

Rechenmethode zur Analyse hochaufgelöster - Spektren und ihre Anwendung auf Spaltfragmentgemische

Autor(en): **Winiger, P. / Huber, O. / Halter, J.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **43 (1970)**

Heft 6-7

PDF erstellt am: **13.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-114189>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Rechenmethode zur Analyse hochaufgelöster γ -Spektren und ihre Anwendung auf Spaltfragmentgemische

von **P. Winiger**¹⁾, **O. Huber** und **J. Halter**¹⁾

Physikalisches Institut der Universität Fribourg, Schweiz

(15. V. 70)

Abstract. γ -spectroscopic methods offer considerable advantages compared to other proceedings in the analysis of unknown mixtures of radionuclides. There exists especially the possibility of computer programs to achieve a complete analysis of highly resolved spectra even with rather small installations. The principles of a peak location, the approximation of the peaks with Gaussian distributions and the energy calibration and determination, which allow an identification of the peaks with a suitable catalogue of γ -ray energies, are outlined. Besides the calculation of the activity of the identified nuclides and the necessary time corrections a comparison with normal mixtures of fission fragments is executed. To do this, we assume a special fission mode and calculate to every measured nuclide the corresponding number of fissions; its expected value for normal mixtures is a constant Q , if the chosen fission mode is correct. The accuracy of this procedure has been tested experimentally with a normal mixture of fission fragments of U-235, irradiated with thermal neutrons. The mean deviation of the Q -values was about $\pm 10\%$, using the most recent data. The analysis of three airfilter samples with fission fragments and neutron induced nuclides (Np-239, U-237) from nuclear explosions allowed their attribution to two different types of bombs.

I. Einleitung

Ein wichtiges Problem der Radioaktivitätsüberwachung besteht in der schnellen und sicheren Bestimmung der wesentlichen Komponenten unbekannter Gemische von Radionukliden. Als solche fallen in erster Linie Spaltfragmentgemische, welche oft zusätzliche Radioisotope aufweisen, in Betracht. Weil diese reine Alpha-, Beta- und Gammastrahler enthalten können, muss eine Probe, wenn eine vollständige Analyse angestrebt wird, auf alle drei Strahlenarten hin untersucht werden. Zur Bestimmung der reinen Alpha- und Betastrahler dienen hauptsächlich gezielte radiochemische Verfahren, welche mit einer aufwendigen Probenaufbereitung kombiniert werden müssen. Im Fall der Alphastrahler liefert die α -Spektroskopie weitere Zuordnungsmöglichkeiten.

Da die meisten Alpha- und Betastrahler auch Gammaquanten emittieren, können zum Nachweis dieser Kerne die Vorteile der Gammaspektroskopie ausgenützt werden. Diese erlaubt einerseits die zerstörungsfreie Analyse von relativ grossvolumigen Proben und gestattet andererseits bei genügend hoher Energieauflösung den gleichzeitigen Nachweis vieler Nuklide.

¹⁾ Eidg. Kommission zur Überwachung der Radioaktivität (KUER).

Im folgenden Kapitel wird ein Abriss der Auswertungsmethoden mit Szintillations- und Halbleiterspektrometern gegeben. Im dritten Kapitel werden die Prinzipien eines Computerprogramms zur Analyse von Halbleiterspektren beschrieben, mit welchem Spektren eines normalen Spaltfragmentgemisches von U-235 (4. Kapitel) und Spektren von Falloutproben (5. Kapitel) ausgewertet wurden.

II. γ -Spektrometer und Auswertung ihrer Spektren

A. Szintillationsdetektoren

Als Detektoren der γ -Strahlung haben sich infolge ihrer günstigen Eigenschaften thalliumaktivierte NaI-Kristalle durchgesetzt; bei niederen Energien erreichen sie eine Ansprechwahrscheinlichkeit von 100%. Wir verwenden einen NaI-Kristall von 3×3 " und einen NaI-Bohrlochkristall von 4.5×5 " in Verbindung mit Photomultipliern RCA-8054 bzw. RCA-8055. Beide Detektor-Systeme sind in Bleiabschirmungen von 10 cm Dicke und zusätzliche Hg-Absorber eingebaut und werden wahlweise mit dem Eingang eines 512-Kanal-Analysators RCL verbunden. Als automatische Datenausgänge stehen ein X-Y-Plotter, eine Schreibmaschine und ein Kartenlocher IBM 26 zur Verfügung.

Auch bei der besten Energieauflösung, welche mit NaI-Kristallen erreichbar ist, sind fast alle Linien, z.B. im Spektrum von jungen Spaltfragmenten, superponiert aus mehreren γ -Übergängen verschiedener Isotope. Zur Analyse sind daher mehrere zeitlich auseinanderliegende Messungen erforderlich; die Zählraten in den verschiedenen Liniengruppen müssen dann in Funktion der Zeit dargestellt und mit graphischen oder numerischen Methoden in ihre wichtigsten Komponenten zerlegt werden. Dieses Verfahren kann mit einem Minimum an Hilfsmitteln durchgeführt werden, dauert aber lange und eignet sich nicht zu einer automatischen Analyse.

Eine andere, programmierbare Methode, besteht darin, vom komplexen Spektrum die Spektren von mutmasslichen Komponenten zu subtrahieren (stripping). Als solche kommen bei jungen Spaltfragmenten die Spektren von einem guten Dutzend Isotopen in Frage, welche in derselben geometrischen Anordnung als sogenannte Eichspektren gemessen werden müssen. Dies erfordert genau reproduzierbare Messbedingungen über so lange Zeiträume, wie die komplexen Spektren gemessen werden sollen, was trotz der Verwendung eines Stabilisators schwierig ist. Anspruchsvolle Stripping-Programme [1] benützen im interessierenden Energiebereich mehrere Spektren monoenergetischer γ -Strahler absolut bekannter Intensität, welche zur rechnerischen Interpolation jedes andern monoenergetischen Spektrums dienen. Dies ermöglicht, jedes beliebige komplexe Spektrum im gewählten Bereich durch einen linearen Least Square Fit zu approximieren. Der Messaufwand sowie der Aufwand der elektronischen Verarbeitung ist jedoch beträchtlich und die erzielbare Genauigkeit beschränkt. Dem Anwendungsbereich einfacherer Strippingprogramme sind dementsprechend noch engere Grenzen gesetzt.

B. Halbleiterdetektoren

Die Anwendung von Ge(Li)-Dioden erfordert wegen ihrem geringeren Volumen gegenüber grossen NaI-Kristallen höhere Probenintensitäten oder längere Messzeiten, bietet aber eine wesentlich bessere Energieauflösung der Spektren [2], welche sich daher zur elektronischen Auswertung weit besser eignen.

Unsere Messeinrichtung²⁾ besteht aus einer Ge(Li)-Planardiode von $21.5 \times 18 \times 8$ mm³, einem rauscharmen, ladungsempfindlichen Vorverstärker mit gekühltem Feldeffekttransistor in der ersten Stufe, einem Linearverstärker mit Pulsformung Tennelec TC 202 BLR und einem 4096-Kanal-Analysator Nuclear Data ND 2200. Die Energieauflösung von Detektor und Elektronik zusammen erreichte Werte um 2.1 keV (1332 keV von Co-60). Als automatische Datenausgänge standen ein Präzisionsplotter «Houston», eine Schreibmaschine und ein Kartenlocher IBM 26 zur Verfügung.

Zur manuellen Auswertung dient die numerierte Liste der Zählraten und der Registrierstreifen des Plotters. Die Aktivität eines Nuklids lässt sich aus der Intensität einer seiner bekannten Linien bestimmen, wenn die Messzeit des Spektrums, der entsprechende γ -Übergangskoeffizient, die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors und der effektive Raumwinkel der Probe gegenüber dem Detektor bekannt sind.

Ein automatisches Auswertungsprogramm erfordert zur Feststellung der Linien eines Spektrums zunächst ein numerisches Ortungsverfahren, welches die Positionen der Linienmaxima liefert. Die Linien werden sukzessiv mit Gauss'schen Verteilungen approximiert. Zu jeder verarbeiteten Linie wird die genaue Position, die Intensität und die Halbwertsbreite gespeichert, damit ein Identifizierungsverfahren angeschlossen werden kann. Dieses beruht auf der genauen Energiebestimmung, welche auf Grund bekannter Linien des Spektrums durchgeführt wird. Die berechneten Energien werden mit geeigneten Katalogwerten verglichen. Bei Übereinstimmung innerhalb einer festgelegten Marge wird die entsprechende Linie als γ -Übergang eines katalogisierten Nuklids erkannt. Dem Katalog werden dann jene spezifischen Daten entnommen, welche zur Aktivitätsbestimmung und weiteren Operationen erforderlich sind. Da die Energien und Intensitäten vieler γ -Übergänge von Spaltnukliden gegenwärtig noch ungenügend bekannt sind, wurde das Programm umgekehrt zur genaueren Bestimmung solcher Werte benützt.

III. Computerprogramm zur Auswertung von Halbleiterspektren

Die routinemässige Anwendung eines solchen Programms erfordert eine sorgfältige Darstellung der INPUT- und OUTPUT-Information. Neben den Bedingungen, welche durch die gewünschte Datenverarbeitung selbst gesetzt werden, musste im Programmwurf die beschränkte Speicherkapazität und die Rechenzeit der benützten Anlage UNIVAC III berücksichtigt werden. Die Analyse eines typischen Spektrums mit 30 Linien erfordert etwa 10 min.

A. Darstellung der INPUT-Information

Die realisierte Darstellung der INPUT-Information umfasst das folgende Kartenpaket:

1. Vier Leitkarten (manuelle Lochung)
 - a) Probenleitkarte mit Nummer und Bezeichnung der Probe, Mess- und Bezugsdatum, Bezeichnung des Detektors, Ort und Zeit der Probenahme.
 - b) Steuerkarte, enthaltend die untere und obere Grenze des gemessenen Spektrums, die Anzahl der Iterationen n_{\max} , die approximative Halbwertsbreite τ der Linien in

²⁾ Wir danken der Kernspektroskopiegruppe des Physikalischen Instituts Fribourg für die Zurverfügungstellung der betriebsbereiten Anordnung hoher Auflösung.

Kanälen (FWHM) und weitere Steuerindizes und Parameter $\alpha, \beta, \gamma, \delta, \varepsilon$, welche im Text erläutert werden.

- c) Energie-Eichkarte mit maximal acht Energien E_h^* einzelner bekannter Linien h , welche im Spektrum erscheinen.
 - d) Kanal-Eichkarte zu den Linien h , mit den entsprechenden Kanalnummern p_h der Linienmaxima.
2. Maximal 210 automatisch gelochte Spektralkarten.

Diese tragen die Erkennungsnummer der Probe, die Kanalnummer des ersten Kanals jeder Karte und die Zählraten von je zehn Kanälen. Die Messdauer befindet sich im Kanal eins des Analysators.

3. Katalog der Gammalinien in Lochkarteiform (siehe Kap. VI).

Er enthält zu jeder katalogisierten Gammalinie J je eine Lochkarte mit folgenden Angaben:

- a) Bezeichnung des radioaktiven Nuklids.
- b) Klassierungscode eines γ -Übergangs I_c .
- c) Halbwertszeit in Tagen ($T_{1/2}$).
- d) Energie des γ -Übergangs (\bar{E}).
- e) γ -Übergangskoeffizient z (= Anzahl Photonen pro 100 Kernzerfälle).
- f) Relative Photopeak-Ansprehwahrscheinlichkeit des Detektors (a).
- g) Spaltausbeuten (v) des Nuklids aus der Spaltung von U-235 und Pu-239 mit Spaltneutronen und von U-238 mit 14 MeV-Neutronen, bezogen auf 100 Spaltungen.

Die INPUT-Steuerung der Spektralkarten erfolgt mit der Kanalnummer, wobei die letzte mit der obern Grenze des Spektrums zusammenfallen muss. Die letzte Katalogkarte trägt den Klassierungscode $I_c = 0$. Nach dem Einlesen der vier Leitkarten und der letzten Spektralkarte erfolgt die Verarbeitung eines Spektrums gemäss dem Blockdiagramm (Fig. 1) in vier Phasen:

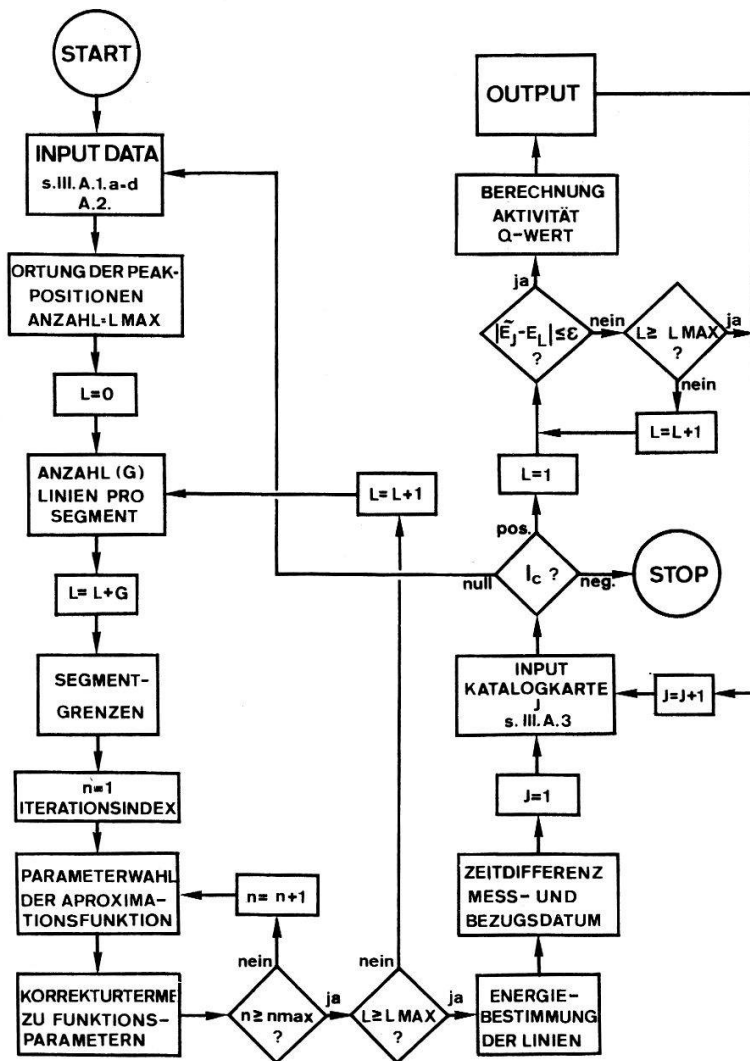
B. Ortung der Gammalinien (Subroutine)

Diese erfolgt nach folgendem Prinzip: zu den Zählraten N_p, N_{p+1}, N_{p+2} von drei aufeinanderfolgenden Kanälen $p, p+1, p+2$ des Spektrums wird die einfache statistische Streuung zur Bestimmung von obern (*upper*) und untern (*lower*) statistischen Grenzen u und l verwendet:

$$u_p = N_p + \alpha\sqrt{N_p}, \quad l_p = N_p - \alpha\sqrt{N_p}. \quad (3.1)$$

Wenn zwei aufeinanderfolgende Differenzen $l_{p+1} - u_p$ und $l_{p+2} - u_{p+1}$ positiv sind, entscheidet das Programm, dass es sich um die linke Flanke einer Linie handelt (siehe Figur in Ref. [3]). In diesem Fall werden sukzessiv die Differenzen $N_{p+2} - N_{p+3} \dots N_{p+i} - N_{p+i+1}$ geprüft. Sobald die Differenz mit $i = m$ positiv wird, kann die grobe Position der L -ten Linie mit $pos_L = p + m$ angegeben werden. Am Schluss dieser Operation erfolgt der OUTPUT von allen L Positionswerten.

Der Wahl des Parameters α ist wegen der Streuung des Untergrunds eine untere Grenze um 0,8 gesetzt. Die Nachweisgrenze der Ortung kann durch die Reduktion der Anzahl Kanäle pro Linie (ein Minimum von 5 wird benötigt beim Approximationsverfahren mit Gauss'schen Verteilungen) verbessert werden: durch diese Massnahme



Figur 1

Blockdiagramm zur numerischen Analyse von Halbleiterspektren.

wird aber die Ortung von «halb aufgelösten» Linien verschlechtert. Es gibt deshalb eine optimale Parameterwahl bezüglich Nachweis und Trennung: die Anzahl der Kanäle pro Linie liegt bei acht, α bei eins. Programmtechnisch und rechenzeitmässig aufwendigere Verfahren [4] liefern nur wenig bessere Resultate.

C. Approximation der Linien (Subroutine)

Eine Prüfung der Abstände benachbarter Linien dient zur Bestimmung der Anzahl G simultan zu fittender Linien. Wenn diese weiter als etwa drei Halbwertsbreiten r auseinanderliegen, können Spektralsegmente gebildet werden, welche nur eine einzige Linie enthalten; ihre Approximation erfolgt durch eine Gauss'sche Verteilung und eine Gerade als Untergrund. Liegen zwei oder mehr geortete Linien näher beieinander als ein vorgeschriebener Abstand $r \cdot \beta$, so werden sie in ein Spektralsegment zusammengefasst, das mit entsprechend mehr Verteilungskurven gefittet wird. Die verwendete Approximationsfunktion lautet:

$$F(p) = \sum_{L=L_n}^{L_m} y_L \cdot e^{-\mu(p-\text{pos}_L)^2} + b_1 \cdot (p - \text{pos}_{L_n}) + b_0 \quad (3.2)$$

mit

$$L_m = L_n + G - 1, \quad \mu = \frac{4 \ln 2}{\gamma^2}.$$

Die Bedingung der Minimalabstände ergibt sich zu:

$$(\text{pos}_{L_n} - \text{pos}_{L_{n-1}}) > r \cdot \beta; \quad (\text{pos}_{L_{m+1}} - \text{pos}_{L_m}) > r \cdot \beta. \quad (3.3)$$

Zur Bestimmung der Segmentgrenzen (L_a, L_b) werden die Positionen der Randlinien L_n, L_m und die Halbwertsbreite r benützt:

$$L_a = \text{pos}_{L_n} - r \cdot \gamma \quad \text{und} \quad L_b = \text{pos}_{L_m} + r \cdot \gamma. \quad (3.4)$$

Im Fall der isolierten Linie gilt $G = 1$ und $L = L_n = L_m$. Die Parameter β, γ und die approximative Halbwertsbreite r (in Kanälen) werden als konstante Werte (Steuerkarte A.1.b) so gewählt, dass sie über den ganzen Bereich eines zu analysierenden Spektrums zweckmässige Segmentgrenzen erzeugen. Ein konstanter Wert für r bietet nur in Intervallen bis zu etwa 1000 keV eine hinreichende Genauigkeit zum Gebrauch dieser Grösse als 0-te Näherung im Iterationszyklus, obwohl seine Energieabhängigkeit mit etwa 3% pro 100 keV gering ist. Die Halbwertsbreite r wird in einer verbesserten Programmversion mittels der verfügbaren Daten der Eichlinien (A.1.c/d) linear interpoliert. Genügend breite Segmente werden mit Werten $1,8 < \gamma < 2,5$ erreicht: breite Segmente sind zwar von Vorteil, haben aber wegen dem Wert von β eine praktische Grenze: β sollte nicht zu gross sein, damit speziell bei niederen Energien nicht zu viele Linien ins gleiche Segment fallen; dieser Parameter muss aber im Verhältnis zu γ variiert werden; zweckmässige Werte liegen bei $3,2 < \beta < 4,2$. Die grösseren Werte der beiden Parameter gelten bei wenigen Kanälen pro Linie, die kleineren bei vielen.

Die Anwendung der Least-Square-Technik auf nichtlineare Funktionen ist mehrfach beschrieben worden. Zur übersichtlichen Darstellung werden die Parameter $b_0, b_1, \mu, \text{pos}_L, \gamma_L$ im Ausdruck für $F(\phi)$ umbenannt:

$$F(\phi; b_0, b_1, \mu, \text{pos}_L, \gamma_L; L = L_n, L_m) = F(\phi; c_1 \dots c_M; M = 2G + 3).$$

Die Summe der Abweichungsquadrate

$$\Phi = \sum_{p=L_a}^{L_b} (N_p - F(\phi; c_1 \dots c_M))^2 \quad (3.5)$$

ist im Intervall L_a, L_b zu minimalisieren. Dazu wird $F(\phi)$ nach seinen Parametern entwickelt und nach den linearen Termen abgebrochen:

$$F^{n+1}(\phi) = F^n(\phi) + \sum_{k=1}^M \varphi_k(\phi) \cdot x_k + \dots \quad (3.6)$$

Dabei bedeuten $x_k = \delta c_k^n$ und $\varphi_k(\phi) = (\partial F(\phi) / \partial c_k)^n$; die mit dem Iterationsindex n bezeichneten Funktionen werden am Ort der Parameterwerte c_k^n genommen. Das Minimalprinzip, welches die Berechnung der x_k erlaubt, nämlich

$$\frac{1}{2} \frac{\partial \Phi}{\partial x_j} = \sum_{p=L_a}^{L_b} \varphi_j(\phi) \cdot [N_p - F^n(\phi) - \sum_{k=1}^M \varphi_k(\phi) \cdot x_k] = 0 \quad (3.7)$$

liefert das Gleichungssystem

$$\sum_{k=1}^M A_{kj} \cdot x_k = B_j \quad (3.8)$$

dessen Koeffizienten wie folgt definiert sind:

$$A_{kj} = \sum_{p=L_a}^{L_p} \varphi_k(\phi) \cdot \varphi_j(\phi) \quad \text{und} \quad B_j = \sum_{p=L_a}^{L_p} \varphi_j(\phi) \cdot [N_p - F^n(\phi)]. \quad (3.9)$$

Das Programm enthält eine Standardroutine zur Ermittlung des Lösungsvektors x_k . Dieser erlaubt die iterative Korrektur der Parameterwerte $c_k^{n+1} = c_k^n + x_k$. Das Verfahren erfordert Anfangswerte c_k^0 ; diesen entsprechen folgende Grössen: die georteten ϕ_{os_L} , die Differenz $N_{\phi_{os_L}} - N_{L_b}$ anstelle von y_L , der Wert $4 \ln 2/r^2$ anstelle von μ , $(N_{L_a} - N_{L_b})/(L_a - L_b)$ anstelle von b_1 und $(N_{L_a} + N_{L_b})/2$ anstelle von b_0 .

Die Anzahl der notwendigen Iterationen hängt in erster Linie von der Genauigkeit der Anfangswerte ab, ferner von den statistischen Schwankungen und der Anzahl gleichzeitig zu approximierender Linien. Im allgemeinen reichen vier bis sechs Iterationen zur Erreichung von fünf bis sechs stationären Dezimalstellen. Die Approximation von mehreren Linien mit Peakhöhenverhältnissen grösser als 20 konvergiert in vielen Fällen nicht mehr; auf die Anwendung des gedämpften Least Square Fits wurde wegen der dadurch verursachten Verdoppelung der Rechenzeit verzichtet [4]. Nicht konvergente Fälle werden automatisch abgebrochen.

D. Energiebestimmung (Subroutine)

Zur Energieeichung der Spektrallinien werden genau bekannte γ -Linien aus dem Spektrum selbst ausgewählt, deren Energien E_h^* und grobe Positionswerte ϕ_h als INPUT-Daten (A.c/d) verfügbar sind. Die entsprechenden gerechneten Positionswerte ϕ_h^* werden durch eine Prüfung ermittelt: Wenn die Differenz $(\phi_{os_L} - \phi_h)$ kleiner als 1 Kanal ist, wird ϕ_h durch $\phi_h^* = \phi_{os_L}$ ersetzt. Die den ϕ_h^* entsprechenden Energien E_h^* gestatten die segmentweise lineare Interpolation der Energien E_L zu den berechneten Positionen ϕ_{os_L} :

$$E_L = E_h^* + \frac{E_{h-1}^* - E_h^*}{\phi_{h-1}^* - \phi_h^*} (\phi_{os_L} - \phi_h^*). \quad (3.10)$$

Die lineare Interpolation ist bei einem Abstand der Eichpunkte von 400 Kanälen genauer als 0,01%, ist also durchaus genügend. Die Genauigkeit der Energiebestimmung hängt aber ausser von der Linearität der Messapparatur auch von der Genauigkeit der Energiewerte E_h^* der Eichlinien ab. Entsprechende Literaturwerte weisen eine gewisse Streuung auf. Die maximal acht Energieeichwerte E_h^* werden deshalb in einer verbesserten Programmversion durch einen Least Square Fit mit einem Polynom zweiten Grades, welches als Energieeichkurve verwendet wird, approximiert.

E. Aktivitätsbestimmung und simultane Operationen

Zur Identifizierung der γ -Linien eines Spektrums werden deren berechnete Energiewerte E_L benützt. In dieser Phase des Programmablaufs werden die Katalog-

karten der γ -Übergänge, welche im Abschnitt III.A.3 beschrieben sind, einzeln gelesen und deren Energiewert \tilde{E}_J mit allen berechneten Energien E_L verglichen. Weichen \tilde{E}_J und E_L innerhalb einer fixen Marge ε (z. B. $\varepsilon \leq 1$ keV) nicht voneinander ab, so werden die berechneten Parameter E_L , ρ_{osL} , γ_L und r_L dem γ -Übergang \tilde{E}_J des Isotops K zugeschrieben und die Daten der Katalogkarte J gespeichert. Dies erlaubt die Bestimmung der Aktivität A_K^J des Isotops K auf Grund der Substitution $L = J$:

$$A_K^J[\text{Ci}] = \frac{I_L}{3,7 \times 10^{10} t [\text{sec}] \cdot a_J \cdot z_J} \quad (3.11)$$

Die Intensität I_L einer gemessenen Linie wird aus den Parametern der Gauss'schen Verteilung berechnet:

$$I_L = \gamma_L \cdot r_L \cdot \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}} \quad (3.12)$$

Weiter bedeutet t die Messdauer, $a_{J=L}$ die Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors bei der Energie \tilde{E}_J und z_J den zugehörigen γ -Übergangskoeffizienten.

Da die meisten Isotope K mehrere beobachtbare γ -Übergänge aufweisen, werden für ein Isotop mehrere unabhängige Aktivitätswerte A_K^J bestimmt. Diese müssen innerhalb einer gewissen Streuung liegen. Die Fehler einer Analyse werden in Kap. IV ausführlich diskutiert. Treten im Halbleiterspektrum zwei unaufgelöste Linien J_K und J_H verschiedener Isotope K und H mit ähnlicher Intensität auf, so werden die entsprechenden Aktivitätswerte A_K^J und A_H^J zu gross; sie fallen dann aus jener Streuung heraus.

In einem weiteren Programmschritt wird zum Vergleich der Aktivitätskomponenten A_K (benützt werden die A_K^J) mit jenen eines normalen Spaltfragmentgemischs der dimensionslose Quotient Q_K^M berechnet:

$$Q_K^M = \frac{A_K[\text{Ci}] \cdot e^{\lambda_K \Delta T} \cdot 3,7 \cdot 10^{10}}{\lambda_K [\text{sec}^{-1}] \cdot v_K^M \cdot 10^{-2}} \quad (3.13)$$

Darin bedeutet $\lambda_K = \ln 2 / T_{1/2}$ die Zerfallskonstante des Isotops K , v_K^M seine prozentuale Spaltausbeute bei drei gewählten Spaltmodi M , nämlich Spaltung von U-235, Pu-239 mit Fissionsneutronen und U-238 mit 14-MeV Neutronen und ΔT die Zeitdifferenz zwischen Mess- und Bezugsdatum (z. B. Entstehungszeitpunkt der Spaltfragmente); diese wird durch eine Subroutine ermittelt.

Die Erwartungswerte Q_K^M ergeben bei richtiger Wahl des Spaltmodus M im Bereich der exponentiellen Abnahme der Nuklide (Mutterisotop zerfallen) eine Konstante, welche die Anzahl Spaltungen bedeutet, die zur festgestellten Aktivität in der Probe führten. Für induzierte Nuklide (Np-239, U-237 und evtl. andere) wird an Stelle von Q_K^M auf analoge Weise die Anzahl Q_K^* der entsprechenden Kerne am Bezugsdatum angegeben:

$$Q_K^* = \frac{A_K [\text{Ci}] \cdot e^{\lambda_K \Delta T} \cdot 3,7 \cdot 10^{10}}{\lambda_K [\text{sec}^{-1}]} \quad (3.14)$$

Q_K^* ist proportional zur relativen Häufigkeit von Erzeugungsprozessen des Nuklids K gegenüber Spaltprozessen.

Der OUTPUT der Aktivitätswerte A_K^J und der drei Vergleichswerte Q_K^M ($M = 1, 2, 3$) erfolgt zusammen mit den INPUT-Daten der Katalogkarte J in einer einzigen Schreibzeile, intermittierend zum INPUT der Katalogkarten. Dadurch wird ohne Zwischenspeicherung eine übersichtliche Darstellung der Hauptresultate möglich.

F. Katalog der wichtigsten γ -Übergänge in Spektren von Spaltfragmentgemischen älter als sieben Tage

In Tabelle 1 sind nach steigender Energie die wichtigsten γ -Übergänge von Nukliden tabelliert, welche in Spektren von Spaltfragmentgemischen älter als sieben Tage auftreten können. Berücksichtigt wurden auch einige Übergänge anderer wichtiger Nuklide, welche im Untergrund der Messungen erscheinen.

Tabelle 1

Energie \tilde{E} und Übergangskoeffizient z der wichtigsten γ -Übergänge von Nukliden, welche im Spektrum von Spaltfragmentgemischen älter als sieben Tage festgestellt werden können.

Isotop	Code I_c	Energie \tilde{E} (keV)	z %	Ref.	Isotop	Code I_c	Energie \tilde{E} (keV)	z %	Ref.
Te-132	1	49,72	14,5	[11]	Sb-125	1	176,3	7,0	[23]
Ce-143	1	57,37	10,6	[9] ^a	Mo-99	2	181,06	6,7	[10]
U-237	1	59,54	36,	[8]	U-237	2	208,01	23,3	[8]
Np-239	3	61,46	2,5	[7]	Np-239	3	209,76	4,0	[7]
U-237	3	64,83	1,25	[8]	Te-132	1	228,16	89,	[11]
Ce-144	2	80,12	1,6	[5] ^a	Np-239	2	228,20	12,7	[7]
I-131	3	80,16	2,2	[13]	Pb-212	2	238,61	47,	[5]
Xe-133	1	80,99	37,	[5]	Ra-226	91	241,92	7,8	[25]
Eu-155	1	86,54	30,	[22, 5]	Te-132	93	262,7	1,16	[12]
Nd-147	1	91,10	27,6	[14]	U-237	3	267,54	0,77	[8]
U-237	801	97,0	17,7	[8]	Np-239	1	277,62	14,1	[7]
Np-239	801	99,55	11,9	[5] ^a	I-131	2	284,31	5,7	[13]
U-237	801	101,0	24,7	[8]	Ce-143	1	293,16	46,	[9, 5] ^a
Np-239	801	103,76	20,8	[5] ^a	Ra-226	91	295,22	19,4	[25]
Eu-155	1	105,32	20,	[22, 5]	Ba-140	2	304,85	4,5	[15]
Np-239	1	106,14	22,8	[7]	Np-239	3	315,91	1,5	[7]
Te-132	3	111,76	1,87	[11]	Nd-147	3	319,41	1,86	[14]
U-237	802	113,5	10,7	[8]	Ba-140	91	328,75	23,6	[16, 17]
Te-132	3	116,36	1,96	[11]	U-237	3	332,36	1,29	[8]
Np-239	802	117,0	8,1	[5] ^a	Np-239	3	334,33	2,0	[7]
U-237	802	117,5	3,4	[8]	Ra-226	91	351,99	36,3	[25]
Np-239	802	120,6	3,15	[5] ^a	I-131	1	364,47	81,	[13, 5]
Ba-140	93	131,12	0,7	[17]	Ba-140	3	423,19	3,4	[15]
Ce-144	1	133,53	11,	[5]	Sb-125	1	427,9	31,	[23, 5]
Mo-99	91	140,51	89,	[10]	Ba-140	93	432,49	3,4	[15]
Ce-141	1	145,43	48,	[5]	Ba-140	3	437,54	2,0	[15]
Ba-140	2	162,66	6,5	[15]	Te-129	71	459,6	5,0	[18]
U-237	3	164,61	1,97	[8]	Sb-125	1	463,4	11,3	[23]

^a) Aus eigenen Messungen.

Isotop	Code I_c	Energie \tilde{E} (keV)	z %	Ref.	Isotop	Code I_c	Energie \tilde{E} (keV)	z %	Ref.
Be-7	1	477,57	10,3	[5]	I-131	3	722,89	1,7	[13]
Ba-140	91	486,99	54,5	[16, 17]	Zr-95	1	724,23	44,7	[20]
Ru-103	1	497,23	88,5	[19, 5]	Te-132	93	727,6	7,2	[12]
Te-132	92	505,5	5,0	a)	Mo-99	2	739,7	13,7	[10]
Tl-208	2	510,71	23,	[5] ^{a)}	Ba-140	93	751,83	4,8	[17]
Ru-106	91	511,6	20,5	[21, 5]	Zr-95	1	756,74	55,1	[20]
Te-132	92	522,5	16,	[12] ^{a)}	Zr-95	91	765,83	120,	[20]
Nd-147	2	531,01	13,1	[14]	Te-132	91	772,5	81,5	[12]
Ba-140	1	537,24	26,	[15]	Mo-99	3	778,2	4,8	[10]
Ba-140	692	574,16	6,5	[16]	Te-132	93	810,4	3,3	[12] ^{a)}
Tl-208	1	583,14	86,	[5]	Te-132	93	812,3	6,8	[12] ^{a)}
Sb-125	1	600,56	19,4	[23]	Ba-140	91	815,74	26,5	[16, 17]
Sb-125	3	606,68	5,34	[23]	Ba-140	92	867,82	6,25	[17]
Ra-226	91	609,37	42,8	[25]	Ba-140	93	919,64	3,0	[17]
Ru-103	3	610,45	5,4	[19]	Ba-140	92	925,2	8,0	[17]
Te-132	93	620,6	2,5	[12]	Te-132	92	954,6	18,50	[12]
Ru-106	91	622,8	10,	[21]	Ra-226	92	1120,4	15,0	[25]
Te-132	92	630,2	13,4	[12]	Te-132	93	1136,0	4,1	[12] ^{a)}
Sb-125	2	635,9	12,5	[23]	Te-132	92	1398,7	7,5	[12] ^{a)}
I-131	2	636,99	6,5	[13]	K-40	1	1460,84	11,	[5] ^{a)}
Cs-137	1	661,6	85,1	[5, 24]	Ba-140	693	1499,5	4,7	a)
Te-132	91	667,8	103,	[12]	Tl-208	601	1592,4	120,	[5] ^{a)}
Sb-125	3	671,42	1,98	[23]	Ba-140	91	1596,17	110,	[16, 17]
Ce-144	93	696,2	1,5	[5] ^{a)}	Bi-214	2	1764,6	16,7	[25]
Te-129	71	695,98	3,2	[18]	Ba-140	93	2521,8	4,0	[17]
Ce-143	3	721,0	6,2	[9]	Tl-208	1	2614,47	100,	[5]

a) Aus eigenen Messungen.

Die Angaben der γ -Energien (\tilde{E}) und der entsprechenden Übergangskoeffizienten (z) wurden aus der neuesten Literatur, welche in Kolonne fünf zitiert ist, ausgewählt, unter Berücksichtigung eigener Messungen (siehe Figur 2). In einigen Fällen wurden absolute γ -Übergangskoeffizienten von Hauptlinien dem Kompendium [5] entnommen und damit z der übrigen Linien aus den relativen Intensitätsangaben berechnet. Die Genauigkeit der angegebenen Energiewerte ist mit wenigen Ausnahmen besser als $\pm 0,1$ keV, jene der Übergangskoeffizienten besser als $\pm 10\%$ (Hauptübergänge wesentlich präziser).

Jede Linie ist in der zweiten Kolonne mit einem Index (I_c) bezeichnet: Die Ziffer in der Einerposition kennzeichnet Hauptlinien, welche selten mit andern Linien superponiert erscheinen und deren Intensität gross und genau bekannt ist, mit 1, Nebenlinien, welche diese Bedingungen nur teilweise erfüllen, mit 2, und Nebenlinien, welche nur in Spektren guter Statistik erkennbar sind, mit 3. Die Ziffer in der Zehnerposition kennzeichnet Übergänge in Tochternukliden, deren γ -Übergangskoeffizienten (im radioaktiven Gleichgewicht) auf 100 Zerfälle des tabellierten Mutterisotops bezogen sind, mit 9, Isomere mit 7. Röntgenlinien, welche aufgenommen wurden, sind in der Hunderterposition mit 8 bezeichnet; ihre Übergangskoeffizienten wurden als relative Intensitäten der Ref. [5] entnommen und entweder mittels bekannter Übergangskoeffizienten von γ -Linien im entsprechenden Nuklid normiert, oder aus

Angaben der Konversionskoeffizienten berechnet. Paarbildungslinien (*double escape*) sind in der Hunderterposition mit 6 bezeichnet; als γ -Übergangskoeffizient z_{de} solcher Linien (gemessen bei der Energie de) wurde der Quotient der Paarerzeugungswahrscheinlichkeit $p_{de+1022 \text{ keV}}$ und der Ansprechwahrscheinlichkeit a_{de} , multipliziert mit $z_{de+1022 \text{ keV}}$ des erzeugenden γ -Übergangs angegeben ($z_{de} = z_{de+1022} \cdot p_{de+1022}/a_{de}$).

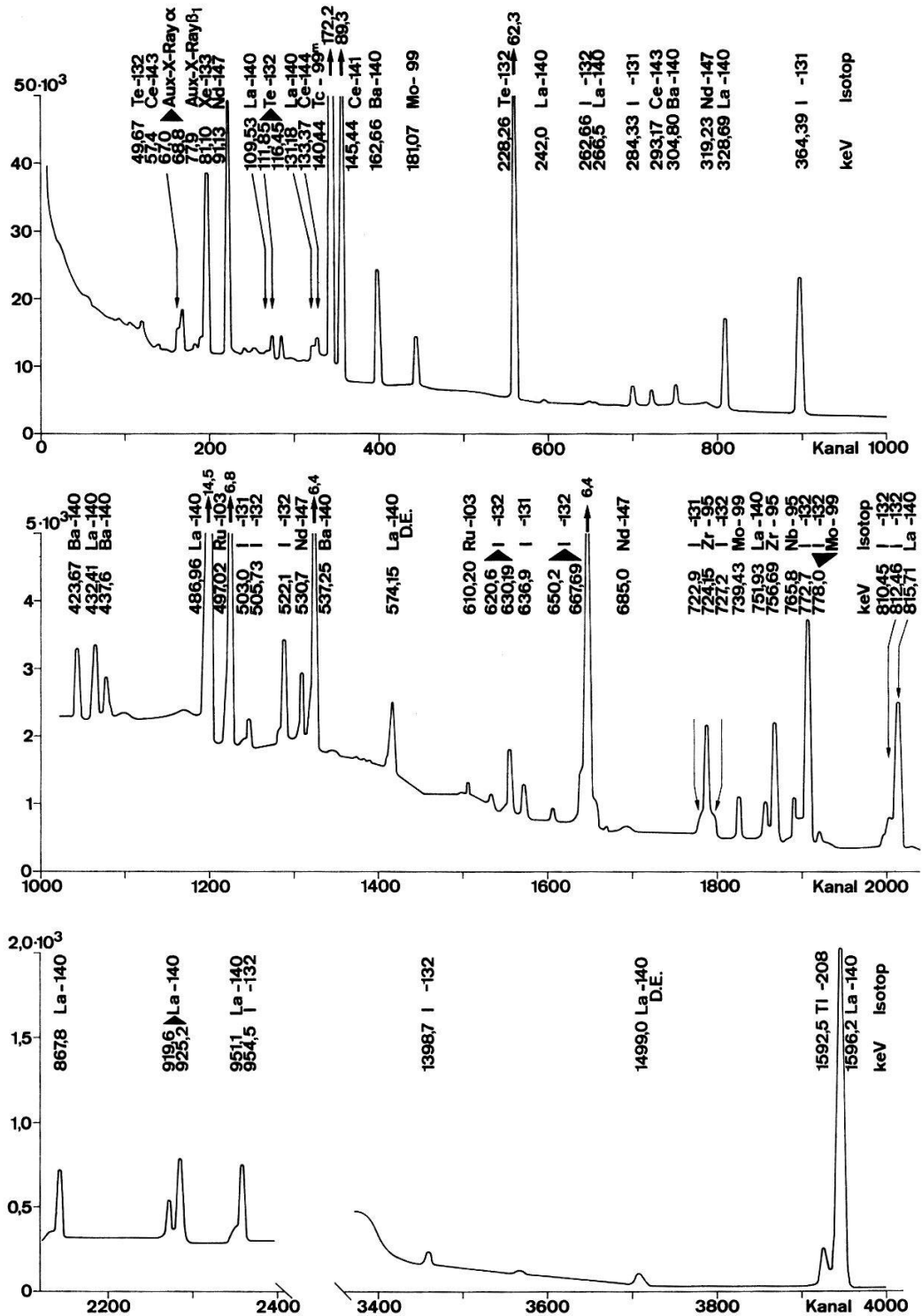
IV. Analyse des γ -Spektrums eines normalen Spaltfragmentgemisches von Uran-235

Die Analyse von Spaltfragmentgemischen wird nach Gleichung 3.13 auf Normalgemische bezogen; eines der wichtigsten ist jenes von U-235. Zur Erzeugung eines quasi-normalen Spaltfragmentgemischs wurde eine Probe von U-235 (angereichert zu 90,2%) im Neutronenfluss des Reaktors Diorit am Eidg. Institut für Reaktorforschung in Würenlingen hergestellt; sie enthielt 93 μ gr U-235 in Form von Urannitrat und wurde während 300 s einem thermischen Neutronenfluss von $3,3 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ ausgesetzt. Beträgt der Wirkungsquerschnitt der Spaltung 577 b, so enthielt die Probe Spaltfragmente von $1,37 \times 10^{11}$ Spaltungen. Die experimentelle Verifizierung dieser Zahl erfolgte durch eine Absolutmessung mit einem NaI 3×3 " Kristall. Die γ -Linie bei 1596 keV von La-140 erscheint im NaI-Spektrum isoliert und erlaubte die Bestimmung der Anzahl Spaltungen mit den in Tabelle 2 angegebenen Werten zu $(1,32 \pm 0,13) \times 10^{11}$. Die Intensität der Probe war etwa 100mal grösser als jene von Falloutproben, welche wir üblicherweise analysieren.

Das erste γ -Spektrum dieser Probe wurde einige Stunden nach der Bestrahlung gemessen. Die anschliessende Messerie diente zur Identifizierung von kurzlebigen Nukliden ($1 \text{ h} < T_{1/2} < 3 \text{ d}$) mittels Energie und Intensität von beobachtbaren γ -Übergängen, was die Erweiterung des Katalogs der γ -Linien erlaubte. Spätere Messungen derselben Probe dienten zur Ermittlung der Genauigkeit, respektive der Streuung der Analysenergebnisse dieser Probe auf Grund der Intensitätsbestimmung mit dem beschriebenen Programm, der heute bekannten Zerfallsdaten der Spalt-nuklide ($2 \text{ d} < T_{1/2} < 30 \text{ y}$) und der zugänglichen Werte der Spaltausbeuten.

Figur 2 zeigt das γ -Spektrum der Probe im Bereich von 0–1600 keV, gemessen mit der Planardiode, 11,15 Tage nach der Bestrahlung (U-13). Erkennbar sind γ -Linien von Spaltfragmenten mit Halbwertszeiten zwischen 33 h (Ce-143) und 285 d (Ce-144) in der Intensitätsverteilung eines Normalgemischs und zwei Linien (1461 keV, K-40; 2614,5–1022 keV, Tl-208), welche dem Untergrund zugeordnet werden können. Verunreinigungen, die von der Herstellung der Probe stammen könnten, sind in diesem Spektrum nicht erkennbar. Es kann daher ausgezeichnet als Referenzspektrum zu Spektren von Falloutproben verwendet werden, sofern eine Korrektur für die etwas verschiedenen Spaltausbeuten (Spaltung mit thermischen Neutronen $\bar{E}_{th} \approx 0,025 \text{ eV}$, bzw. Spaltneutronen $\bar{E}_f \approx 2 \text{ MeV}$, evtl. 14 MeV Neutronen) angebracht wird.

Der relative Fehler der einzelnen Q_K^M -Werte (im folgenden wird nur die Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen betrachtet, der zugehörige Index M weggelassen), welche die nach Gleichung (3.13) aus dem Isotop K bestimmte Anzahl Spaltungen bedeuten, kann prinzipiell aus dem relativen Fehler seiner Komponenten



Figur 2

Gammaskpektrum eines quasi-normalen Spaltfragmentgemischs von U-235, gemessen 11 Tage nach der Spaltung (thermische Neutronen) mit einer Ge(Li)-Planardiode von 3 cm³. Energien, welche auf zwei Kommastellen genau angegeben sind, wurden durch quadratische Interpolation aus einem Least Square Fit der Eichlinien bei 49,72, 91,09, 145,43, 228,20, 328,75, 486,99, 667,65 und 815,73 keV ermittelt.

bestimmt werden; da diese unabhängig voneinander sind, gilt für den relativen Gesamtfehler:

$$\frac{\Delta Q_K}{Q_K} = \pm \sqrt{\left(\frac{\Delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\Delta a}{a}\right)^2 + \left(\frac{\Delta z}{z}\right)^2 + \left(\frac{\Delta v}{v}\right)^2} \tag{4.1}$$

Der Fehler der Halbwertszeit kann vernachlässigt werden. Einzig der Fehler ΔI der Intensitätsbestimmung (gemäß Gleichung 3.12) ist von der Methode der Auswertung abhängig. Δa bedeutet den Eichfehler der Photopeak-Ansprechwahrscheinlichkeit. Als γ -Übergangskoeffizient z und als Spaltausbeute v wurden Literaturwerte benützt.

Die Gesamtgenauigkeit der Analyse eines Normalgemischs kann unter der Verwendung der Q_K -Werte experimentell bestimmt werden: Betrachtet man die erfolgte Anzahl Spaltungen als eine zu messende Konstante Q , so können die Q_K als deren Einzelmessungen aufgefasst werden. Ihr Mittelwert \bar{Q} beträgt:

$$\bar{Q} = \frac{1}{n} \sum_{K=1}^n Q_K \quad (n = \text{Anzahl analysierte Spaltisotope}). \quad (4.2)$$

In Tabelle 2, Spalten 6–8 sind die auf den Mittelwert \bar{Q} normierten relativen Fehler $(1 - q_K)$ der Einzelmessungen dargestellt:

$$1 - q_K = \frac{\bar{Q} - Q_K}{\bar{Q}} = \frac{\Delta Q}{\bar{Q}_K}. \quad (4.3)$$

Sie wurden auf Grund der Analyse der dominierenden Hauptlinie jedes Nuklids K angegeben. Im Fall von Ba-140 $\xrightarrow{40.2\text{h}}$ La-140 beruht der angegebene Fehler $(1 - q_K)$ auf dem Mittel mehrerer Hauptlinien, (siehe Tabelle 3).

Aus Tabelle 2 wird ersichtlich, dass eine Abweichung der Q_K vom Mittelwert \bar{Q} von $\pm 20\%$ praktisch nicht überschritten wird. Die mittlere quadratische Abweichung

$$(1 - q_K) = \pm \left[\frac{\sum_{K=1}^n (1 - q_K)^2}{n - 1} \right]^{1/2} \quad (4.4)$$

beträgt für die drei unabhängigen Messungen U-10, U-13 und U-14 9,5%, 12,8% und 12,7%; dies bedeutet eine gute Gesamtgenauigkeit der beschriebenen Analyse-methode und der verwendeten Daten. Das Ergebnis zeigt, dass allfällige systematische Fehler der Komponenten (vgl. Gleichung 4.1) eine untergeordnete Rolle spielen. Weicht ein Q_K um mehr als die doppelte mittlere quadratische Abweichung vom Mittelwert \bar{Q} ab und ist der nach Gleichung (4.1) aus den Komponenten bestimmbare Einzelfehler kleiner als $1 - q_K$, so weist dies auf systematische Fehler hin. Ihre Eruierung erfordert eine eingehende Diskussion der Fehlerkomponenten in Gleichung (4.1):

1. Als Referenzintensitäten wurden die vom Programm nach Gleichung (3.12) ermittelten Intensitäten I_L^{EICH} des Spektrums eines Eichpräparats von Ba-140 + La-140 im radioaktiven Gleichgewicht herangezogen. Dies erlaubte die gesonderte Untersuchung des Fehlers der Intensitätsbestimmung. Die entsprechenden I_L aus den Messungen U-10, U-13 und U-14 wurden durch jene des Eichpräparats dividiert und mit $i_L = I_L / I_L^{\text{EICH}}$ bezeichnet, ihr respektiver Mittelwert mit \bar{i} . Die relativen Fehler $(1 - j_L)$ der Einzellinien

$$1 - j_L = \frac{\bar{i} - i_L}{\bar{i}}$$

Tabelle 2

Relative Fehler ($1 - q_K$) der Q_K -Werte eines normalen Spaltfragmentgemischs von U-235, gemessen 4,12 Tage (U-10), 11,15 Tage (U-13) und 70,0 Tage (U-14) nach der Spaltung mit thermischen Neutronen, bei Verwendung der tabellierten γ -Übergangskoeffizienten z und Spaltausbeuten ν

Isotop	Halbwertszeit (Tage)	γ -Übergang Energie (keV)	γ -Übergangskoeffizient z %	Spaltausbeute ν [28] %	Relative Fehler ($1 - q_K$)		
					U-10	U-13	U-14
Ce-143	1,375	293,2	46	5,91	1-0,925	1-1,00	-
Mo-99	2,78	140,5	89,0	6,16	1-1,18	1-1,21	-
Te-132	3,24	228,3	89	4,26	1-1,10	1-1,12	-
I-131	8,07	364,4	81	2,91	1-1,035	1-0,975	1-1,06
Nd-147	11,1	91,1	27,6	2,19	1-0,885	1-0,865	1-0,805
Ba-140	12,8	siehe Tabelle 3		6,30	1-0,945	1-0,87	1-0,935
Ce-141	32,5	145,4	48	6,10	1-0,99	1-1,06	1-1,05
Ru-103	39,8	497,0	88,5	3,00	1-0,985	1-0,885	1-0,96
Zr-95	65,2	724,2	44,7	6,20	1-0,95	1-0,885	1-0,90
		756,8	55,1				
Ce-144	285	133,5	11,0	5,40	-	1-1,16	1-1,04
Cs-137	30, y	661,6	85,1	6,20	-	-	1-1,23

Tabelle 3

Relative Fehler ($1 - j_L$) der Peakintensitätsbestimmung einiger γ -Linien von Ba-140 und La-140 in den Spektren U-10, U-13 und U-14. Die γ -Übergangskoeffizienten z für Ba-140 + La-140 im radioaktiven Gleichgewicht basieren auf den Intensitätsangaben der Kolonne 3.

Isotop	γ -Energie [16] (keV)	γ -Intensität (Literaturwerte)	γ -Übergangskoeffizient z (in % Zerfälle von Ba-140)	Relative Fehler ($1 - j_L$)		
				U-10	U-13	U-14
Ba-140	162,656	25 \pm 1,0 ^{a)}	6,5	1-1,04	1-1,13	1-1,06
Ba-140	304,845	17,3 \pm 0,4 ^{a)}	4,5	^{d)}	1-1,075	1-1,05
Ba-140	423,695	13,0 \pm 0,5 ^{a)}	3,4	1-0,98	1-0,985	1-1,12
Ba-140	537,250	100 ^{a)}	26,0	1-1,03	1-0,915	1-0,91
La-140	328,745	20,4 \pm 1,1 ^{b)}	23,6	1-1,03 ^{c)}	1-1,055 ^{c)}	1-1,02
La-140	486,995	47,2 \pm 2,4 ^{b)}	54,5	1-0,98 ^{c)}	1-0,99 ^{c)}	1-0,98
La-140	815,740	23,0 \pm 1,1 ^{b)}	26,5	1-0,98 ^{c)}	1-0,95 ^{c)}	1-0,98
La-140	1596,170	95,5 \pm 0,2 ^{b)}	110	1-0,96 ^{c)}	1-0,92 ^{c)}	1-0,90

^{a)} Relative Intensität [15].

^{b)} Intensität bezogen auf 100 Kernzerfälle von La-140 [17].

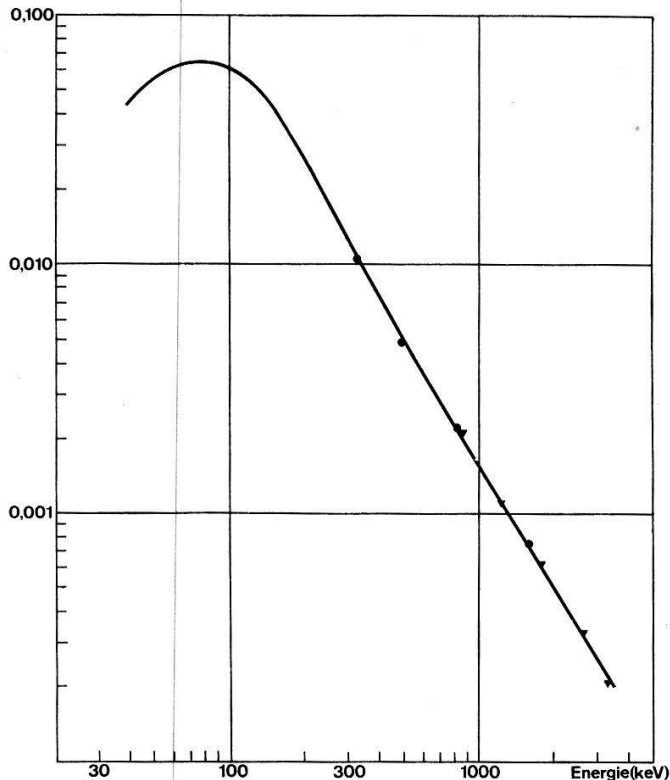
^{c)} Korrigiert auf radioaktives Gleichgewicht.

^{d)} Beimengung von 306,1 keV, Rh-105 (36 h).

sind in Tabelle 3, Spalten 5-7, aufgeführt. Ihre mittlere quadratische Abweichung beträgt für die drei Messungen 3,2%, 7,7% und 7,5%. Dieses Resultat ist für den Fehler der Intensitätsbestimmung der beschriebenen Methode und der angewandten Zählstatistik repräsentativ. Einige Intensitäten I_L^{EICH} des Eichpräparats wurden mit solchen verglichen, welche unter genormten Messbedingungen und mittels einer 8-parametrischen Peakanalyse von J. Kern [26] durchgeführt wurden. Die entsprechenden Quotienten lagen innerhalb $\pm 2,5\%$. Vom selben Autor [16] stammen die in Tabelle 3, Spalte 2 gegebenen Präzisionswerte der γ -Energien von Ba-140 bzw. La-140 und die relativen γ -Intensitäten (Spalte 3) der Linien von Ba-140 [15]. Die auf 100

Zerfälle von La-140 bezogenen γ -Intensitäten wurden der Ref. [17] entnommen. Spalte 4 von Tabelle 3 gibt die daraus ermittelten γ -Übergangskoeffizienten z von Ba-140 und La-140 im radioaktiven Gleichgewicht, bezogen auf 100 Zerfälle von Ba-140.

2. Im Energiebereich von 40–900 keV wurde die Photopeak-Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors von G. Mauron [27] übernommen. Sie zeigte bei Energien über 120 keV nur eine geringe Abhängigkeit von der geometrischen Anordnung der Probe. Auf Grund unserer Analysen von Co-56- und La-140-Linien wurde die Eichkurve auf den Energiebereich von 900–3300 keV ausgedehnt. Figur 3



Figur 3
Photopeak-Ansprechwahrscheinlichkeit der Ge(Li)-Planardiode von 3 cm³ [27]. Extrapolation mit Linien von Co-56 (▼) und La-140 (●).

zeigt ihre graphische Darstellung. Die verwendeten γ -Übergangskoeffizienten z von Co-56 [6] und La-140 sind auf $\pm 5\%$ genau bekannt, ebenso die entsprechenden Intensitäten I_L ; die einzelnen Eichpunkte sind daher mit einem Eichfehler von $\pm 7\%$ behaftet.

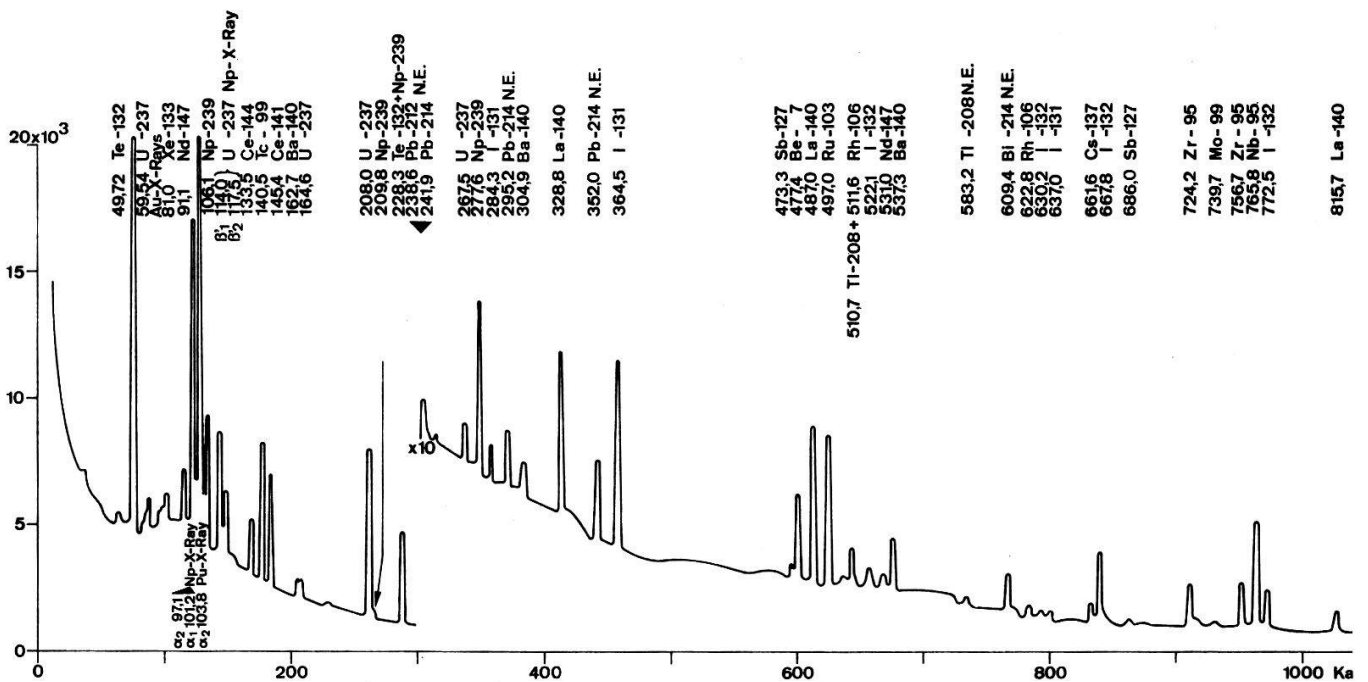
3. Die relativen Fehler der γ -Übergangskoeffizienten z betragen nach neueren Arbeiten im allgemeinen 5–10%. Vergleiche von diesbezüglichen Arbeiten untereinander und unsere eigenen Analysen erlauben eine Kontrolle solcher Werte. Aus dem Mittelwert der Q_K -Werte der langlebigen Spaltnuklide können umgekehrt mit der beschriebenen Methode die γ -Übergangskoeffizienten in schlechter bekannten kurzlebigen Spaltnukliden bestimmt werden, da ihre Spaltausbeuten relativ genau bekannt sind.

4. Die Daten der Spaltausbeuten v müssen der Literatur entnommen werden. Wir wählten die empfohlenen Werte der kürzlich erschienenen Arbeit [28]. Ihre mutmasslichen Fehler, welche aus dem Vergleich mit andern Daten abgeschätzt werden müssen, sind im allgemeinen kleiner als 5%.

Der relative Fehler der Q_K -Werte, welcher nach Gleichung (4.1) aus der Abschätzung des mittleren Fehlers der vier Komponenten berechnet werden kann, liegt zwischen 10% und 15% und stimmt mit der experimentellen mittleren quadratischen Abweichung $\overline{(1 - q_K)}$ überein.

V. Anwendung der Methode auf die Analyse von Luftfilterproben mit Spaltfragmenten von einigen chinesischen Testexplosionen

Aus unsern Analysenergebnissen von jungen Falloutproben, welche wir mit der beschriebenen Methode erhielten, werden als Beispiele die Analysen von drei Luftfilterproben herausgegriffen und diskutiert. Die Erhebung dieser Proben erfolgte jeweils kurz nach einer Testexplosion in der oberen Troposphäre mit einem Luftfilteraggregat der KUER (siehe Tabelle 4). Figur 4 zeigt das γ -Spektrum der Probe C im Energiebereich von 0–820 keV, 13 Tage nach der Explosion, gemessen mit der Planar-



Figur 4

Gammaspektrum einer Luftfilterprobe C aus der oberen Troposphäre, gemessen am 12. 10. 69 (N.E.: Linien des Nulleffekts).

Tabelle 4

Herkunft, Sammeldaten und Intensität von drei analysierten Luftfilterproben

Probe	Explosionsdatum	Kaliber [31]	Sammeldatum	Flughöhe m	Menge kg	Intensität ^{a)}
A	24. 12. 67	< 20 kT	17. 1. 68	11100	900	$3,5 \times 10^9$
B	27. 12. 68	3 MT	27. 1. 69	12900	1320	$8,4 \times 10^9$
C	29. 9. 69	3 MT	9. 10. 69	13200	1650	$3,1 \times 10^9$

a) Anzahl Spaltungen, welche zur gemessenen Ba-140-Aktivität in der Probe führten (siehe Tab. 5).

diode. Ausser den typischen Linien junger Spaltfragmente sind Linien der Isotope Np-239, U-237 und Be-7 messbar. Ferner erkennt man Linien von Isotopen der natürlichen Zerfallsreihen (Pb-212, Tl-208, Pb-214 und Bi-214), welche dem Nulleffekt zuzuschreiben sind. In Tabelle 5 sind die nach Gleichung 3.13 (bzw. 3.14) bestimmten und auf den Ba-140 Gehalt normierten Q -Werte (bzw. Q^* -Werte) der Spaltisotope und der neutroneninduzierten Nuklide Np-239 und U-237 aufgeführt und in Figur 5 dargestellt. Der Normierungsfaktor kann aus Tabelle 4, Spalte 7 entnommen werden; er ist zugleich ein Mass für die Intensität der Proben.

Tabelle 5

Q -Werte der Proben A, B und C bei Verwendung der tabellierten Spaltausbeuten [28].

Isotop	Halbwertszeit (Tage)	Spaltausbeute %		Q -Werte		
		U-235 ^{a)}	U-238 ^{b)}	Probe A ^{c)}	Probe B ^{d)}	Probe C ^{d)}
Mo-99	2,78	5,90	5,65	0,87	–	0,95
Te-132	3,24	4,90	4,32	0,89	–	1,03
Xe-133	5,27	6,69	6,26	0,13	0,017	0,045
I-131	8,07	3,15	4,10	1,04	0,53	0,43
Nd-147	11,1	2,30	2,00	0,45	1,00	0,98
Ba-140	12,8	5,70	4,45	1,00	1,00	1,00
Ce-141	32,5	6,30	4,67	0,92	0,97	1,02
Ru-103	39,8	3,50	4,00	1,25	1,16	1,54
Zr-95	65,2	6,70	5,11	–	0,93	1,93
Ce-144	285	5,15	3,40	20,4	4,23	19,4
Cs-137	10940	6,25	5,48	–	13,2	56,5
Np-239 ^{e)}	2,35	–	–	0,96	–	0,23
U-237 ^{e)}	6,75	–	–	0,020	0,147	0,185

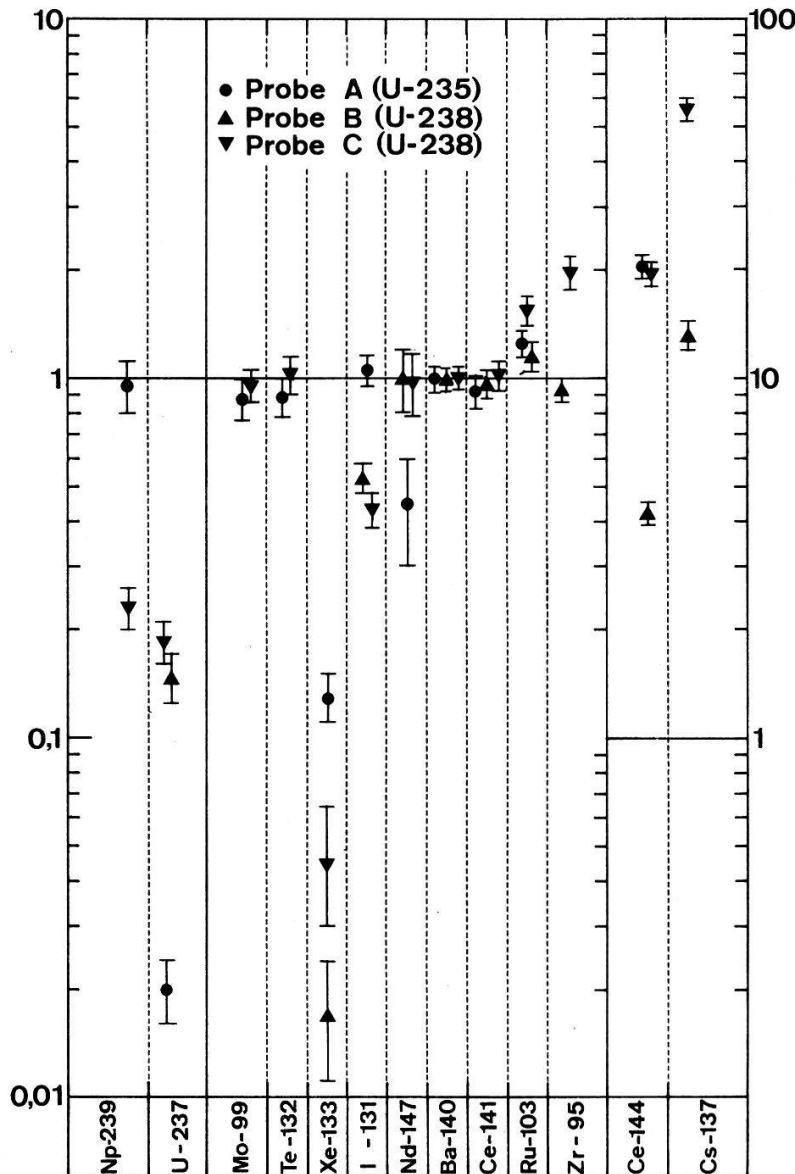
a) Spaltneutronen b) 14-MeV-Neutronen c) Spaltung von U-235 d) Spaltung von U-238
e) Q^* -Werte.

Zur Berechnung der Q -Werte der Probe A wurden die Spaltausbeuten von U-235 mit Fissionsneutronen, zu jener der Proben B und C die Spaltausbeuten von U-238 mit 14-MeV-Neutronen benützt.

Die hohen Q -Werte von Ce-144 und Cs-137 rühren daher, dass diese Isotope noch von früheren Explosionen her in der Luft vorhanden waren. Dasselbe gilt für Zr-95 in Probe C. Die Q -Werte der übrigen Spaltfragmente weisen eine bemerkenswerte Konstanz auf; immerhin treten einige Ausnahmen auf: das Edelgas Xe-133 wird nur zu einem kleinen Teil in Aerosolen gesammelt; um die Hälfte reduziert erscheint Nd-147 in der Probe A und I-131 in den Proben B und C; Ru-103 zeigt eine Tendenz zur Anreicherung.

Aus dem Gehalt der Proben an Np-239 und U-237 können folgende Schlüsse gezogen werden:

a) Die Ermittlung einer fast ebenso grossen Anzahl von Np-239 Kernen wie von Spaltungen in der Probe A ist erklärbar durch den Einfang von Restneutronen aus der Spaltung eines U-235-Zünders im U-238 eines angenommenen Bombenmantels. Eine geringe Menge U-237 entsteht durch doppelten n -Einfang in U-235; gemäss theoretischen Überlegungen [29] beträgt das Verhältnis der U-237-Kerne zur Anzahl Spaltun-



Figur 5

Auf Ba-140 normierte Q -Werte von Spaltprodukten und Q^* -Werte von Np-239 und U-237 in Luftfilterproben A, B und C. Die Spaltprodukte sind nach ihrer Halbwertszeit geordnet. Die Fehlergrenzen beziehen sich auf die entsprechenden Aktivitätswerte.

gen durch Spaltneutronen $1/40$, was mit unserer Analyse der Probe A gut übereinstimmt. Man kann also dieses Messergebnis deuten, ohne das Vorhandensein von Fusionsneutronen in Betracht ziehen zu müssen.

b) In den Proben B und C wurde gegenüber der Probe A eine so grosse Menge U-237 nachgewiesen, dass als vorwiegender Produktionsprozess U-238 ($n, 2n$) U-237 angenommen werden muss. Dieser erfordert eine Schwellenenergie der Neutronen von 6 MeV. Unter der Annahme eines geeigneten Energiespektrums der Neutronen (14-MeV-Neutronen und Maxwellspektrum) ist jedoch die Spaltung von U-238 gegenüber dem ($n, 2n$)-Prozess dominant; dass vorwiegend Spaltung von U-238 vorliegt, geht auch aus der Konstanz der Q -Werte, bezogen auf dieses Spaltprodukt hervor. Wir gehen deshalb vom Modell einer Fission-Fusion-Fission-Bombe aus: Die Spalt-

fragmente des Zünders (U-235) sind gegenüber jenen des Mantels (U-238) vernachlässigbar; die 14-MeV-Neutronen der Fusion spalten den Mantel unter Entstehung weiterer Spaltneutronen. Zur qualitativen Begründung des Gehalts der Proben an Np-239 und U-237 wurden die Wirkungsquerschnitte der Spaltung, des n -Einfangs und des $(n, 2n)$ -Prozesses an U-238 unter der Annahme einer Maxwellverteilung gemittelt. Dabei wurden zwei mittlere Neutronenenergien von 1,916 und 2,055 MeV verwendet. Die Rechnungen [30] ergaben für das Verhältnis der aus U-238 gebildeten Np-239-Kerne zu den Spaltungen Extremwerte von 0,183 respektive 0,141 und analoge Werte für U-237 von 0,059 respektive 0,103. Die entsprechenden Messwerte liegen etwas höher: Die unberücksichtigte Neutronenkomponente von 14 MeV erhöht in der Rechnung den Wert für U-237 und die unberücksichtigte Moderierung des Spaltneutronenspektrums den Wert für Np-239 gegenüber der Spaltung.

Die Folgerungen, welche aus dem Gehalt der Proben an Np-239 und U-237 gezogen werden können, decken sich auch mit den bekannt gemachten Kaliberangaben [31].

VI. Schlussfolgerungen

Die beschriebene Analysenmethode eignet sich besonders für die Auswertung hochaufgelöster γ -Spektren mit zahlreichen Linien. Sie wurde speziell angepasst auf Spaltfragmentgemische, wie sie in der Radioaktivitätsüberwachung auftreten. Das entsprechende Computerprogramm, welches im Hinblick auf kleinere Anlagen entwickelt wurde, kann bei Strahlenunfällen zur raschen und sicheren Analyse der Spektren bei hoher Arbeitskapazität eingesetzt werden. Die Untersuchung zeigt am Beispiel eines normalen Spaltfragmentgemischs von U-235, dass eine gute Gesamtgenauigkeit erreicht wird. Die Flexibilität des Programms erlaubt seine Anwendung auf andere Messaufgaben (z. B. Aktivierungsanalyse).

Den Herren Dr. A. Wyttenbach und Dr. H. R. von Gunten, EIR, danken wir für die Bereitstellung der U-235-Probe und für ihre Hilfe bei der Auswahl der Daten von Spaltausbeuten. Herr Dr. J. Brunner und Herr Dr. P. Wydler, EIR, führten für uns die Berechnungen von integrierten Wirkungsquerschnitten durch. Herrn Prof. J. Kern danken wir für die Mitteilung von Analysenresultaten, Herrn G. Mauron für die Eichung der Planardiode und Herrn Dr. H. Schneuwly für die Programmierung einer Subroutine. Schliesslich gilt unser Dank allen Mitarbeitern der Kernspektroskopiegruppe für ihre grosse Hilfsbereitschaft bei Messungen.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] R. L. HEATH, *Scintillation Spectrometry*, AEC Research and Development Report, IDO-16880, 8/1964.
- [2] P. WINIGER, O. HUBER und J. HALTER, *Helv. phys. Acta* 41, 645 (1968).
- [3] P. WINIGER, O. HUBER und J. HALTER, *Helv. phys. Acta* 42, 900 (1969).
- [4] V. BARNES, *Nucl. Sci.* 15, 437 (1968).
- [5] C. M. LEDERER, J. M. HOLLANDER und I. PERLMANN, *Table of Isotopes*, sixth Edition (John Wiley & Sons, Inc., New York, London, Sydney 1967).
- [6] R. L. AUBLE, W. C. MCHARRIS, W. H. KELLY, *Nucl. Phys. A* 91, 225 (1967).
- [7] D. W. DAVIES und J. M. HOLLANDER, *Nucl. Phys.* 68, 161 (1965).
- [8] T. YAMAZAKI und J. M. HOLLANDER, *Nucl. Phys.* 84, 505 (1966).
- [9] D. G. MEGLI, V. R. POTNIS und C. E. MANDEVILLE, *Nucl. Phys. A* 107, 117 (1968).

- [10] C. W. E. VAN EIJK, B. VAN NOOIJEN, F. SCHUTTE, S. M. BRAHMAVAR, J. H. HALMILTON und J. J. PINAJIAN, Nucl. Phys. *A 121*, 440 (1968).
- [11] K. FRANSSON und C. E. BEMIS, JR., Nucl. Phys. *78*, 207 (1966).
- [12] R. HENCK, L. STAB, P. SIFFERT und A. COCHE, Nucl. Phys. *A 93*, 597 (1967); J. H. HAMILTON, H. K. CARTER und E. F. ZGANJAR, Bull. Am. Phys. Soc., Series II, *11*, 775 (1966).
- [13] C. GRAEFFE und W. B. WALTERS, Phys. Rev. *153*, 1321 (1967).
- [14] M. J. CANTY und R. D. CONNOR, Nucl. Phys. *A 104*, 35 (1967).
- [15] J. KERN und G. MAURON, Helv. phys. Acta *43*, 272 (1970).
- [16] J. KERN, Nucl. Instr. Meth. *79*, 233 (1970).
- [17] H. W. BAER, J. J. REIDY und M. L. WIEDENBECK, Nucl. Phys. *A 113*, 33 (1968).
- [18] W. C. DICKINSON, S. D. BLOOM und L. G. MANN, Nucl. Phys. *A 123*, 481 (1969).
- [19] W. H. ZOLLER, E. S. MACIAS, M. B. PERKAL und W. B. WALTERS, Nucl. Phys. *A 130*, 293 (1969).
- [20] M. BRAHMAVAR und J. H. HAMILTON, Bull. Am. Phys. Soc., Serie II, *14*, 552 (1969).
- [21] P. VENUGOPALA RAO und R. W. FINK, Nucl. Phys. *A 103*, 385 (1967).
- [22] R. A. MEYER und J. W. T. MEADOWS, Nucl. Phys. *A 132*, 177 (1969).
- [23] G. AUBIN, J. BARRETTE, M. BARRETTE und S. MONARO, Nucl. Instr. Meth. *76*, 93 (1969).
- [24] H. H. HANSEN, G. LOWENTHAL, A. SPERNOL, W. VAN DER EIJK und R. VANINBROUKX, Z. Phys. *218*, 25 (1969).
- [25] E. W. A. LINGEMAN, J. KONIJN, P. POLAK und A. H. WAPSTRA, Nucl. Phys. *A 133*, 630 (1969).
- [26] J. KERN, private Mitteilung.
- [27] G. MAURON, wird publiziert.
- [28] M. E. MEEK und B. F. RIDER, Summary of Fission Product Yields for U-235, U-238, Pu-239 and Pu-241 at Thermal, Fission Spectrum and 14 MeV Neutron Energies, General Electric, Pleasanton, California, APED-5398-A (1968).
- [29] K. G. VOHRA, *Atomic Energy Establishment Trombay*, A.E.E.T., 240 (1968).
- [30] P. WYDLER, private Mitteilung.
- [31] *Radiological Health*, Data and Reports, U.S. Department of Health, Education and Welfare *9*, 62 (1968); *10*, 45 (1969); *10*, 473 (1969).