

Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 47 (1974)
Heft: 1

Artikel: Alpha-Spektroskopie mit Gitterionisationskammer
Autor: Völkle, H. / Ribordy, L. / Halter, J.
DOI: <https://doi.org/10.5169/seals-114558>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 19.11.2024

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>

Alpha-Spektroskopie mit Gitterionisationskammer

von H. Völkle¹⁾, L. Ribordy¹⁾, J. Halter¹⁾, O. Huber und P. Winiger¹⁾

Physikalisches Institut der Universität, Fribourg

(8. X. 73)

Abstract. A measuring system with a grid ionization chamber for detection of α -emitting nuclides in environmental samples is described. By optimal design of chamber and associated electronics a good resolution of 35.5 keV f.w.h.m. for a Po-210 electro-deposited source, with very low background (7.2 counts/h in the interval from 4 to 6 MeV) was achieved. This allows us to determine Pu-239 activities of a few pCi/g mineralized substance. For measuring the α -spectrum, 20 to 30 mg mineralized sample material is deposited on the source-holder by evaporation of an adequate solvent. If necessary, Pu or U are chemically separated from the solution (with TiOA or TTA) and measured separately.

I. Einleitung

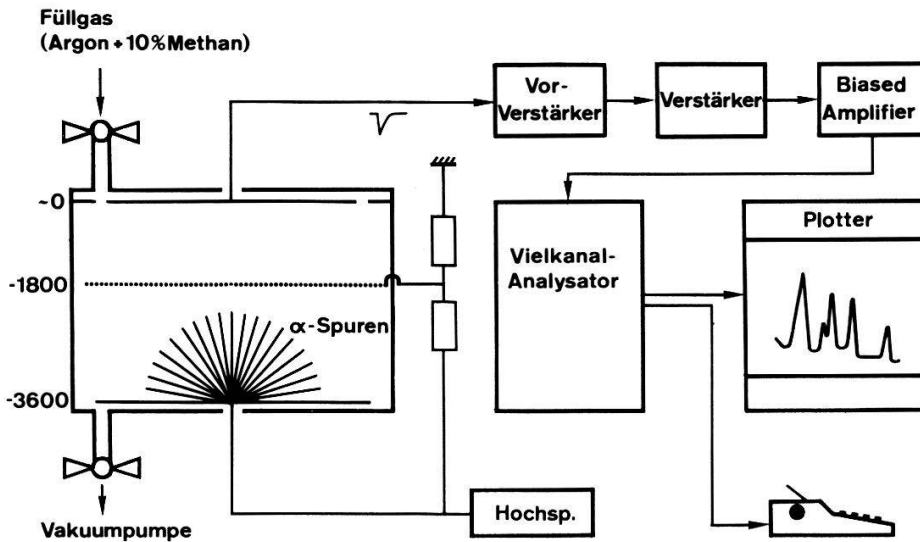
Die vermehrte Anwendung von α -Strahlern, insbesondere Plutonium und Uran, in Industrie und Technik verlangt im Rahmen einer Radioaktivitätsüberwachung die Entwicklung von empfindlichen und raschen Methoden zum Nachweis solcher Strahler in Proben aus der Biosphäre. Die vorliegende Arbeit beschreibt das benützte Verfahren zur physikalisch-chemischen Aufbereitung des Probenmaterials zu dünnen Quellen und die Gitterionisationskammer, welche zur Messung der α -Spektren verwendet wurde. Figur 1 zeigt das Schema der gesamten Messanlage.

Figur 2 zeigt das Blockschema der Signalverarbeitung. Die von einem α -Teilchen im Zählgas der Ionisationskammer erzeugten negativen Ladungsträger werden durch das elektrische Feld auf der Anode gesammelt und in einem Vorverstärker mit kapazitiver Rückkopplung integriert. Der Impuls gelangt durch einen Bandpassfilter und einen Verstärker in den Vielkanalanalysator. Jeder Schritt dieser Signalverarbeitung ergibt einen gewissen Beitrag an die endliche Energieauflösung des Systems und muss einzeln optimiert werden. Wichtigste Voraussetzung für eine gute Auflösung ist dabei eine geringe Selbstabsorption in der Quelle, was die Anwendung spezieller Methoden zur Herstellung dünner und homogener Schichten verlangt. Das Quadrat der Halbwertsbreite (FWHM) einer monoenergetischen α -Linie ist die Summe der Quadrate folgender Anteile (FWHM):

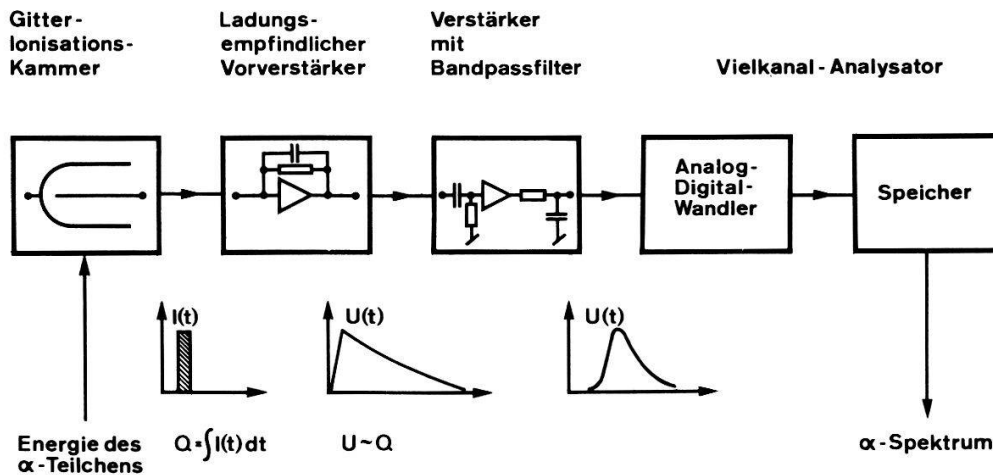
- 1) Absorption infolge endlicher Quellendicke,
- 2) Streuung der Anzahl gebildeter Ionenpaare,

¹⁾ Labor Fribourg der Eidg. Kommission zur Ueberwachung der Radioaktivität.

- 3) Ladungsverluste während des Sammelns infolge Rekombination und Elektronenanlagerung,
- 4) Verluste an äquivalenter Ladung durch sammelzeitabhängige Signalschwächung (z.B. Einfluss der positiven Ionen),
- 5) Beiträge der Elektronik, wie Rauschen und endliche Kanalaufösung.



Figur 1
Blockschema der Messanlage.



Figur 2
Schema der Signalverarbeitung.

Im folgenden werden zuerst einige theoretische Ueberlegungen zur Funktion der Gitterionisationskammer und Optimalisierung der Messelektronik gemacht: anschliessend folgt die Beschreibung der Messanlage und deren Spezifikationen und schliesslich die Probenaufbereitung.

II. Theorie der Gitterionisationskammer [1, 2]

Das Bremsvermögen von α -Teilchen ($z = 2$) in Materie ist durch die Bethe-Bloch-Formel gegeben:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 \cdot z^2}{m_e v^2} \cdot N \cdot Z \cdot \ln \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) \quad (1)$$

Dabei ist z die Ladung des Teilchens, m_e die Elektronenmasse, v die Teilchengeschwindigkeit, $N \cdot Z$ die Elektronendichte im Füllgas und I die gemittelte Ionisationsenergie.

In Argon, das als Füllgas der Ionisationskammer verwendet wird, beträgt die mittlere Energie W zur Erzeugung eines Ionenpaares 26,4 eV und ist nahezu von der Energie E_0 des einfallenden Teilchens unabhängig. Die Linienbreite, die durch die statistische Streuung der Anzahl gebildeter Ionenpaare verursacht wird, ist gegeben durch: $\Delta E/E \approx \sqrt{W \cdot F/E_0}$. (F ist der Fano-Faktor; *ca.* 0,4.) Für α -Teilchen von Po-210 (5,305 MeV) ergibt sich dafür ein Wert von 18 keV FWHM. Dies stellt einen theoretischen Grenzwert bei idealisierter Elektronik und Quelle dar und ist somit ein Mass für die Nützlichkeit anderer Verbesserungen.

Verluste an Ladungen, die Verschiebungen im Energiespektrum und damit Linienverbreiterungen zur Folge haben, werden durch Elektronenanlagerungen und Rekombinationen verursacht. Elektronegative Gase wie Sauerstoff, Wasserdampf, Halogene, organische Dämpfe etc. können negative Ionen bilden, indem sie langsame Elektronen einfangen, während Rekombinationen hauptsächlich bei hohem Druck auftreten. Die Reinheit von Zählgas und Oberflächen der Kammerbauteile ist somit von entscheidender Bedeutung. Bei der Wahl der drei wichtigsten Parameter der Ionisationskammer, Gasdruck, Elektrodenabstand und Hochspannung, ist darauf zu achten, dass α -Teilchen von 9 bis 10 MeV noch vollständig absorbiert werden, die Beweglichkeit der Elektronen möglichst gross wird und die Rekombinationswahrscheinlichkeit klein bleibt.

Die Sammelzeit der Ladungen im elektrischen Feld und damit die Anstiegszeit des integrierten Stromimpulses wird durch Feldstärke, Gasdruck und Beweglichkeit (Geschwindigkeit im Einheitsfeld) bestimmt. Sie sollte klein sein gegenüber der kleinsten Zeitkonstanten des Rauschfilters.

Die Beweglichkeit der positiven Ionen ist in einem grossen Bereich umgekehrt proportional zum Gasdruck. Für Elektronen, deren Beweglichkeit rund 10^3 bis 10^4 mal höher ist, gilt diese Abhängigkeit nicht. Im weiteren spielen Beimischungen zum Gas eine wichtige Rolle: So steigt z.B. die Elektronenbeweglichkeit für ein gebräuchliches Argon-Methan-Gemisch mit zunehmendem Methan-Gehalt. Für die beschriebene Kammer ergeben sich Sammelzeiten für Elektronen von einigen Zehntel μ s (gemessen 0,4 μ s), für positive Ionen hingegen einige ms. Die obige Bedingung für die Sammelzeit lässt sich somit für positive Ionen nicht erfüllen. Sie bewirken lange Nachimpulse, die infolge Ueberlagerungen Linienverbreiterungen und -asymmetrien zur Folge haben. Dieser störende Effekt kann vermieden werden, wenn an der Anode nur der Signalanteil der Elektronen gemessen wird. Nach einem Vorschlag von O. R. Frisch wird die Anode durch ein Gitter aus dünnen, parallelen Drähten von den positiven Ionen abgeschirmt. Die α -Teilchen müssen dabei allerdings vollständig zwischen Kathode und Gitter absorbiert werden. Die Theorie dieser Gitterionisationskammer wurde von Bunemann, Cranshaw und Harvey [3] aufgestellt und durch

Experimente bestätigt. Danach müssen zur Optimalisierung der Energieauflösung folgende zwei Bedingungen gegeneinander abgewogen werden:

- 1) Der Durchgriff σ des Gitters ($\sigma \sim dE_a/dE_c$; E_a und E_c sind die Feldstärken zwischen Anode und Gitter bzw. Gitter und Kathode) soll möglichst klein sein (wenige%). Das bedeutet: Der Impuls, der an der Anode entsteht, wenn sich Ladungen zwischen Kathode und Gitter bewegen, soll klein sein. Die Berechnungen von Bunemann und Mitarbeitern ergaben:

$$\sigma = \frac{l}{a+l}; \quad l = \frac{d}{2}(\rho^2/4 - \ln \rho); \quad \rho = \frac{2\pi r}{d} \quad (2)$$

- 2) Die Elektronenabsorption des Gitters soll minimal sein, was erfüllt ist, wenn gilt:

$$\frac{E_a}{E_c} \geq \frac{1+\rho}{1-\rho} \quad \text{oder:} \quad \frac{U_a - U_g}{U_g - U_c} \geq \frac{a + a\rho + 2l\rho}{c - c\rho - 2l\rho} \quad (3)$$

r ist der Drahtradius, d der Drahtabstand, a bzw. c sind die Abstände zwischen Anode und Gitter bzw. Gitter und Kathode. U_a , U_g , U_c sind die Potentiale von Anode, Gitter und Kathode.

III. Beitrag der Elektronik zur Linienverbreitung

Der Beitrag, den die Elektronik an die Linienbreite des Spektrums leistet, lässt sich für einen einfachen RC-Bandpass-Rauschfilter mit folgender Formel berechnen [4, 5]:

$$(\text{FWHM}_{\text{Rauschen}}) = \frac{2,35, \epsilon, W}{e} \left\{ 4kTC_i^2 \left(\frac{R_n}{8\tau} + \frac{f_0}{2} \right) + \frac{\tau}{8} \left(\frac{4kT}{R_p} + 2eI_p \right) \right\}^{1/2} \quad (4)$$

Dabei ist $\epsilon = 2,718 \dots$, k die Boltzmann-Konstante, T die absolute Temperatur des Feldeffekttransistors (FET) und von R_p , C_i die totale Eingangskapazität des Vorverstärkers, die sich aus Kammer-, Verdrahtungs-, Rückkopplungs- und FET-Eingangskapazität zusammensetzt, R_n der äquivalente FET-Kanal-Rauschwiderstand, τ die Zeitkonstante des Rauschfilters, f_0 die Flicker-Rauschkonstante (wird durch geeignete Auswahl des FET klein gemacht), R_p der totale, parallel zum Eingang liegende Widerstand, welcher sich aus Isolations-, Verlust-, Eingangs- und Rückkopplungswiderstand R_f zusammensetzt, e die Elementarladung und I_p der total in den Eingang fließende Störstrom (Kammerleckstrom und FET Gate-Kanal Sperrschichtleckstrom).

Zur Minimalisierung des Rauschanteils soll C_i klein, R_p hingegen möglichst gross sein. Letzterer ist meist ungefähr gleich dem Rückkopplungswiderstand R_f und ergibt zusammen mit der Rückkopplungskapazität die Entladezeitkonstante des Vorverstärker-Integrators. Wegen der Empfindlichkeit auf hohe Stossraten darf diese Zeitkonstante höchstens einige ms betragen. Im weiteren wird durch geeignete Auswahl des FET und seines Arbeitspunktes R_n und I_p klein gemacht. Dabei versucht man I_p und R_n (das für einen 'guten' FET umgekehrt proportional zur Steuersteilheit ist) klein zu machen, ohne dass C_i durch die FET-Eingangskapazität wesentlich vergrößert wird. Schliesslich wird τ so gewählt, dass das Serie- d.h. Spannungsrauschen



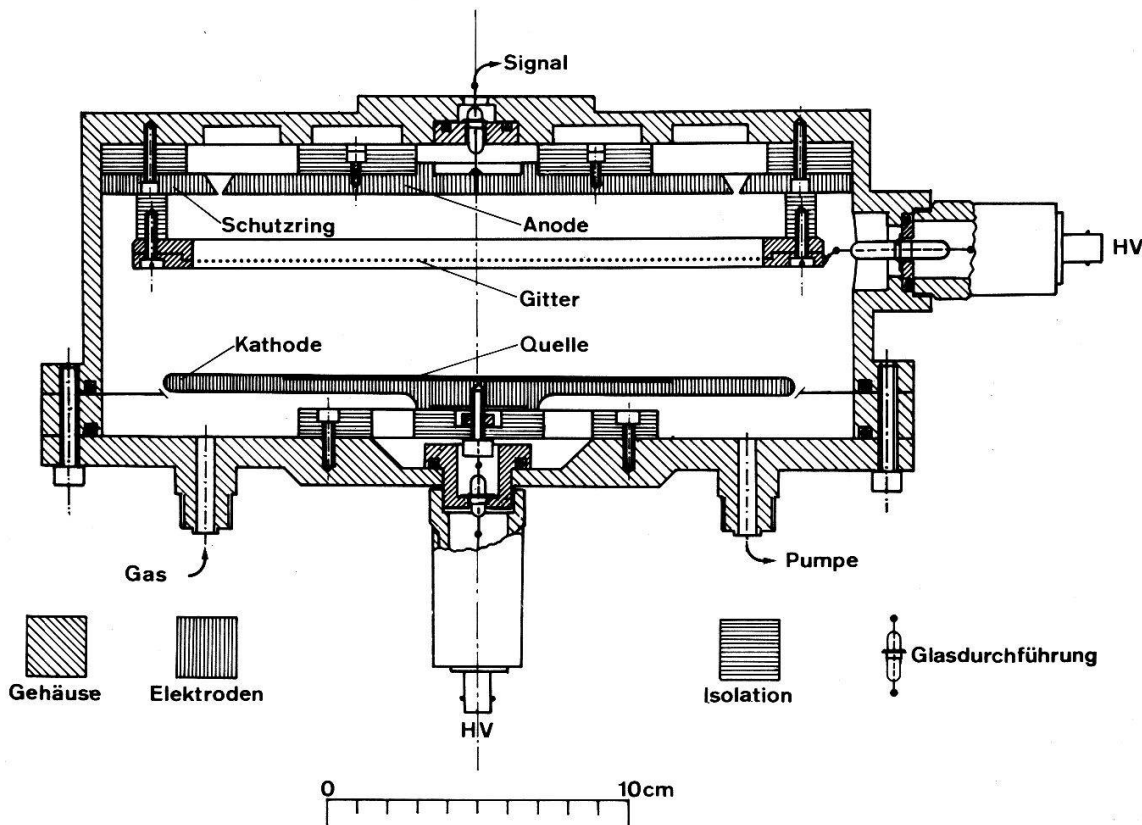
($\sim 1/\tau$) gleich gross wie das Parallel- d.h. Stromrauschen ($\sim \tau$) wird. Diese optimisierte Zeitkonstante beträgt einige μs und ist durch folgende Beziehung gegeben:

$$\tau_{\text{opt}} \approx C_i \sqrt{R_n / \left(\frac{1}{R_p} + \frac{eI_p}{2kT} \right)} \quad (5)$$

Durch geeignete Wahl der Verstärkung – mindestens fünf Kanäle pro Linie – lässt sich die endliche Kanalaufösung vernachlässigen. Durch Kopplung eines in Energie geeichten Impulsgenerators über eine kleine Kapazität an den Eingang des Vorverstärkers kann der Beitrag der gesamten Elektronik an die Energieauflösung (FWHM) gemessen werden.

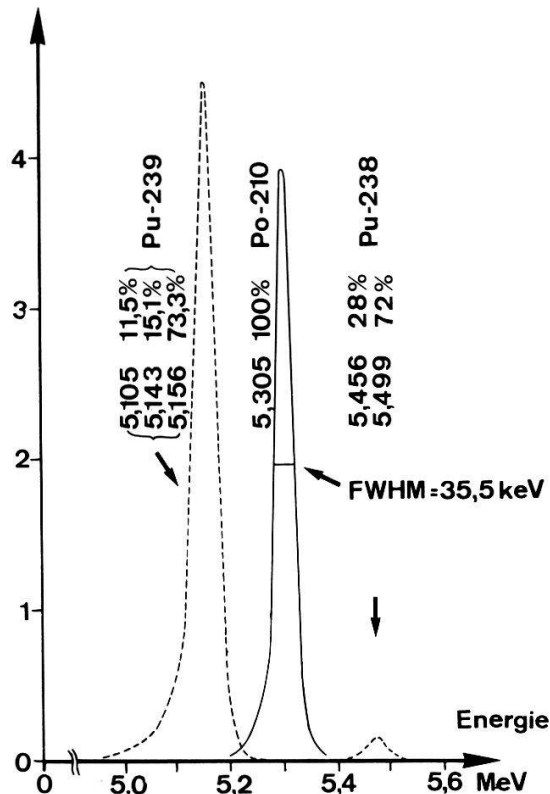
IV. Messanlage

Figur 1 zeigt das Schema der gesamten Messanlage und Fig. 3 eine Skizze der verwendeten Kammer. Die Kammer ist aus vernickeltem Stahl und wird mit 2 atü eines Gasgemisches von 90% Argon und 10% Methan gefüllt. Der Abstand zwischen Anode und Gitter (a) beträgt 22,5 mm, derjenige zwischen Gitter und Kathode (c) 37,5 mm, der Drahradius (r) 0,1 mm und der Drahtabstand (d) 3 mm. Diese Werte ergeben ein σ von 3,2%. Nach [3] muss E_a/E_c im vorliegenden Fall grösser als 1,564 sein. Durch Wahl von $(U_a - U_g)/(U_g - U_c) = 1$ wird der Quotient aus den beiden Feldstärken 1,59. Die an der Kathode angelegte Hochspannung beträgt -3600 V. Diese Anordnung mit



Figur 3
Skizze der Gitterionisationskammer.

negativer Hochspannung und isolierter Anode ermöglicht eine Direktkopplung an den Vorverstärkereingang und vermeidet somit die Streukapazität eines Hochspannungskondensators. Der Leckstrom durch die Isolation auf der Hochspannungsseite ist durch den Hochspannungsfiler vom Signaleingang entkoppelt und trägt nicht zum Rauschen bei. Der Ladungsintegrationsstufe im Vorverstärker wurde zur Anpassung an den Rauschpegel des Hauptverstärkers eine Spannungsverstärkungsstufe nachgeschaltet. Zur Verkürzung des Ausgangssignales und Verminderung der Empfindlichkeit auf hohe Stossraten wurde ein erstes Differentiationsglied mit 'Pole-zero-cancellation' ($\tau = 40 \mu\text{s}$) dazwischengeschaltet.



Figur 4

α -Spektrum von elektrolytisch abgeschiedenen Po-210 und Pu-239 Eichquellen. (Messzeit rund 2 min.)

Da in einem α -Spektrum meist nur der Bereich zwischen 4 und 6 MeV interessiert, wurde ein 'Biased-Amplifier' mit 'Pulse-Stretcher' zwischen Hauptverstärker und Vielkanal geschaltet, so dass dieser Teil (4 . . . 6 MeV) des Energiespektrums über den ganzen Bereich des Vielkanales ausgedehnt wird. So stehen auch mit einem 512-Kanal-Analysator genügend Kanäle pro Linie zur Verfügung.

Eine gewisse Schwierigkeit bereitet die Empfindlichkeit der Kammer auf Fremdstörungen infolge ihrer Abmessungen (Anode = 'Antenne'). Deshalb wurden alle Gehäuse und Kammerbauteile durch Kupferlitzen sternförmig mit der Erde verbunden, und die Kathode mit doppeltem Tiefpassfilter mit gestaffelter Zeitkonstante entkoppelt.

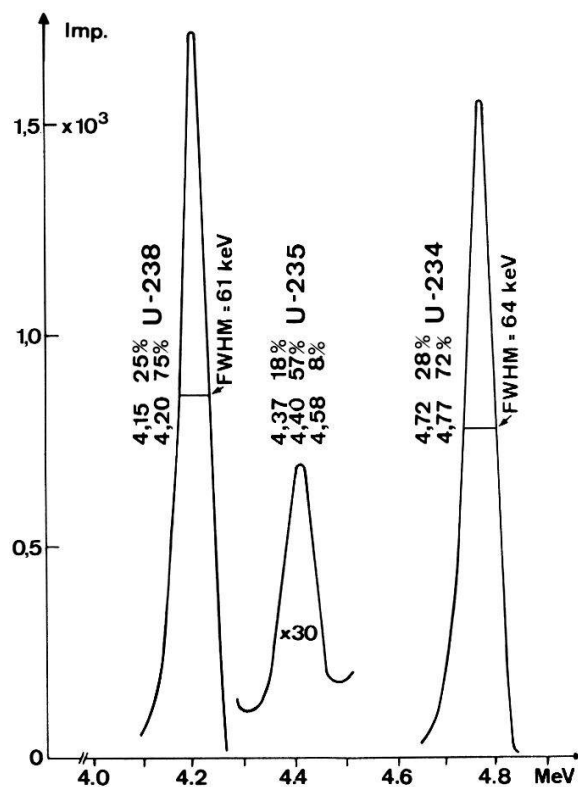
Eine hohe Reinheit des Zählgas und damit eine gute Stabilität des Spektrums sowie ein niedriger Nulleffekt werden durch zweimaliges Abspumpen der Kammer vor

jeder Messung auf 1/100 Torr mit Drehschieberpumpe und Ionenbaffle erreicht. Nötigenfalls wird die Kammer ausgeheizt oder die Bauteile mit Ultraschall gereinigt. So konnte ein Nulleffekt von lediglich 7,2 Imp/h im Intervall von 4 bis 6 MeV erreicht werden, was eine untere Nachweisgrenze für Plutonium-239 von etwa 0,05 pCi ermöglicht.

Der Anteil der Elektronik an der Energieauflösung (FWHM) wurde mit einem Impulsgenerator gemessen; er beträgt 23 keV bei 5 MeV. Die Messung einer elektrolytisch abgeschiedenen Po-210-Quelle ($E_\alpha = 5,305$ MeV, 100%; Selbstabsorption kleiner als 1 keV) ergab eine Halbwertsbreite von 35,5 keV (Fig. 4).

V. Die Probenaufbereitung

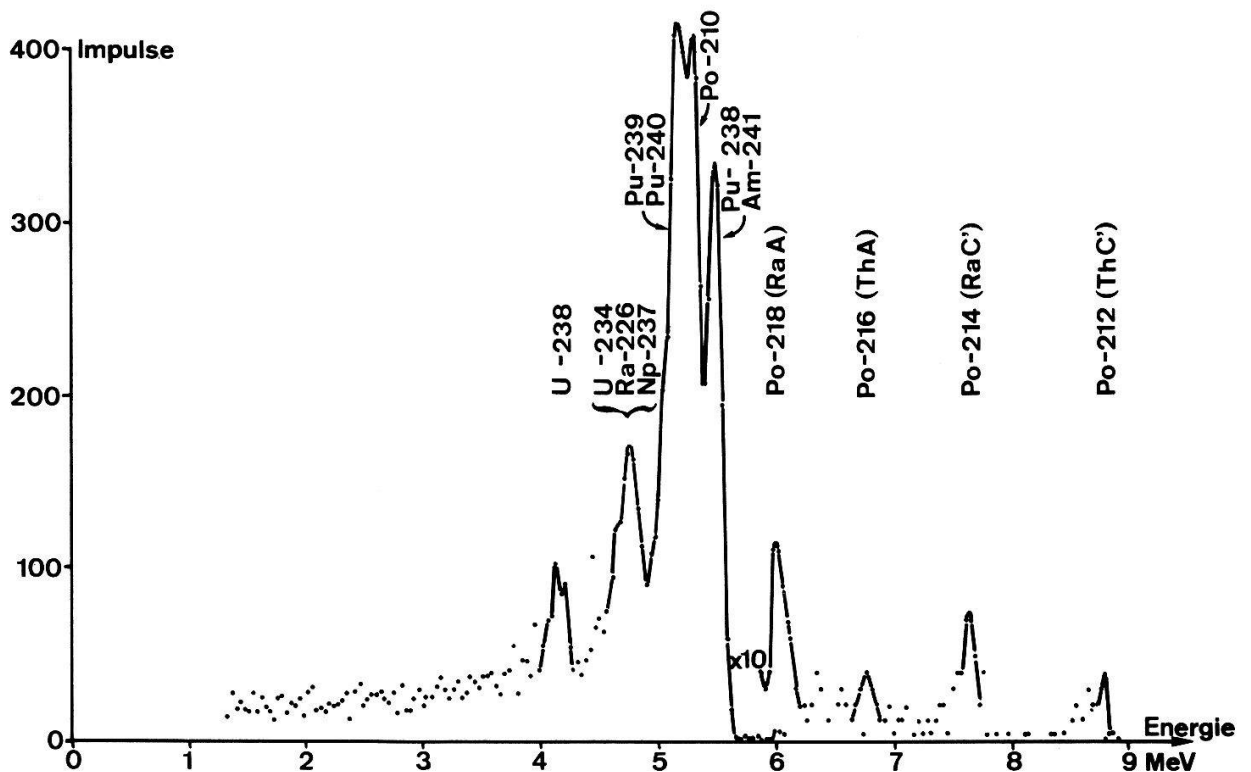
Figur 5 zeigt das Spektrum einer Probe von Uranylнитrat natürlicher Isotopenzusammensetzung (0,7% U-235) das im Vakuum bei etwa 2000°C auf eine Aluminiumscheibe aufgedampft wurde. Infolge der geringen Schichtdicke der Quelle wurde eine sehr gute Energieauflösung der α -Linien von U-238 (4,2 MeV), U-235 (4,4 MeV) und U-234 (4,7 MeV) erreicht. Das Aufdampfen bringt allerdings bei Gemischen verschiedener Elemente infolge ihrer unterschiedlichen Siedepunkte eine Fraktionierung mit sich, was in diesem Fall eine quantitative Isotopenbestimmung wegen der Unsicherheit in der Ausbeute des Aufdampfprozesses nicht erlaubt, jedoch die Identifizierung der in der Probe vorhandenen Isotope gestattet.



Figur 5

α -Spektrum von Uranylнитrat natürlicher Isotopenkonzentration, das im Vakuum bei 2000°C auf eine Aluminiumscheibe aufgedampft wurde. Messzeit $4\frac{3}{4}$ Std.

Im Rahmen der Umweltradioaktivitätsüberwachung kommen als Probenmaterialien hauptsächlich Luftfilter, Niederschlags-, Abwisch- und Bodenproben und eventuell auch biologische Proben in Frage. Im allgemeinen wird das Material zuerst mineralisiert (verascht und geglüht bei 700°C). Da beim Glühen jedoch Verluste auftreten (Polonium verdampft fast vollständig) kann auch eine Nassveraschung mit Perchlorsäure erfolgen. Beim einfachsten Verfahren wird der Rückstand anschliessend mit Säure in Nitrate oder Chloride umgewandelt, die, in wenig Wasser gelöst, mit einer Spritze als kleine Tropfen auf einen erhitzten Quellenträger (110°C) aufgebracht werden, wo sie sofort eintrocknen. Diese Methode erfordert wenig Aufwand und liefert Quellen mit Halbwertsbreiten von 100 bis 150 keV, was in den meisten Fällen eine Identifizierung der α -Linien und eine für den Strahlenschutz genügend genaue



Figur 6

α -Spektrum einer Luftfilterprobe (ca. 1090 kg Luft) aus der oberen Troposphäre vom 18.5.1967. Die Filterasche wurde als Chloride in wässriger Lösung auf dem Quellenträger eingedampft. Messzeit 2 Tage.

Aktivitätsbestimmung der entsprechenden Isotope erlaubt. Unsicherheiten in der Identifikation der Isotope können durch die 'Aufdampfmethode' eliminiert werden. Mit dieser Methode können Proben mit einer spezifischen Aktivität von wenigen pCi/g Substanz (mineralisiert) gemessen werden. Für die Herstellung einer Quelle (maximale Fläche 135 cm²) genügen 20 bis 30 mg. Als Beispiel zeigt Fig. 6 das Alpha-Spektrum einer Luftfilterprobe aus der oberen Troposphäre vom 18.5.1967. Zwischen dem Glühen und der Messung dieser Probe, die sehr wahrscheinlich die Spaltprodukte einer chinesischen Testexplosion von 1966 enthält, liegt ein Zeitraum von 6 Monaten. In dieser Zeit ist das Polonium-210 wieder etwa zur Hälfte aus dem Blei-210 nachgewachsen. Nebst den Isotopen aus den natürlichen Zerfallsreihen (Po-218, 214 und 210 aus der Uran-Radium-Reihe und Po-216, 212 aus der Thorium-Reihe) erkennt man im Energiespektrum die Linien der künstlichen Isotope Pu-239 + 240 sowie Am-241 +

Pu-238, U-238 und U-234 – die Linie des letzteren enthält noch Spuren von Np-237 und Ra-226 – stammen wahrscheinlich von ungespaltenem Bombenmaterial.

Für genauere Angaben über die Aktivität einzelner Isotope (Uran, Americium, hauptsächlich aber Plutonium) werden bestimmte Elemente chemisch abgetrennt. Durch Ausschütteln mit dem organischen Komplexator TiOA (= Tri-Iso-octyl-amin) in Xylol können gewisse Alpha-Strahler aus der HCl-Lösung abgetrennt werden [6, 7]. Die Rückextraktion aus der organischen Phase erfolgt für Plutonium mit NH_4I in HCl und für Uran mit 0,1 N-HCl. Aus dem eingedampften Rückstand wird auf die oben beschriebene Weise eine Quelle hergestellt (Tropfen auf heiße Scheibe). Mit dieser Methode können Plutonium-Aktivitäten von 0,05 pCi noch nachgewiesen werden.

Eine weitere Möglichkeit der Separation ist die Extraktion mit TTA (= Thenoyl-tri-fluor-aceton) in Benzol [6, 8, 9]. Die organische Phase wird in einem Uhrenglas eingedampft und der TTA-Rückstand mit Hilfe eines Sandbades und eines Brenners oxydiert. Diese Methode erlaubt ohne Rückextraktion die Herstellung einer praktisch trägerfreien Quelle. Die Messung solcher Quellen mit der Gitterionisationskammer ergab eine Halbwertsbreite von rund 80 keV bei 5,15 MeV. Die chemische Ausbeute der beiden Separationsmethoden kann durch Mitextraktion einer bekannten Menge eines Tracer-Isotopes (Pu-236, U-233) ermittelt werden. Sie liegt bei 80%.

Auf diese Weise ist es möglich ohne zeitraubende Fällungen und Elektrolysen nach wenigen Stunden die Aktivität und Zusammensetzung einer Probe bezüglich Alpha-Strahler zu bestimmen. Eine Plutonium-Aktivität der Luft von 0,02 pCi/m³ (= max. zulässige Konzentration für die Allgemeinbevölkerung) könnte bei einem Luftdurchsatz von 60 m³/h einer Luftfiltrieranlage bereits nach einer Sammelzeit von weniger als einer Stunde nachgewiesen werden.

LITERATUR

- [1] KAI SIEGBAHN, *Alpha- Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy* (Amsterdam 1965), Vol. 1, Kap. I, p. 1 ff, und Kap. IV, p. 310 ff.
- [2] HUGO NEUERT, *Kernphysikalische Messverfahren* (Karlsruhe 1966), Kap. 1, p. 1 ff, und Anhang p. 495 ff.
- [3] O. BUNEMANN, T. E. CRANSHAW und J. A. HARVEY, *Design of grid ionization chambers*, Can. J. Res. 27, 191 (1949).
- [4] T. B. BLALOCK, *A low-noise preamplifier with a FET in the input stage*, IEE Trans. Nucl. Sci. NS 11/3, 365–372 (June 1964).
- [5] V. RADEKA, *State of the Art of Low-noise Amplifiers for Semiconductor Radiation Detectors, Proceedings of the International Symposium on Nuclear Electronics, Versailles 1968*, Vol. 1, No. 46.
- [6] J. P. GHYSELS, *Kernkraftwerk Mühleberg BE*, Schweiz: pers. Mitteilungen.
- [7] F. E. BUTLER, *Rapid bioassay methods for plutonium, neptunium and uranium*, Health Physics 15, 19–24 (1968).
- [8] J. P. GHYSELS, H. BÄCHLI und H. VÖLKLE, *Simple Analytical Method for the Determination of Plutonium in Liquid Waste, Filter and Smear Probes using Pu-236 Tracer and an Alpha Ionisation Chamber*. (Wird demnächst publiziert.)
- [9] R. A. DEAL und R. N. CHANDA, *A rapid source preparation technique for high-resolution alpha-spectroscopy*, NIM 69, 89–92 (1969).