konnte gut nachvollzogen werden.

Es konnte also mit dieser Messkampagne gezeigt werden, dass der CZT-Detektor ‘MicroSpec’ in der Lage ist, zwei der vier für die atmosphärische Überwachung des CTBT genutzten Xenonisotope zuverlässig zu überwachen. Dabei wurde ein Aufbau verwendet, der äußerst kompakt und kostengünstig ist und ohne weiteres neben einem bestehenden Monitoringsystem eingesetzt werden kann.

Für den Einsatz zur Überwachung von Kernkraftwerken scheint der Aufbau in seiner jetzigen Form nicht geeignet, da in der Abluft dieser Anlagen wesentlich geringere Aktivitätskonzentrationen vorherrschen als in der medizinischer Isotopenfabriken.

Im Rahmen weiterer Forschung wäre es wünschenswert zu untersuchen, welchen Einfluss andere Messaufbauten, Detektormodelle und Analysemethoden auf die Ergebnisse haben.

Zur Verbesserung der Messungen könnten mehrere CZT-Detektoren parallel verwendet werden, um geringere Nachweisgrenzen zu erzielen [Geh10], oder in einer Beta-Gamma-Koinzidenzkonfiguration eingesetzt werden [RFB17], um die Unterscheidung und Quantifizierung der Radioisotope zu verbessern.

Auch ein eigenes Messvolumen zusammen mit einer geringeren Abschirmung könnte die Effizienz des Systems deutlich steigern.

Insgesamt sind die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse ein erfreulicher Schritt hin zu einer besseren Überwachung der zivilen Quellen von Radioxenon in der Atmosphäre und damit einer Verbesserung der Zuverlässigkeit des weltweiten Messnetzes zur Überwachung des Kernwaffenteststopp-Vertrags.

6 Literaturverzeichnis

- [BCD⁺04] BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; BROWNE, E. ; CHECHEV, V. ; KUZMENKO, N. ; HELMER, R. ; NICHOLS, A. ; SCHÖNFELD, E. ; DERSCH, R.: *Monographie BIPM-5. Bd. 2: Table of Radionuclides.* Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France : Bureau International des Poids et Mesures, 2004 http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol2.pdf. – ISBN 92–822–2207–1
- [BCD⁺06] BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; BROWNE, E. ; BAGLIN, C. ; CHECHEV, V. ; KUZMENKO, N. ; HELMER, R. ; KONDEV, F. ; MACMAHON, D. ; LEE, K.B.: *Monographie BIPM-5. Bd. 3: Table of Radionuclides.* Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France : Bureau International des Poids et Mesures, 2006 http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol3.pdf. – ISBN 92–822–2218–7
- [BCD⁺08] BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; BROWNE, E. ; CHECHEV, V. ; KUZMENKO, N. ; KONDEV, F. ; LUCA, A. ; GALÁN, M. ; PEARCE, A. ; HUANG, X.: *Monographie BIPM-5. Bd. 4: Table of Radionuclides.* Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France : Bureau International des Poids et Mesures, 2008 http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol4.pdf. – ISBN 92–822–2230–6
- [BCD⁺10] BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; MOUGEOT, X. ; BROWNE, E. ; CHECHEV, V. ; KUZMENKO, N. ; KONDEV, F. ; LUCA, A. ; GALÁN, M. ; NICHOLS, A.L. ; ARINC, A. ; HUANG, X.: *Monographie BIPM-5. Bd. 5: Table of Radionuclides.* Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France : Bureau International des Poids et Mesures, 2010 http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol5.pdf. – ISBN 92–822–2234–8

- [BCD⁺16] BÉ, M.-M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; KELLETT, M.A. ; MOUGEOT, X. ; ARINC, A. ; CHECHEV, V.P. ; KUZMENKO, N.K. ; KIBÉDI, T. ; LUCA, A. ; NICHOLS, A.L.: *Monographie BIPM-5*. Bd. 8: *Table of Radionuclides*. Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France : Bureau International des Poids et Mesures, 2016 http://www.bipm.org/utils/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol18.pdf. – ISBN 978–92–822–2264–5
- [BHS⁺10] BERGER, M. J. ; HUBBELL, J. H. ; SELTZER, S. M. ; CHANG, J. ; COURSEY, J. S. ; SUKUMAR, R. ; ZUCKER, D. S. ; OLSEN: XCOM: Photon Cross Sections Database. In: *NIST Standard Reference Database 8 (XGAM)* (2010)
- [BKE⁺13] BOWYER, Theodore W. ; KEPHART, Rosara ; ESLINGER, Paul W. ; FRIESE, Judah I. ; MILEY, Harry S. ; SAEY, Paul R.: Maximum reasonable radioxenon releases from medical isotope production facilities and their effect on monitoring nuclear explosions. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 115 (2013), S. 192–200. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2012.07.018>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2012.07.018
- [BS93] BHANDAL, G.S. ; SINGH, K.: Study of the mass attenuation coefficients and effective atomic numbers in some multielement materials. In: *Applied Radiation and Isotopes* 44 (1993), Nr. 6, S. 929 – 939. [http://dx.doi.org/10.1016/0969-8043\(93\)90048-F](http://dx.doi.org/10.1016/0969-8043(93)90048-F). – DOI 10.1016/0969–8043(93)90048–F
- [Buz08] BUZUG, Thorsten M.: *Computed Tomography - From Photon Statistics to Modern Cone-Beam CT*. Berlin, Heidelberg : Springer, 2008. – ISBN 978–3–540–39408–2
- [CTBa] CTBTO: *CTBTO*. <https://www.ctbto.org>,
- [CTBb] CTBTO: *OVERVIEW: DPRK SEPT. 2016 ANNOUNCED TEST*. <https://www.ctbto.org/the-treaty/developments-after-1996/2016-sept-dprk-announced-nuclear-test/>,

- [Dec13] DECONNINCK, C. B.De L. B.De Lellis: High resolution monitoring system for IRE stack releases. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 125 (2013), S. 61–68. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.01.016>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2013.01.016
- [DSB⁺14] DOLL, Charles G. ; SORENSEN, Christina M. ; BOWYER, Theodore W. ; FRIESE, Judah I. ; HAYES, James C. ; HOFFMANN, Emmy ; KEPHART, Rosara: Abatement of xenon and iodine emissions from medical isotope production facilities. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 130 (2014), S. 33–43. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.12.006>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2013.12.006
- [EBA⁺16] ESLINGER, Paul W. ; BOWYER, Ted W. ; ACHIM, Pascal ; CHAI, Tianfeng ; DECONNINCK, Benoit ; FREEMAN, Katie ; GENEROSO, Sylvia ; HAYES, Philip ; HEIDMANN, Verena ; HOFFMAN, Ian ; KIJIMA, Yuichi ; KRYSTA, Monika ; MALO, Alain ; MAURER, Christian ; NGAN, Fantine ; ROBINS, Peter ; ROSS, J. O. ; SAUNIER, Olivier ; SCHLOSSER, Clemens ; SCHÖPPNER, Michael ; SCHROM, Brian T. ; SEIBERT, Petra ; STEIN, Ariel F. ; UNGAR, Kurt ; YI, Jing: International challenge to predict the impact of radioxenon releases from medical isotope production on a comprehensive nuclear test ban treaty sampling station. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 157 (2016), S. 41 – 51. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.03.001>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2016.03.001. – ISSN 0265–931X
- [ECD⁺15] ESLINGER, Paul W. ; CAMERON, Ian M. ; DUMAIS, Johannes R. ; IMARDJOKO, Yudi ; MARSOEM, Pujadi ; MCINTYRE, Justin I. ; MILLEY, Harry S. ; STOEHLKER, Ulrich ; WIDODO, Susilo ; WOODS, Vincent T.: Source term estimates of radioxenon released from the Ba-Tek medical isotope production facility using external measured air concentrations. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 148 (2015), S. 10–15. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.05.026>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2015.05.026

- [FSG82] F. S. GOULDING, D. A. L.: Signal Processing for Semiconductor Detectors. In: *IEEE Transactions on Nuclear Science* 29 (1982), jun, Nr. 3, S. 1125–1141
- [Geh10] GEHRE, D.: On the use of CPG-CZT detectors in the COBRA experiment. In: *IEEE Nuclear Science Symposium Medical Imaging Conference*, 2010. – ISSN 1082–3654, S. 3694–3697
- [Gil11] GILMORE, Gordon: *Practical Gamma-ray Spectroscopy*. New York : John Wiley & Sons, 2011. – ISBN 978–1–119–96469–8
- [jen11] *JENDL FP Fission Yields Data File 2011 (FPY-2011)*. <http://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig>, 2011
- [Jr.06] JR., James (Jim) E. L.: *CATALOG OF KNOWN AND PUTATIVE NUCLEAR EXPLOSIONS FROM UNCLASSIFIED SOURCES*. <http://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig>, 2006. – LAST UPDATE 2006 OCT09
- [JSK⁺15] JORDAN, Amy B. ; STAUFFER, Philip H. ; KNIGHT, Earl E. ; ROUGIER, Esteban ; ANDERSON, Dale N.: Radionuclide Gas Transport through Nuclear Explosion-Generated Fracture Networks. In: *Scientific Reports* 5 (2015), Dec, S. 18383 EP –. <http://dx.doi.org/10.1038/srep18383>. – DOI 10.1038/srep18383
- [KAB⁺10] KALINOWSKI, Martin B. ; AXELSSON, Anders ; BEAN, Marc ; BLANCHARD, Xavier ; BOWYER, Theodore W. ; BRACHET, Guy ; HEBEL, Simon ; MCINTYRE, Justin I. ; PETERS, Jana ; PISTNER, Christoph et a.: Discrimination of Nuclear Explosions against Civilian Sources Based on Atmospheric Xenon Isotopic Activity Ratios. In: *Pure and Applied Geophysics* 167 (2010), Nr. 4-5, S. 517–539. <http://dx.doi.org/10.1007/s00024-009-0032-1>. – DOI 10.1007/s00024-009-0032-1
- [KGH13] KALINOWSKI, Martin B. ; GROSCH, Martina ; HEBEL, Simon: Global Xenon-133 Emission Inventory Caused by Medical Isotope Production

- and Derived from the Worldwide Technetium-99m Demand. In: *Pure and Applied Geophysics* 171 (2013), Nr. 3-5, S. 707–716. <http://dx.doi.org/10.1007/s00024-013-0687-5>. – DOI 10.1007/s00024-013-0687-5
- [KP06] KALINOWSKI, Martin B. ; PISTNER, Christoph: Isotopic signature of atmospheric xenon released from light water reactors. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 88 (2006), Nr. 3, S. 215 – 235. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2006.02.003>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2006.02.003
- [MAC⁺15] MCINTYRE, Justin I. ; AGUSBUDIMAN, Agung ; CAMERON, Ian M. ; DUMAIS, Johannes R. ; ESLINGER, Paul W. ; GHEDDOU, Abdelhakim ; KHRUSTALEV, Kirill ; MARSOEM, Pujadi ; MILEY, Harry S. ; NIKKINEN, Mika et a.: Real-time stack monitoring at the BaTek medical isotope production facility. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 308 (2015), Nr. 1, S. 311–316. <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-015-4348-2>. – DOI 10.1007/s10967-015-4348-2
- [Mar67] MARISCOTTI, M.A.: A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis. In: *Nuclear Instruments and Methods* 50 (1967), Nr. 2, S. 309 – 320. [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(67\)90058-4](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(67)90058-4). – DOI 10.1016/0029-554X(67)90058-4. – ISSN 0029-554X
- [Nat16] NATIONAL ACADEMIES OF SCIENCES, ENGINEERING, AND MEDICINE: *Molybdenum-99 for Medical Imaging*. Washington, DC : The National Academies Press, 2016. <http://dx.doi.org/10.17226/23563>. <http://dx.doi.org/10.17226/23563>
- [nuc] *Nuclear Data for Safeguards*. <https://www-nds.iaea.org/sgnucdat/c3.htm>
- [OLS⁺93] ORLIC, I. ; LOH, K. K. ; SOW, C. H. ; TANG, S. M. ; THONG, P.: Parametrization of the total photon mass attenuation coefficients in the energy range 0.1-1000 keV. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics*

- Research B* 74 (1993), Mai, S. 352–361. [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(93\)95964-7](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(93)95964-7). – DOI 10.1016/0168-583X(93)95964-7
- [RFB17] RANJBAR, Lily ; FARSONI, Abi T. ; BECKER, Eric M.: 135Xe measurements with a two-element CZT-based radioxenon detector for nuclear explosion monitoring. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 169–170 (2017), S. 221 – 228. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.12.003>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2016.12.003. – ISSN 0265–931X
- [Sae05] SAEY, L.-E. P.R.J.De G. P.R.J.De Geer: Notes on radioxenon measurements for CTBT verification purposes. In: *Applied Radiation and Isotopes* 63 (2005), Nr. 5-6, S. 765–773. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2005.05.035>. – DOI 10.1016/j.apradiso.2005.05.035
- [Sae09] SAEY, Paul R.: The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background. In: *Journal of Environmental Radioactivity* 100 (2009), Nr. 5, S. 396–406. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.01.004>. – DOI 10.1016/j.jenvrad.2009.01.004
- [SBR10] SAEY, Paul R. ; BOWYER, Theodore W. ; RINGBOM, Anders: Isotopic noble gas signatures released from medical isotope production facilities. Simulations and measurements. In: *Applied Radiation and Isotopes* 68 (2010), Nr. 9, S. 1846–1854. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2010.04.014>. – DOI 10.1016/j.apradiso.2010.04.014
- [SRB+13] SAEY, P. R. J. ; RINGBOM, A. ; BOWYER, T. W. ; ZÄHRINGER, M. ; AUER, M. ; FAANHOF, A. ; LABUSCHAGNE, C. ; AL-RASHIDI, M. S. ; TIPPAWAN, U. ; VERBOOMEN, B.: Worldwide measurements of radioxenon background near isotope production facilities, a nuclear power plant and at remote sites: the “EU/JA-II” Project. In: *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 296 (2013), Nr. 2, S. 1133–1142. <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-012-2025-2>. – DOI 10.1007/s10967-012-2025-2
- [STY+01] SCHLESINGER, T.E ; TONEY, J.E ; YOON, H ; LEE, E.Y ; BRUNETT, B.A ; FRANKS, L ; JAMES, R.B: Cadmium zinc telluride and its use as a nu-

clear radiation detector material. In: *Materials Science and Engineering: R: Reports* 32 (2001), Nr. 4–5, S. 103 – 189. [http://dx.doi.org/10.1016/S0927-796X\(01\)00027-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0927-796X(01)00027-4). – DOI 10.1016/S0927-796X(01)00027-4

[Sze04] SZELES, Csaba: CdZnTe and CdTe materials for X-ray and gamma ray radiation detector applications. In: *physica status solidi (b)* 241 (2004), Nr. 3, S. 783–790. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.200304296>. – DOI 10.1002/pssb.200304296

[Tab] *Table of Radionuclides*. Bd. 9 http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm

Abbildungsverzeichnis

1	Weltweite Nuklearwaffentests	2
2	Geplante und bestehende Messstationen des IMS	3
3	Kalinowski-Plot	8
4	Standorte der ⁹⁹ Mo-Versorger und Reaktoren	10
5	⁹⁹ Mo Zerfallskette	12
6	Massenhäufigkeitsverteilung der Spaltprodukte von ²³⁵ U	13
7	Diagramme des Photoeffekts und der Comptonstreuung	16
8	Der Absorptionskoeffizient von Cadmiumzinktellurid	17
9	¹³⁷ Cs-Spektrum (CZT Detektor)	18
10	Schema eines p-n-Übergangs im Halbleiter	19
11	Grundlegendes Funktionsprinzip der Elektronik eines Gammaspektrometrie-Systems	20
12	¹³⁷ Cs-Spektrum (CZT-, NaI- und HPGe-Detektor)	23
13	Peaksuche nach Mariscotti	24
14	Peaks eines Beispielspektrums	25

15	Uran-Erz-Spektrum (CZT Detektor)	27
16	Halbwertsbreite des CZT-Detektors	27
17	^{133}Ba -Spektrum (5 cm) und ^{152}Eu -Spektrum (10 cm) mit dem linearen Fit der Energie-Kanal-Zuordnung	28
18	^{133}Ba -Spektrum	29
19	^{152}Eu -Spektrum	29
20	Ansprechvermögen des CZT-Detektors	30
21	Bauteile des Messaufbaus der Kampagne, Foto und Schema	32
22	Messaufbau während der Kampagne	33
23	Messaufbau während der Kampagne	34
24	Die modellierten Absorptionskoeffizienten der im Messaufbau vorhandenen Materialien	36
25	Die Transmission beim Durchgang durch die verschiedenen Materialien des Messaufbaus für unterschiedliche Photonenenergien	37
26	Die Transmission des gesamten Messaufbaus und der verschiedenen Bestandteile.	37
27	Effizienz des CZT-Detektors für eine Punktquelle	38
28	Modelliertes Vollenergieansprechvermögen des Messaufbaus im IRE .	39
29	Schematische Darstellung des IRE-Nachbaus	39
30	Spektrum der in der ersten Messreihe im IRE-Nachbau eingebauten Punktquellen	40
31	Absolute Effizienz des IRE-Nachbaus	41
32	Nullmessung des IRE-Nachbaus	41
33	Vergleich der WinSPEC-Betreibersoftware und dem Linux-Treiber für den MicroSpec-Detektor	42
34	Schematische Darstellung der Schritte der Datenverarbeitung	43
35	Künstliches Spektrum und von 'peak' angefittete Peaks	44

36	Beispiel für die automatisierte Auswertung eines 1 h-Spektrums	45
37	Software zur Vermessung von Peakflächen	45
38	Gesamtzählrate während der Kampagne	46
39	Gesamtzählraten von drei aufeinanderfolgenden Wochen im IRE	47
40	Mittlere Zählrate während der dreimonatigen Kampagne	48
41	Ein einzelnes 10 min-Spektrum aus der Messkampagne im IRE	48
42	Aus den Messdaten des CZT-Detektors im IRE bestimmten Aktivitäten der betrachteten Xenon- und Iod-Isotope im Messzeitraum	50
43	^{131m}Xe -Aktivität im IRE	51
44	^{133m}Xe -Aktivität im IRE	52
45	^{133}Xe -Aktivität im IRE	52
46	^{135m}Xe -Aktivität im IRE	53
47	^{135}Xe -Aktivität im IRE	53
48	^{131}I -Aktivität im IRE	54
49	^{133}I -Aktivität im IRE	54
50	^{131m}Xe -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	56
51	^{133}Xe -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	56
52	^{133m}Xe -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	57
53	^{135}Xe -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	57
54	^{135m}Xe -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	58
55	^{131}I -Aktivität im IRE mit Nachweis- und Erkennungsgrenze	58
56	Verhältnisse zwischen gemessener Aktivität und Referenzwert für verschiedene Zeitfenster	59
57	Standardabweichung der Verhältnisse zwischen gemessener Aktivität und Referenzwert für verschiedene Zeitfenster	59
A1	Schema der Messanordnung während der Kampagne, Draufsicht	II
A2	Schema der Messanordnung während der Kampagne, Seitenansicht	III

Tabellenverzeichnis

1	Die Spaltausbeute einiger Isotope von Interesse	6
2	Die wichtigsten γ -Zerfallsenergien der Xenon-Isotope	7
3	Parameter von für die Gammaskpektrometrie geeigneten Detektormaterialien	23
4	Auflösung und Energiebereich verschiedener Niedrigenergie-Gammadetektoren	23
5	γ -Zerfallsenergien von ^{133}Ba , ^{152}Eu , ^{241}Am und ^{137}Cs	30
6	Nachweis- und Erkennungsgrenze für die betrachteten Xenon- und Iod-Isotope bei einer Messzeit von 1 h	56

7 Anhang

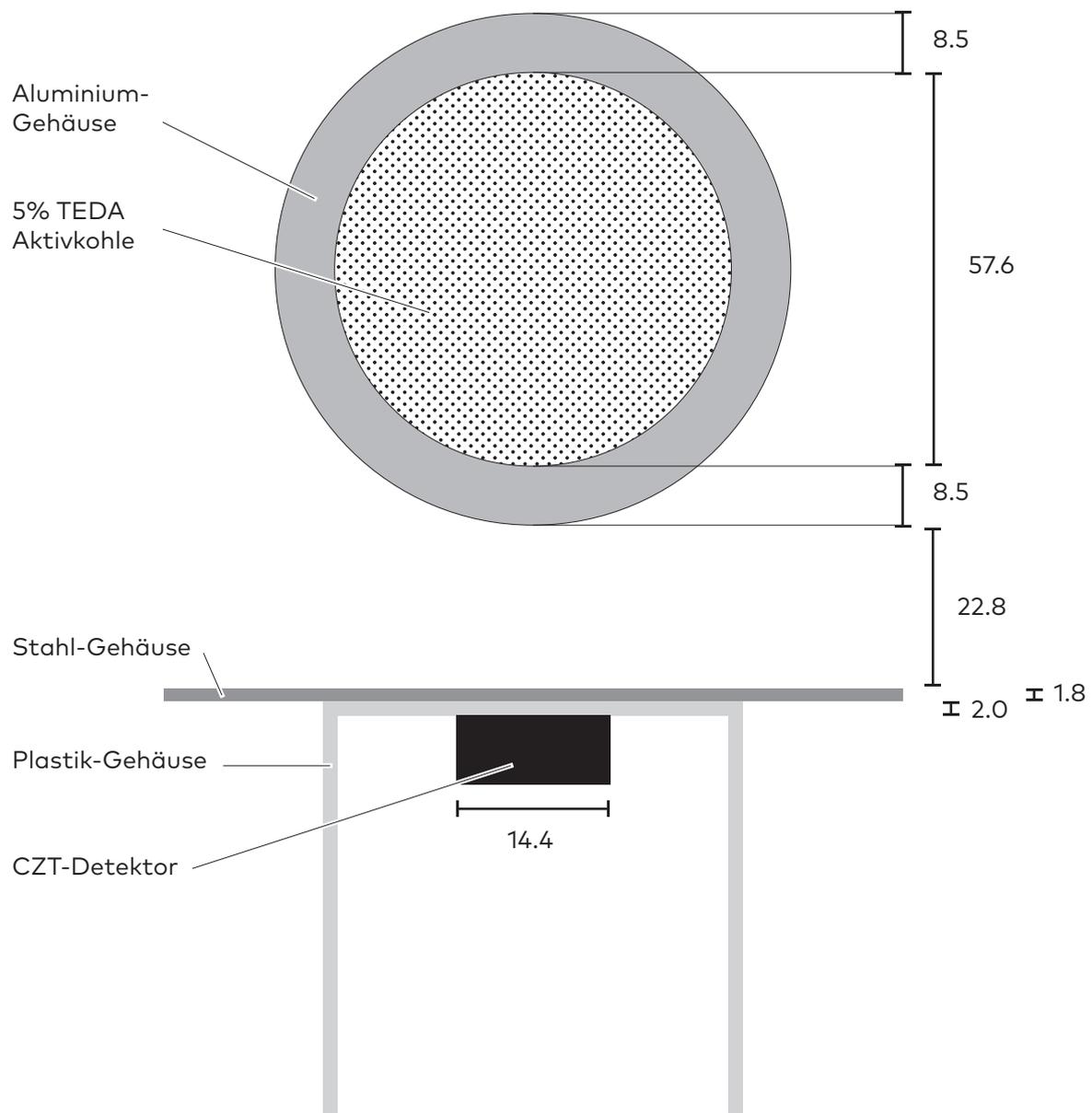


Abbildung A1 – Schema der Messanordnung während der Kampagne, Draufsicht

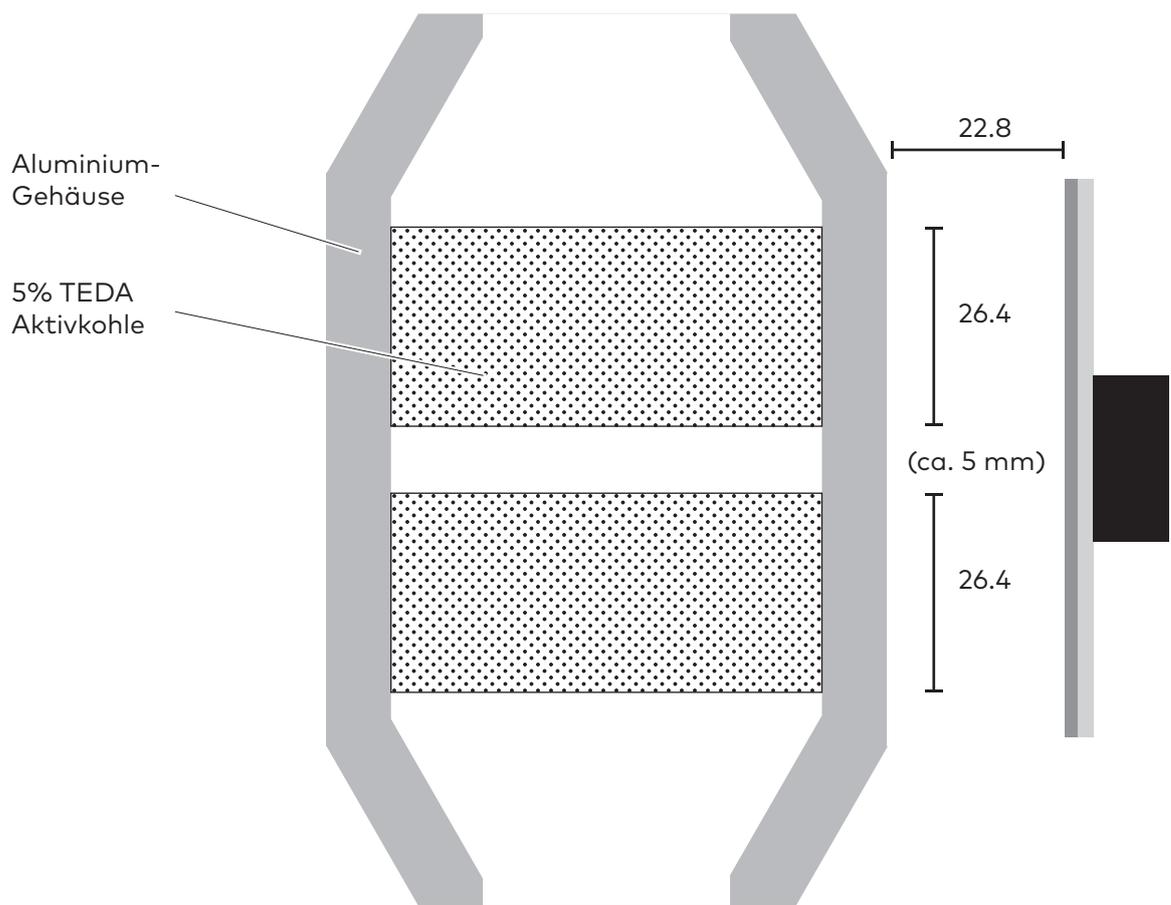


Abbildung A2 – *Schema der Messanordnung während der Kampagne, Seitenansicht*

Erklärung

Hiermit bestätige ich, dass die vorliegende Arbeit von mir selbständig verfasst wurde und ich keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel – insbesondere keine im Quellenverzeichnis nicht benannten Internet-Quellen – benutzt habe und die Arbeit von mir vorher nicht einem anderen Prüfungsverfahren eingereicht wurde. Die eingereichte schriftliche Fassung entspricht der auf dem elektronischen Speichermedium. Ich bin damit nicht einverstanden, dass die Masterarbeit veröffentlicht wird.

Danksagung

Diese Arbeit ist aus der Zusammenarbeit von Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern verschiedenster Institutionen entstanden. Ich bedanke herzlich mich bei allen Beteiligten der Standorte des Bundesamtes für Strahlenschutz in Freiburg, München, Neuherberg und Berlin sowie der Landesmessstelle für Radioaktivität in Bremen für die unschätzbare Unterstützung und vielfältigen Anregungen; bei den Mitarbeitern des IRE, die die Kampagne ermöglicht haben, großzügig ihre Ergebnisse teilten und stets Rede und Antwort standen; bei allen Angehörigen des ZNF für anregende Gespräche und gute Gesellschaft; bei Gerald Kirchner für die Freiheit bei der Wahl und der Bearbeitung meines Themas, das Ermöglichen von Austausch mit verschiedensten Experten und die warmherzige Betreuung; bei meiner Freundin, die mich in meinen unleidlichsten Stunden duldet und erlitt.