

# Vergleichsmessungen von Ge- und NaI-Spektrometern an kristallinen Gesteinen

## DIPLOMARBEIT

Am Institut für Geophysik  
Der Eidgenössischen Technischen Hochschule Zürich  
Forschungsgruppe Geothermik und Radiometrie

vorgelegt von

**CARLO CIRILLO**

**Betreuung:**

**PD. Dr. Thomas Kohl**

Zürich, Mai 2001

<b>1</b>	<b>ZUSAMMENFASSUNG</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>EINLEITUNG</b>	<b>3</b>
<b>3</b>	<b>THEORIE</b>	<b>4</b>
3.1	ALLGEMEIN	4
3.2	GRUNDLAGEN	5
3.3	NATÜRLICHE RADIOAKTIVE ZERFALLSREIHE	8
3.4	WECHSELWIRKUNGEN ZWISCHEN STRALUNG UND MATERIE	9
<b>4</b>	<b>PROBEN</b>	<b>17</b>
4.1	GESTEINSPROBEN	17
4.2	GESTEINSDICHTEBESTIMMUNG	17
4.3	PROBENVORBEREITUNG	19
<b>5</b>	<b><math>\gamma</math> - SPEKTROMETER</b>	<b>20</b>
5.1	MESSAPPARATUR	20
5.2	DETEKTOREN	21
<b>6</b>	<b>MESSMETHODE</b>	<b>26</b>
6.1	ANLEITUNG	26
6.2	MESSVERFAHREN	27
<b>7</b>	<b>AUSWERTUNGSMETHODE: KONZENTRATIONS- UND WÄRMEPRODUKTIONSBESTIMMUNG</b>	<b>31</b>
7.1	ISOTOPENKONZENTRATIONSBESTIMMUNG NACH DEM FENSTERMETHODE (FÜR NAI)	31
7.2	ISOTOPENKONZENTRATIONSBESTIMMUNG BEIM GE-SPEKTROMETER:	37
7.3	WÄRMEPRODUKTIONSBESTIMMUNG	40
<b>8</b>	<b>RESULTATE</b>	<b>41</b>
8.1	WÄRMEPRODUKTION DER KORALMPROBEN	46
<b>9</b>	<b>UNTERSUCHUNG DER AUSWERTUNGSMETHODE</b>	<b>49</b>
9.1	AUSWERTUNG DER GE-SPEKTREN MIT FENSTER-METHODE	49
9.2	AUSWERTUNG DER GE-SPEKTREN MIT GEWICHTUNGEN	51
9.3	PROBLEME BEI DER ERMITTLUNG DER FENSTER-IMPULS-INHALT BEIM NAI-SPEKTROMETER	53
<b>10</b>	<b>BESTIMMUNG DER FI-KOEFFIZIENTEN ANHAND VON PROBEN</b>	<b>60</b>
<b>11</b>	<b>UNTERSUCHUNG DER SPEKTRENFORM: FITTING VON SPEKTREN</b>	<b>63</b>
<b>12</b>	<b>DISKUSSION UND SCHLUSSFOLGERUNG</b>	<b>66</b>
12.1	VOR- UND NACHTEIL BEIDER MESSMETHODEN	68
<b>13</b>	<b>AUSBLICK</b>	<b>69</b>
<b>14</b>	<b>LITERATURVERZEICHNIS</b>	<b>70</b>
<b>15</b>	<b>ANHANG</b>	<b>71</b>

---

# 1 ZUSAMMENFASSUNG

In dieser Diplomarbeit werden zwei  $\gamma$ -Spektrometer für die Messung von radioaktiver Strahlung verglichen. Von den beiden Messgeräten basiert eines auf einem Germanium- und das zweite auf einem Natriumjodid-Detektor. Wegen ihrer unterschiedlichen Spektren-Auflösung erfolgt die Auswertung der Spektren mit unterschiedlichen Methoden. Der Vergleich der beiden Spektrometer wird an 15 Gesteinsproben, aus Bohrkernen eines Tunnelprojektes stammend, durchgeführt. Für diese Proben ist die Wärmeproduktion bestimmt wurden, welche auf die radioaktive Strahlung der Gesteine zurückzuführen ist. Die berechneten Wärmeproduktionswerte liegen im für Gesteine aus gleicher Lithologie typischen Spektrenbereich.

Die Bestimmung der Konzentration der Elemente Kalium, Uran und Thorium in den Proben hat ergeben, dass die Spektren der zu vergleichenden Messgeräte nicht zu vernachlässigende Unterschiede aufweisen. Die gemessenen Konzentrationswerte für K, U und Th liegen für das Ge-Spektrometer 3%, 20.7% bzw. 10.7% unterhalb der Messwerte des NaI-Spektrometers. Auf der Grundlage dieser Ergebnisse wird vermutet, dass die Kalibrierung des Ge-Spektrometers, das heisst die  $\gamma$ -Ausbeutekurve nicht korrekt ist. Die gemessene spezifische Aktivität von Standards ist kleiner als jene, welche aufgrund der Isotopenkonzentrationen zu erwarten wäre. Daraus resultiert der Verdacht, dass die vor 10 Jahren am Institut berechnete  $\gamma$ -Ausbeutekurve zu hoch geschätzt wurde. Die Wahrscheinlichkeit eines Fehlers bei der Isotopenbestimmung (Konzentrationen) am NaI-Spektrometer scheint geringer, da diese anhand von Vergleichsmessungen zu K-, U- und Th-Standards erfolgen, deren Konzentration aus einer chemischen Analyse bekannt sind.

Um die Ursache für die Unterschiede in den Konzentrationsresultaten herauszufinden, wurden verschiedene Auswertungsmethoden an den gemessenen Ge-Spektren getestet, deren Ergebnisse der Isotopenkonzentration mit denen des NaI-Spektrometer vergleichbar sind. Bei

der Auswertung der Ge-Spektren mit der Fenstermethode, wie sie allgemein für NaI-Spektren eingesetzt wird, reduzieren sich die Abweichungen der Konzentrationen auf 3% für K, 4% für U und 6% für Th. Die Auswertung der spezifischen Aktivitäten anhand von Gewichtungen ergibt mittlere Abweichungen von 2.6% für K, 5.4% für U sowie 4% bei Th liegen. Ein Versuch, die beim NaI-Spektrometer zur Bestimmung der K-, U- bzw. Th-Konzentrationen nötigen Koeffizienten anhand von Gesteinsproben anstelle von Standards zu ermitteln zeigte, dass dies nicht praktikabel ist, da die so festgelegten Koeffizienten wenig stabil sind. Durch die Überprüfung der Linearitäts-Annahme bei der Spektren-Superposition anhand einer graphischen Methode ist es schliesslich gelungen, zufriedenstellende Resultate für das Ge-Spektrometer zu produzieren.

---

## 2 EINLEITUNG

Die Forschungsgruppe für Geothermik und Radiometrie des Institut für Geophysik der ETHZ verfügt über ein gut ausgerüstetes petrophysikalisches Labor für thermische Parameter. Es beinhaltet unter anderem ein Hochrein-Germanium- und ein NaI-Spektrometer. Für Wärmeproduktionsbestimmungen wurde bis jetzt das NaI-Spektrometer benutzt. In den letzten 10 Jahren, seit der Errichtung des Ge-Spektrometer-Messplatzes, wurden auch im Rahmen von Diplom- und Semesterarbeiten verschiedene Messungen am Ge-Messgerät durchgeführt. Bisher fehlen Vergleichsmessungen der beiden Messgeräte. Einen solchen Vergleich durchzuführen, ist Aufgabe dieser Diplomarbeit. Die zur Verfügung stehenden Proben, charakterisiert in Kapitel 4, sind für die Problemstellung gut geeignet, weil diese sowohl relativ starke wie schwache Radioaktivität aufweisen und somit einen Vergleich über einen breiten Aktivitätsbereich ermöglichen.

Ziel dieser Arbeit ist ein Vergleich der Messresultate bzw. Messmethoden der beiden zu vergleichenden  $\gamma$ -Spektrometer. Es soll insbesondere die Einsatzbereitschaft bzw. die Zuverlässigkeit des Ge-Spektrometer geprüft werden. Es sollen weiterhin die Konzentrationen an Kalium, Uran und Thorium von 15 Gesteinsproben bestimmt werden, die als Basis für die Berechnung der Gesteinswärmeproduktion dieser Proben dienen.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt strukturiert. Zunächst werden die theoretischen Grundlagen und Zusammenhänge des radioaktiven Zerfalls (Kapitel 3) sowie Erläuterungen zu Messmethode, -verfahren und -ablauf (Kapitel 5 bis 7) gegeben. Die Messresultate werden im Kapitel 8 ff. vorgestellt und diskutiert. Bilanzziehende Schlussfolgerungen zu den Messergebnissen im Hinblick auf die Aufgabenstellung enthält Kapitel 12.

---

## 3 THEORIE

### 3.1 ALLGEMEIN

Alle Elemente, deren Ordnungszahl  $Z$  grösser als 83 ist, sind radioaktiv. Sie zerfallen ohne äussere Einflüsse in stabile Endprodukte und senden dabei Strahlungen aus, meist sind es  $\alpha$ - (Heliumkerne),  $\beta$ - (Elektronen) oder  $\gamma$ -Strahlung (elektromagnetische Wellen mit sehr hoher Quantenenergie). Andere radioaktive Elemente zerfallen unter Positronen-Emission oder durch Elektronen-Einfang. Während die natürlichen radioaktiven Isotope der meisten leichten Elemente durch einen einmaligen Zerfall in ihre stabilen Endprodukte zerfallen, produzieren die langlebigen stark radioaktiven Elemente beim Zerfall Tochterisotope, die ihrerseits wieder radioaktiv sind. Es entstehen Zerfallsreihen, die erst enden, wenn ein stabiles Endglied erreicht ist.

Die Wärmeproduktion der Erdkruste wird hauptsächlich durch den Zerfall der natürlichen radioaktiven Elemente Uran, Thorium und Kalium verursacht. Die Bestimmung der Wärmeproduktion an ausgewählten Stellen der Erdkruste durch repräsentative Proben kann anhand ihrer emittierten Strahlung erfolgen. Als Untersuchungsmethode wird die  $\gamma$ -Spektrometrie angewandt. Diese Methode erlaubt es, die drei wichtigsten radioaktiven Elemente simultan zu erfassen und so die Konzentrationen der Elemente zu bestimmen. Die Konzentrationen bilden dann wiederum die Grundlage für weitere Berechnungen, beispielsweise der Wärmeproduktion.

## 3.2 GRUNDLAGEN

Die Aktivität einer Anzahl  $N$  gleicher Atome ist definiert als die *Zerfallsrate*  $dN/dt$  und wird durch das Fundamentalgesetz des radioaktiven Zerfalls beschrieben:

$$\left. \frac{dN}{dt} \right|_{\text{Zerfall}} = -\lambda N \quad (1)$$

Die Lösung dieser Differentialgleichung lautet:

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2)$$

$dN/dt$  Zerfallsrate

$\lambda$  Zerfallskonstante von Nuklid  $N_i$  [ $s^{-1}$ ]

$N$  Anzahl radioaktiver Nuklide

$N_0$  Anzahl der radioaktiven Nuklide zum Zeitpunkt  $t=0$

Die Einheit der Aktivität ist Becquerel (Bq), definiert als ein Zerfall pro Sekunde. Die *spezifische Aktivität* einer radioaktiven Quelle ist als Aktivität pro Masseneinheit (Bq/g oder Bq/kg) der Radioisotopen-Probe definiert. Ist die Hälfte der ursprünglichen Atome eines Radioisotopes zerfallen ( $N(t) = N_0/2$ ), ist dessen in Gl 3 definierte *Halbwertszeit*  $T_{1/2}$  erreicht.

$$T_{1/2} = \ln(2/\lambda) \quad (3)$$

Jedes instabile Isotop besitzt eine charakteristische Halbwertszeit, die je nach Isotop von Nanosekunden bis  $10^{15}$  Jahren reichen kann. Befinden sich mehrere radioaktive Elemente ( $N_A$ ,  $N_B$ ,  $N_C$ ) einer natürlichen Zerfallsreihe (Kapitel 3.3) über sehr lange Zeit in einem geschlossenen System, wird sich ein radioaktives Gleichgewicht einstellen, das heißt, die Aktivitäten  $A_i = \lambda_i \cdot N_i$  der verschiedenen Elemente  $N_i$  sind gleich.

In einem geschlossenen System wird die Änderung  $\frac{dN_B}{dt}$  der Menge eines Tochterisotopes  $N_B$  als Bilanz zwischen dem aus dem Mutterisotop  $N_A$  neu geschaffenen Tochterisotop und dem infolge Zerfall verlorenen Tochterisotop durch Gl. 4 gegeben:

$$\frac{dN_B}{dt} = N_A \lambda_A - N_B \lambda_B \quad (4)$$

In einem geschlossenen System, in dem sich die Menge eines Isotops nur aufgrund des Zerfallsprozesses ändern kann, wird nach einer Zeit  $t=t_{\max}$  ein Gleichgewicht erreicht, wenn  $dN_B/dt$  gleich Null ist:

$$t_{\max} = \frac{1}{(\lambda_B - \lambda_A)} \cdot \ln\left(\frac{\lambda_B}{\lambda_A}\right) = \frac{\tau_A \tau_B}{\tau_A - \tau_B} \cdot \ln\left(\frac{\tau_A}{\tau_B}\right) \quad (5)$$

Dieses Gleichgewicht lässt sich durch Gl 6 ausdrücken:

$$\lambda_A \cdot N_A = \lambda_B \cdot N_B = \lambda_C \cdot N_C \quad (6)$$

Die Zerfallsreihen von Uran und Thorium bilden solche Gleichgewichte. Bei diesen sind die Halbwertszeiten der Mutterisotope im Vergleich zu denen ihrer Tochterisotope sehr lang, es kann also über lange Zeit ein stabiles Gleichgewicht gebildet werden, vorausgesetzt, das System bleibt geschlossen.

### **Energie der emittierten Strahlung:**

Die Masseneinheit der *Energie* ist als Elektronenvolt (eV) definiert. Darunter versteht sich die kinetische Energie die ein einzelnes Elektron gewinnt, wenn es durch eine Potentialdifferenz von einem Volt beschleunigt wird. Die Faktoren Kiloelektronenvolt (keV) und Megaelektronenvolt (MeV) sind besser geeignet, ionisierende Strahlungen, wie durch radioaktiven Zerfall freigesetzt, zu beschreiben.  $\gamma$ -Strahlen können anhand ihrer Energiemenge E sowie ihrer Frequenz  $\nu$  (bzw. ihre Wellenlänge  $l$ ) charakterisiert werden. Die Energie E eines  $\gamma$ -Strahlungsphotons steht mit dessen Strahlungsfrequenz in folgendem Zusammenhang.

$$E = h\nu \quad (7)$$

Der Zusammenhang zwischen *Wellenlänge*  $l$  und Photonenenergie wird wie folgt beschrieben:

$$l = \frac{1.240 \cdot 10^{-6}}{E} \quad (8)$$



$l$	Wellenlänge des Photons	m
$E$	Energie des Photons	eV
$h$	Planck'sche Konstante	$6.626 \cdot 10^{-34}$ Js bzw. $4.135 \cdot 10^{-15}$ eVs
$\nu$	Frequenz	Hz

Untersuchungen mittels  $\gamma$ -Spektrometrie werden allgemein im Bereich von 10 bis 3000 keV durchgeführt. Es handelt sich bei der  $\gamma$ -Strahlung um weitreichende elektromagnetische Strahlung, deren Wellenlänge sich über den Bereich  $10^{-7} - 10^{-11}$  cm erstreckt (als Frequenz ausgedrückt:  $10^{17}$  und  $10^{21}$  s $^{-1}$ ). In den Detektionsprozess radioaktiver Strahlungen sind verschiedene Faktoren involviert, welche sich in zwei Klassen zusammenfassen lassen:

- Art der Emission und Zerfallschema der instabilen Nuklide.
- Wechselwirkungen zwischen Strahlung und Materie.

Die Art der Emission und das Zerfallschema von instabilen Nukliden sind in Tabelle 1 zusammengefasst:

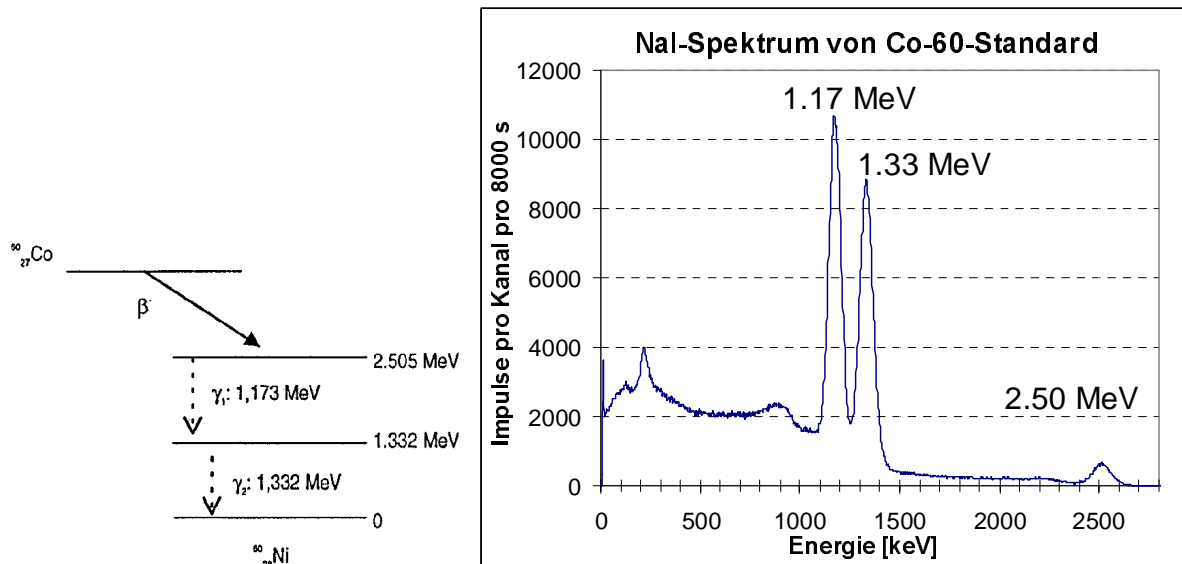
**Tabelle 1:** Zerfallsarten bzw. -schema instabiler Kerne, X, Y bezeichnen verschiedene Kerne, n Neutron, p Proton, e $^{-}$  Elektron, e $^{+}$  Positron,  $\bar{\nu}_e$  Neutrino,  $\nu_e$  Antineutrino, A Massenzahl, Z Protonen, N=(A-Z) Neutronenanzahl, \* angeregter Zustand

Transformation	Abkürzung	Vorgang	Auftreten
Spontane Spaltung	SF	${}_{98}^{252}\text{Cf}_{154} \rightarrow {}_{55}^{142}\text{Cs}_{87}^* + {}_{43}^{105}\text{Tc}_{62}^* + 5n$	bei A>250, selten darunter
Neutronenemission	N	${}^A_Z X_N \rightarrow {}^{A-1}_Z X_{N-1} + n$	bei grossem Neutronenüberschuss
Alpha-Strahlung	$\alpha$	${}^A_Z X_N \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2} Y_{N-2} + \alpha$	bei A>210 häufig
Positron-Strahlung	$\beta^+$	${}^A_Z X_N + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1} Y_{N+1} + e^+ + \nu_e$	bei Protonen- und Energieüberschuss
Elektroneneinfang	EC	${}^A_Z X + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1} Y_{N-1} + \nu_e$	bei schweren Kernen anstelle von $\beta^+$
Beta-Zerfall	$\beta^-$	${}^A_Z X_N \rightarrow {}^A_{Z+1} Y_{N-1} + e^- + \bar{\nu}_e$	bei Neutronen- und Energieüberschuss
$\gamma$ -Strahlung	$\gamma$	${}^A_Z X_N^* \rightarrow {}^A_Z X + \gamma$	bei Energieüberschuss
Protonenemission	p	${}^A_Z X_N \rightarrow {}^{A-1}_{Z-1} Y_N + p$	bei grossem Protonenüberschuss

### 3.3 NATÜRLICHE RADIOAKTIVE ZERFALLSREIHE

Die wichtigsten Radioelemente in der Erdkruste sind Kalium ( $^{40}\text{K}$ ), Thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) und Uran ( $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ ). Diese haben eine sehr grosse Halbwertszeit, weshalb sie im Gegensatz zu anderen Elementen vor mehreren Milliarden Jahren gebildeten schweren radioaktiven Elementen noch vorhanden sind. Die Isotope Uran $^{235}$ , Uran $^{238}$  und Thorium $^{232}$  (natürliche Zerfallsreihen), können nicht durch Emission eines einzelnen Teilchens stabilisiert werden. Es ereignet sich eine ganze Reihe von Abstrahlungen verschiedener Teilchen, bis der Zerfall bei einem nichtradioaktiven Element zum Stehen kommt (stets bei einem stabilen Blei-Isotop). Eine Serie von aufeinanderfolgenden Zerfallsereignissen eines radioaktiven Elementes wird radioaktive Zerfallsreihe genannt. Die erste Reihe beginnt mit Uran $^{238}$  und endet bei Blei $^{206}$ , der Zerfall von Thorium $^{232}$  hat als Endprodukt Blei $^{208}$ . Folgende Elemente sind zur Radioaktivitäts-Detektion durch  $\gamma$ -Spektrometrie besonders geeignet:  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  und  $^{214}\text{Bi}$  für  $^{238}\text{U}$ -Reihe sowie  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  und  $^{208}\text{Tl}$  für  $^{232}\text{Th}$ -Reihe. Die dritte natürliche Zerfallsreihe verläuft von Uran $^{235}$  zu Blei $^{207}$ .

Einfaches Beispiel eines Zerfallsschemas ist der in Abbildung 1 dargestellte Zerfall von  $^{60}\text{Co}$ , dessen Primärstrahlung auf einen  $\beta$ -Zerfall zurückgeht. Wegen seinem einfachen Zerfallsschema wird dieses Kobalt-Isotop häufig als Standard für die Messgerätkalibrierung genutzt. Die abgegebene Strahlung verursacht im Absorbermaterial des Messgerätes sekundär  $\gamma$ -Strahlung (vgl. Kapitel 5.2). Jedes instabile Isotop hat ein eigenes charakteristisches Zerfallsschema und ist durch die bei seinem Zerfall produzierten  $\gamma$ -Strahlung eindeutig bestimmbar. Damit lässt sich aus der erfassten  $\gamma$ -Linie auf das Mutterisotop schliessen.



**Abbildung 1:** Zerfallschema von  $^{60}\text{Co}$ . Rechte Abb. zeigt das resultierende  $\gamma$ -Spektrum (gemessen mit NaI-Spektrometer). Zu sehen sind die zwei vollenergetischen Peaks bei 1.17 bzw. 1.33 MeV und der Summations-Peak bei 2.5 MeV.

### 3.4 WECHSELWIRKUNGEN ZWISCHEN STRAHLUNG UND MATERIE

Die spektrale Antwort eines Strahlungsdetektors ist vor allem durch die Art des Zusammenwirkens von Strahlung und Detektormaterial bestimmt. Obwohl verschiedene Wechselwirkungsmechanismen zwischen  $\gamma$ -Strahlungen und Materie möglich und bekannt sind, haben nur drei davon wirklich Bedeutung (Knoll, 1989):

*Photoeffekt*

*Comptoneffekt* und

*Paarbildung.*

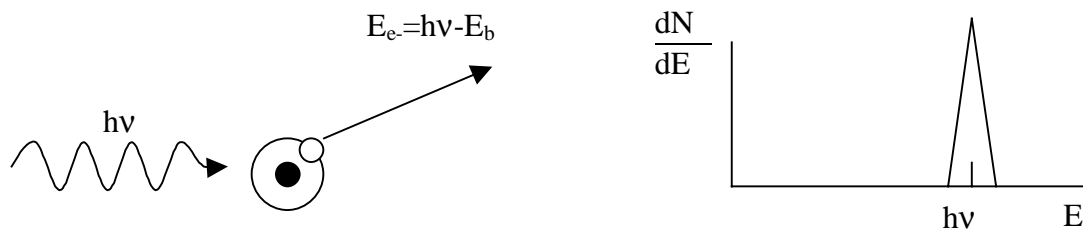
Diese Prozesse führen zur partiellen oder totalen Umwandlung der Photonen- in Elektronen-Energie. Dabei werden Photonen, die Energieträger der emittierten Strahlung, abrupt umgewandelt („verschwinden“) beziehungsweise umgelenkt.

### 3.4.1 Photoeffekt

Beim photoelektrischen Absorptionsprozess kollidieren Photonen mit Atomen (vgl. Abbildung 2, links), wobei das Photon vollständig absorbiert wird. An seiner Stelle wird ein Elektron vom Grenzorbital des Atoms emittiert. Für  $\gamma$ -Strahlen mit genügend grosser Energie ist die wahrscheinlichste Herkunft dieser Photoelektronen die erste Elektronenhülle (K-Schale). Demzufolge wird das Photoelektron die Energie  $E_{e^-}$  besitzen:

$$E_{e^-} = h \cdot \nu - E_b \quad (9)$$

$E_{e^-}$	Energie des Photoelektrons	[eV]
$E_b$	Bindungsenergie des Photoelektrons	[eV]



**Abbildung 2:** Photoelektrische Absorption: einfallendes Photon mit Energie  $h\nu$  interagiert mit einem Elektron der äusseren Elektronenhülle eines Atoms des Absorbermaterials (links). Dabei wurde der Detektor eine Energie gleich  $h\nu$  aufzeichnen (rechts)

Für  $\gamma$ -Strahlen mit  $E > 100 \text{ keV}$  übernimmt das Photoelektron den grössten Teil der ursprünglichen Photonenenergie. Das absorbierende Atom wird dafür ionisiert, das fehlende Elektron wird durch Elektroneneinfang aus dem Medium oder aus einem Elektron einer schwächeren Elektronenhülle schnell ersetzt. Dadurch entstehen charakteristische Röntgenstrahlen, die normalerweise wenig entfernt von Entstehungsort wieder absorbiert werden. Ausgehend von der vereinfachten Annahme, dass Röntgenstrahlen und die „befreiten“ Elektronen im Detektor bleiben, wird die ursprüngliche Photonenenergie vollständig im Detektor absorbiert. Deshalb ist der Photoelektrische Absorptionsprozess für Untersuchungen geeignet, bei denen die Messung der ursprünglichen  $\gamma$ -Strahlenenergie

interessiert. Die Verteilung der kinetischen Energie des Elektrons in einer Serie photoelektrischer Absorptions-Ereignisse von monoenergetischen  $\gamma$ -Strahlen wird die Form einer einfachen Deltafunktion haben, wie in Abbildung 2, rechts veranschaulicht. Der Photoeffekt ist die vorherrschende Art der Wechselwirkungen für niederenergetischen  $\gamma$ -Strahlen. Der Prozess verstärkt sich für absorbierendes Material mit grosser Atomzahl  $Z$ . Die Wahrscheinlichkeit  $\tau$  eines photoelektrischen Absorptionsprozesses in Abhängigkeit von  $E_\gamma$  und  $Z$  wird durch folgende Approximation definiert.

$$\tau = K \cdot \frac{Z^n}{E_\gamma^{3,5}} \quad (10)$$

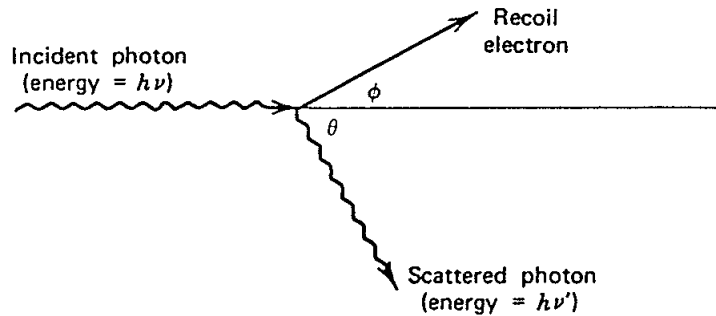
$E_\gamma$	Photon-Energie
K	Konstante
Z	Atomzahl
n	Konstante zwischen 4 und 5

Diese starke Abhängigkeit (Faktor n) der photoelektrischen Absorption von der Atomzahl  $Z$  des Absorbermaterials ist Grund für die Anwendung von Materialien mit hohem  $Z$  für die Aufgabe des Strahlenschutzes (z.B. Blei). Dieser Zusammenhang erklärt auch, weshalb sich in der  $\gamma$ -Spektroskopie Materialien mit hoher Atomzahl wie NaI und Germanium für den Bau von Detektoren durchgesetzt haben. Da die emittierte Photonenenergie  $h\nu$  eines Isotops charakteristisch für dasselbe ist, wird auch die durch den Photoeffekt produzierte Photoelektronenenergie charakteristisch für dieses Isotop sein, was seine Identifizierung ermöglicht. Wie in Kapitel 6.2.2 beschrieben wird, werden diese im Germanium- $\gamma$ -Spektrum als charakteristische scharfe  $\gamma$ -Linien für ein bestimmtes Isotop abgebildet. Der Photoeffekt ist somit das wichtigste Merkmal, um Isotope aus einem  $\gamma$ -Spektrum identifizieren zu können.

### 3.4.2 Comptoneffekt (Compton scattering)

Der Comptoneffekt findet zwischen dem einfallenden Photon der  $\gamma$ -Strahlung und einem Elektron des Absorptionsmaterials statt (siehe Abbildung 3 und Abbildung 7). Dies ist die massgebende Wechselwirkung für  $\gamma$ -Strahlen mit Zerfallsenergien von **0.5-3 MeV**. Beim Comptoneffekt wird das Photon durch ein Elektron mit einem Winkel  $\theta$  zu seiner ursprünglichen Richtung abgelenkt. Ein Teil der Photonenergie wird an das Elektron

abgegeben. Da alle Zerstreungswinkel  $\theta$  möglich sind, variiert auch die vom Photon an das Elektron abgegebene Energie zwischen Null und einem grossen Anteil der Strahlungsenergie ( $h\nu$ ; Gl. 11).



**Abbildung 3:** Compton-Streuung. Inkohärente Streuung eines Photons an einem freien Elektron (Knoll, 1989)

Die Relation zwischen abgegebener Energie des Photons und Streuwinkel ist durch (Gl. 11) beschrieben (Energie- und Trägheitserhaltungssatz).

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (11)$$

Dabei ist  $m_0c^2 = 0.501\text{MeV}$  die Elektronenenergie im Ruhezustand. Die kinetische Energie des zurückgestossenen Elektrons („recoil electron“ in Abbildung 3) ist demzufolge:

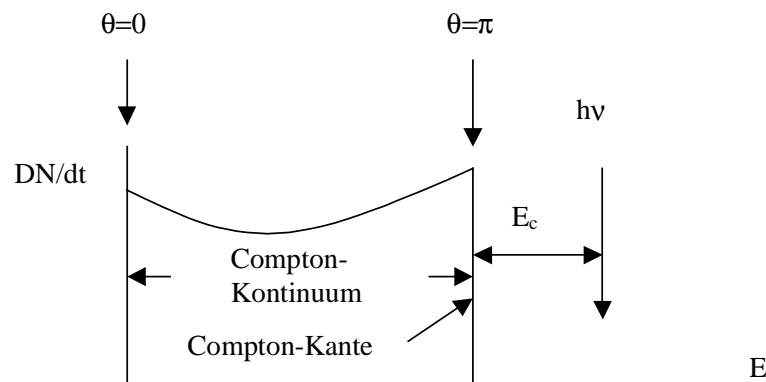
$$E_{e^-} = h\nu - h\nu' = \frac{(h\nu/m_0c^2)(1 - \cos\theta)}{1 + \frac{h\nu}{m_0c^2}(1 - \cos\theta)} \quad (12)$$

Die Compton-Streuung führt zu einer kontinuierlichen Verteilung der Energie, wie Abbildung 4 in idealisierter Weise zeigt. Die maximale Energie  $E_{e^- \text{max}}$  des Compton-Kontinuum wird gegeben durch Gl 13 und entspricht der Lage der sogenannten Compton-Kante. Diese entspricht somit im Spektrum der maximalen Energie des gestreuten Elektrons aus der Wechselwirkung mit einem bestimmten Photon. Der energetische Unterschied  $E_c$  zwischen

der maximalen Energie des Streuungselektrons und der einfallenden Photonenergie berechnet sich nach Gl 14.

$$E_{e^- \text{ max}} = E_e \Big|_{\theta=\pi} = hv \frac{2hv/m_0c^2}{1+2hv/m_0c^2} \quad (13)$$

$$E_c = hv - E_e \Big|_{\theta=\pi} = \frac{hv}{1+2hv/m_0c^2} \quad (14)$$



**Abbildung 4:** Compton-Effekt. Auswirkung der Compton-Streuung für einfallende Photonen mit Energie  $h\nu$ . Charakteristisch für den Compton-Effekt sind Compton-Kontinuum-Energie-Verteilung sowie Compton-Kante (modifiziert aus Knoll, 1989)

Die Wahrscheinlichkeit von Compton-Streuung bezogen auf ein Absorptionsatom hängt von der Zahl der zur Verfügung stehenden Elektronen im Absorbermaterial zusammen, weshalb sie mit zunehmender Atomzahl  $Z$  des Absorbermaterials steigt. Das bedeutet, dass sich je nach Detektormaterial die Größe des Compton-Kontinuums entsprechend ändert.

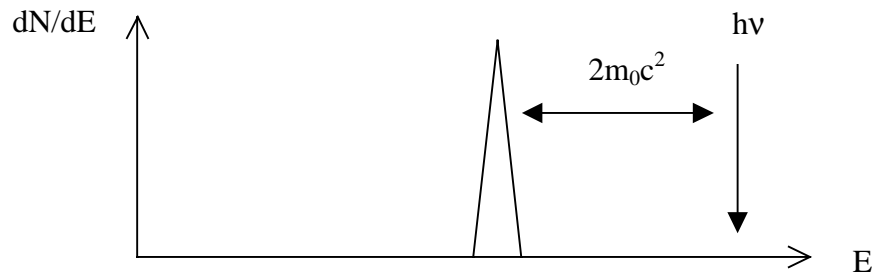
### 3.4.3 Paarbildung (Pair production)

Die Paarbildung findet im Atomkern-Bereich des Absorbermaterials statt und entspricht der Entstehung eines Elektron-Positron-Paares bei vollständiger Absorption des einfallenden Photons. Da eine Energie von  $2m_0c^2$  (doppelte Energie eines Elektrons im Ruhezustand) zur Erzeugung eines Elektron-Positron-Paares nötig ist, bedingt der Prozess eine minimale Strahlungs-Energie von 1.02 MeV. Bei dieser Energie ist das Stattfinden des Prozesses sehr

unwahrscheinlich. Nur bei grossen Strahlungsenergien (einige MeV), ist mit einer Wechselwirkung durch Paarbildung zu rechnen. Es existiert keine Gleichung, welche die Wahrscheinlichkeit der Paar-Bildung beschreibt. Sie ist jedoch nahezu proportional zum Quadrat der Atomzahl  $Z$  des Absorbermaterials. Bei Strahlungsenergien mit mehr als 1.02 MeV wird die überschüssige Energie in kinetische Energie umgewandelt (Gleichung 15). Die Energie wird gleichmässig zwischen Elektron  $e^-$  und Positron  $e^+$  verteilt:

$$E_{e^-} + E_{e^+} = h \cdot \nu - 1,022 \text{ [MeV]} \quad (15)$$

Die totale Energie nach Gl 15 kann als Delta-Funktion in 1.022 MeV-Entfernung der Photonen-Energie abgebildet werden (vgl. Abbildung 5). In einem  $\gamma$ -Spektrum ist diese in Form eines double-escape-peak erkennbar (vgl. Kapitel 3.4.4, Abbildung 7).



**Abbildung 5:** Einfaches Modell der Energieverteilung beim Auftreten von Paarbildung, bei „Entfliehen“ des entstandenen Elektron-Positron-Paares ausserhalb des Detektors

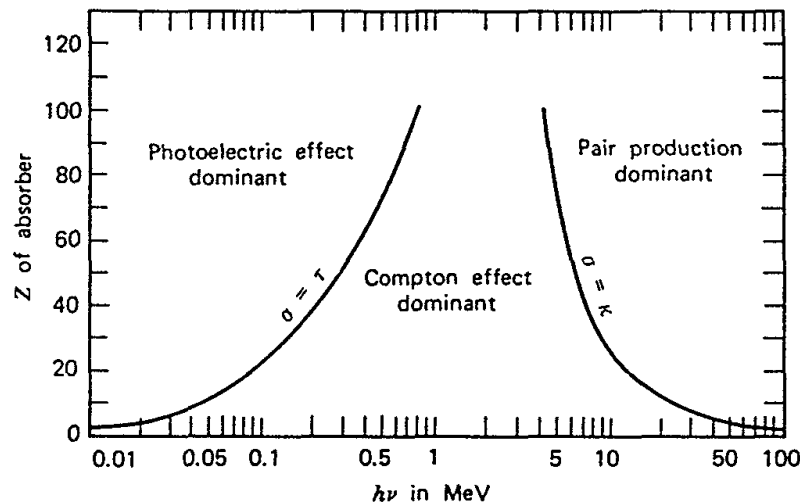
Die Erscheinung des Paarbildungs-Prozesses verkompliziert sich durch das Phänomen, dass die kinetische Energie des Positrons kleiner wird, wenn Positronen durch Elektronen des Absorbermaterial vernichtet werden und an ihrer Stelle Photonen mit je eine Energie von  $m_0c^2$  (0.501 MeV) entstehen. Die Absorption der Photonen erfolgt sehr schnell, so dass die Vernichtung von Positronen praktisch simultan zum Paarbildungs-Prozess stattfindet. Bei einer zeitlichen Überlagerung aller beteiligten Prozesse, wird man nur einen Peak mit derselben Energie der einfallenden Photonen beobachten. Der Detektor ist in seiner Geometrie begrenzt, weshalb ein Teil der Prozesse ausserhalb des Detektors stattfinden können (z.B. Absorption der Elektron in der Probe selbst). Folglich werden in einem normalen Spektrum neben dem vollenergetischen Peak auch



zu beobachten sein (vgl. Kapitel 3.4.4 und Abbildung 7), welche das stattfinden von Teilprozesse ausserhalb der Detektor dokumentieren.

### 3.4.4 Übersicht der Wechselwirkungs-Prozesse

Abbildung 6: stellt die Bedeutung der drei oben beschriebenen Prozesse in Abhängigkeit der Energie dar und setzt sie in Relation zueinander.



**Abbildung 6:** Relative Dominanz der Hauptwechselwirkungen (3) von  $\gamma$ -Strahlung und Absorbermaterial in Abhängigkeit von  $Z$  (Ordnungszahl des Absorbermaterial) und  $h\nu$  (Photonenenergie der  $\gamma$ -Strahlung). Nachbarprozesse besitzen gleichgrosse Wahrscheinlichkeiten für ihr Auftreten:  $\tau$  - Photoeffekt,  $\sigma$  - Compton-Effekt,  $\kappa$  - Paarbildung (Evans, 1982).

Die Prozesse der photoelektrischen Absorption, der Compton-Streuung sowie der Paarbildung beeinflussen die Antwort des Detektors und demzufolge die Spektren-Form. Die Dominanz dieser Prozesse wird in den Spektren der eingesetzten Detektoren (NaI- und Ge-Spektrometer, siehe Kapitel 5) verschieden gross sein. Abbildung 7 (oben) fasst die verschiedenen Wechselwirkungen zwischen  $\gamma$ -Strahlen und Materie zusammen und zeigt deren Einfluss auf das Spektrum schematisch. Beim radioaktiven Zerfall eines Isotops wird eine Sekundärstrahlung im Detektor produziert. Dabei können verschiedene Wechselwirkungen stattfinden. Man unterscheidet diese wie in Abbildung 7 (oben) dargestellt. Wenn die Energie des Elektrons vollständig im Detektor absorbiert wird, erscheint im Spektrum als



---

## 4 PROBEN

### 4.1 GESTEINSPROBEN

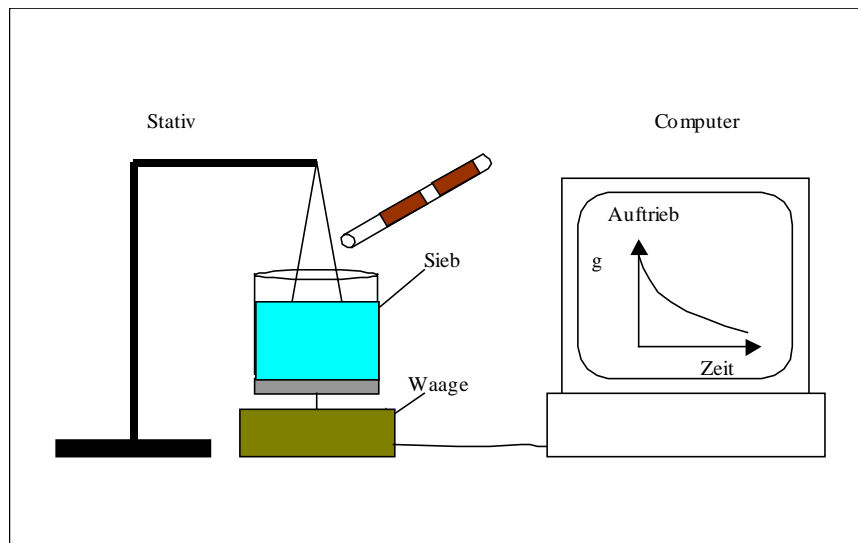
Die Messungen zur vorliegenden Arbeit wurden an Kernproben vorgenommen, welche einer Tunnelprojekt-Bohrung entstammen. Tabelle 2 fasst die Charakteristiken dieser Gesteinen zusammen. Es handelt sich vor allem um Gneise (3 Plattengneis, 4 Gneis-Glimmerschiefer, 4 Quarzreicher Gneis), ein Eklogitamphibolit, ein Amphibolit und zwei Silikatmarmore. Tabelle 2 beinhaltet neben der Bezeichnung der Probe (Name und Teufe), die Bezeichnungen aus den Messungen mit beiden Spektrometer (File-Name) sowie die wichtigsten Angaben zur Probe selbst (Erstellungsdatum, Masse, Dichte im Messbehälter und Gesteinsdichte) und auch Angaben zur Lithologie. Die Unterscheidung zwischen Dichte des Pulvers (gemahlene Probe) im Messbehälter und Gesteinsdichte (Probe) ist massgebend bei der Auswertung der Messdaten. Während die Probedichte für die Ermittlung der Aktivität eingesetzt wird, ist für die Berechnung der Wärmeproduktion die Gesteinsdichte zu verwenden.

### 4.2 GESTEINSDICHTEBESTIMMUNG

Zur Bestimmung der Gesteinsdichte wurde die Methode, die auf dem Prinzip des Wasserauftriebs basiert, verwendet. Der Wasserauftriebsversuch erlaubt es, Gesteinsdichte sowie Gesamtvolumen und eventuell das Porenvolumen einer Probe zu ermitteln. Beim Eintauchen der Probe in Wasser wird ein Volumen entsprechend dem Probenvolumen verdrängt. Misst man das Gewicht des verdrängten Wassers dessen Dichte bekannt ist, kann man das Verdrängungsvolumen berechnen.

### □ Durchführung des Wasserauftriebversuchs

Ein mit Wasser gefülltes Gefäß wird auf eine Waage gestellt. Ausserdem wird ein Sieb, welches an einem Stativ hängt, ins Wasser getaucht, wie Abbildung 8 zeigt. Anschliessend wird die Waage auf Null tariert. Dann werden die Kerne (Proben) sehr vorsichtig ins Sieb gelegt, ohne dass Wasser aus dem Gefäss tritt.



**Abbildung 8** Messapparatur vom Wasser-Auftriebsversuch

Die Unterscheidung zwischen Dichte des Pulvers im Messbehälter (gemahlene Probe) und Gesteinsdichte (Probe) ist massgebend für die Auswertung der Messdaten. Während die Probendichte für die Ermittlung der Aktivität eingesetzt wird, ist für die Berechnung der Wärmeproduktion die Gesteinsdichte nötig. Proben- und Gesteinsdichte von Koralm-Gesteinen sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

Die als Standards benutzten K-, Th- und U-Proben sowie die Kobalt- und Cäsium-Proben stammen aus der institutsinternen Probensammlung.

**Tabelle 2:** Probenbezeichnung; <sup>1</sup> Files aus Ge-Spektrometer, <sup>2</sup> Files aus NaI-Spektrometer

Probebezeichnung mit Teufe	File-Name <sup>1</sup> (*.SPE)	File-Name <sup>2</sup> (*.SPE)	Datum	Gewicht [g]	Probendichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Gesteinsdichte [g/cm <sup>3</sup> ]	Lithologie
KB-D23/99 291.15m	KBD23B_G	KBD23B	22.12.00	451.4	1.60	2.97	Amphibolit
KB-D18/99 122m	KBD18_G	KBD18	22.12.00	545	1.93	3.18	Eklogitamphibolit
KB-D23/99 258.6m	KBD23A_G	KBD23A	22.12.00	404.7	1.43	2.78	Gneis-Glimmerschiefer
TB-D01/00 518-518.15m	TBD01B_G	TBD01B	22.12.00	404.7	1.43	2.84	Gneis-Glimmerschiefer
TB-D01/00 544m	TBD01C_G	TBD01C	22.12.00	393.7	1.39	2.83	Gneis-Glimmerschiefer
KB-D10/99 257.5m	KBD10C_G	KBD10C	22.12.00	385.9	1.36	2.74	Gneis-Glimmerschiefer
TB-D02/00 601.9-602m	TBD02A_G	TBD02A	22.12.00	447	1.58	2.96	Plattengneis
TB-D02/00 630.9-631m	TBD02C_G	TBD02C	22.12.00	431.3	1.52	2.83	Plattengneis
TB-D02/00 306.15m	TBD02B_G	TBD02B	22.12.00	447	1.58	2.97	Plattengneis
TB-D02/00 376.85-377m	TBD02D_G	TBD02D	22.12.00	443.6	1.57	2.9	Quarzreicher Gneis
KB-D12/00 78m	KBD12_G	KBD12	22.12.00	435.6	1.54	2.75	Quarzreicher Gneis
KB-D10/99 268.1m	KBD10B_G	KBD10B	22.12.00	448.4	1.58	2.85	Quarzreicher Gneis
KB-D10/99 273.1m	KBD10A_G	KBD10A	22.12.00	418.8	1.48	2.71	Quarzreicher Gneis
KB-D03/00 129-129.1m	KBD03_G	KBD03	22.12.00	437	1.54	2.83	Silikatmarmor
TB-D01/00 389.3-389.4m	TBD01A_G	TBD01A	22.12.00	460	1.63	2.76	Silikatmarmor

### 4.3 PROBENVORBEREITUNG

Die Gesteinsproben werden für die  $\gamma$ -spektrometrischen Messung gemahlen. Das entstandene Gesteinspulver wird in speziell für derartige Messungen angefertigte Alu-Messbehälter gefüllt:

Materialstärke	0.6 mm
innere Durchmesser	95 mm
Nutzhöhe	40 mm
Nutzvolumen	285 cm <sup>3</sup>
Leergewicht	49 g

Das Material wird im Behälter angepresst, um eine möglichst homogene Verteilung des Materials zu erhalten und möglichst viel Masse für die Messung zur Verfügung zu haben. Um das Entweichen des Radons aus der Probe zu verhindern, müssen die Behälter dicht abgeschlossen sein. Für den Zerfall des Radon und seiner Zerfallsprodukte müssen die geschlossenen Behälter ca. 3 Wochen lagern ( $T_{1/2}(^{222}\text{Rn})=3.825$  Tage). Nach dieser Zeit besteht ein Quasi-Gleichgewicht. Somit können auch die <sup>214</sup>Pb- und <sup>214</sup>Bi-Linien für die Bestimmung des U-Gehaltes der Proben benutzt werden. Der Behälter muss bis oben gefüllt werden. Eine unvollständige Füllung verursacht Fehler in den Konzentrationsmessdaten. Bereits ein Unterschied von 2mm im Füllstand führt zu einer Konzentrationsabweichung von 4% (Rybach, 1971).

---

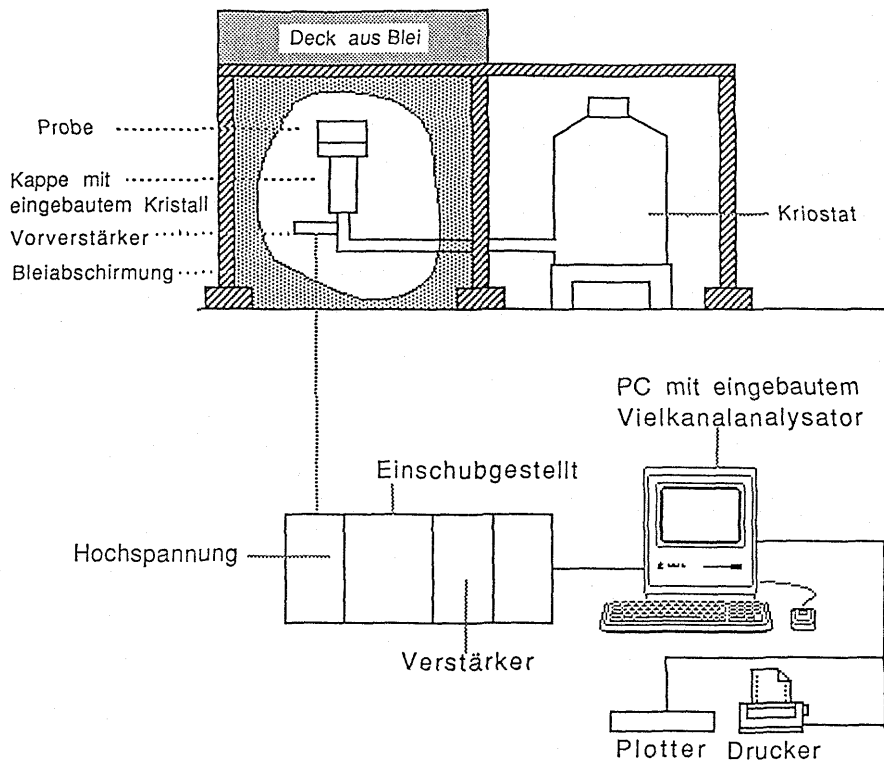
## 5 $\gamma$ - SPEKTROMETER

Die Erfassung von  $\gamma$ -Strahlen hat den Zweck, die in einer Probe enthaltenen radioaktiven Isotope zu identifizieren bzw. die radioaktive Aktivität der Probe zu bestimmen. Die Anwendung der Daten liegen beispielsweise in der Strahlenschutz-Überwachung oder wie im Fall dieser Arbeit, zur Ermittlung der Konzentrationen bestimmter Elemente oder der Wärmeproduktion von Gesteinen. Je nach Aufgabe sind die Anforderungen und demzufolge die Charakteristiken eines Messgerätes verschieden. In den nächsten Abschnitten sind die Messapparaturen, die für diese Arbeit eingesetzt wurden, aufgeführt.

### 5.1 MESSAPPARATUR

Die Messungen sind an zwei unterschiedlichen Spektrometer am Institut für Geophysik durchgeführt wurden. Dabei handelt es sich um ein NaI(Tl)- und ein Reinstgermanium-Spektrometer (HPGe, im Text als Ge bezeichnet). In Abbildung 9 ist die Ge-Messanordnung schematisch dargestellt. Die  $\gamma$ -spektrometrischen Messapparaturen bestehen aus folgenden Bauteilen:

- Szintillationsdetektor (z.B. NaI-Kristall) oder Halbleiterdetektor (z.B. Ge-Kristall)
- Hochspannungsgenerator für den Betrieb der Detektor
- Elektronik zur Verstärkung der Signale
- Mehrkanalanalysator eingebaut in einem PC zur Aufnahme und Auswertung der Spektren
- Bleiabschirmung für die Minimierung der Hintergrundstrahlung



**Abbildung 9:** Aufbau der Ge-Messanlage schematisch

## 5.2 DETEKTOREN

### 5.2.1 Szintillationsdetektoren: NaI

Durch die Wechselwirkung von Strahlung und Detektor-Material, auch Absorber genannt, werden in bestimmten Stoffen durch Lumineszenz Blitze sichtbaren Lichtes erzeugt. Die Detektion von ionisierenden Strahlungen, mittels dem Szintillationslicht, welches manche Materialien produzieren, ist eine der ältesten Methoden. Durch die Strahlung werden Elektronen aus den Kristallgitter der Absorber herausgelöst. An der entstehenden Fehlstelle werden Elektronen eines Atoms wieder eingefangen. Diese Atome befinden sich nun in angeregtem Zustand. Beim Übergang in den energetischen Grundzustand werden Photonen im sichtbaren Lichtspektrum ausgesendet, deren Energie von der ursprünglichen  $\gamma$ -Energie abhängt. Mit einer Photozelle oder Photodiode werden diese Lichtquanten erfasst und in elektrische Signale umgewandelt. Ein ideales Szintillationsmaterial sollte folgende Eigenschaften besitzen (Knoll, 1989):

- Umwandlung der kinetischen Energie geladener Teilchen in detektierbares Licht mit hoher Szintillationseffizienz
- Kleine Abfallzeit der Lumineszenz zur Generation schneller Pulssignale
- Gute Lichtausgabe (gute Lichterzeugung und Transparenz an das erzeugte Licht)
- Linearität des Lichtes (Lichtintensität proportional zur  $\gamma$ -Intensität)
- Der Refraktionsindex sollte mit denen von Glas ( $\approx 1.5$ ) vergleichbar sein, um eine gute Kopplung der Szintillationslicht mit dem Photomultiplier-Rohr zu erlauben

NaI-Kristalle (mit ein Zusatz von  $10^{-3}$  Molfraktion von Tl als Aktivator) zeigen eine sehr gute Lichtausgabe und Linearität, ihre Antwortzeit ist jedoch oft lang. Aufgrund ihrer hohen Ordnungszahl und grösseren Dichte eignen sie sich gut zur Strahlungsspektrometrie.

Kern der NaI-Messanlage ist ein „3x3“ Zoll NaI(Tl)-Kristall, an dem ein Photomultiplier fixiert ist, der die im Kristall erzeugten Photonen in elektrische Signale umwandelt. Die Antwort von Elektronen und  $\gamma$ -Strahlen verläuft nahezu linear über das Energieintervall. Die Zerfallzeit beträgt 230 ns, d.h. das Material ist aufgrund von Totzeiten für den Anspruch höherer Zählraten ungeeignet. Alle Detektorsysteme brauchen eine geringere Zeitspanne zwischen zwei Ereignisse, um diese separat erfassen zu können. Wegen der Zufallsnatur von radioaktive Strahlung gibt es immer eine gewisse Anzahl Photonen, die nicht erfasst werden können, was vor allem bei hohen Zählrate ein wichtige Aspekt ist. Bei Messung von Gesteinsprobe spielt aber die Totzeit eine untergeordnete Rolle.

Die Intensität des Szintillationslichtes, d.h. die Grösse des Impulses am Photomultiplier-Ausgang, ist proportional zur Energie des Sekundärelektrons. Abhängig davon, ob sich der Prozess durch eine einzelne Impulsgrösse (photoelektrische Absorption) oder eine kontinuierliche Verteilung („compton scattering“) entwickelt, wird dieser in niedriger oder mittlerer Energie abgebildet. Bei hohen Energien bildet sich ein Positron-Elektron Paar. Das Positron wird sofort vernichtet, was die Emission von zwei 0.51 MeV  $\gamma$ -Strahlen verursacht. Wenn beide  $\gamma$ -Strahlen im Kristall gestoppt werden, entspricht die Impulshöhe der einfallenden  $\gamma$ -Energie  $E_\gamma$  (Selbe Betrag wie bei Photoelektrische Absorption).



### □ Photomultiplier-Rohr und Impulshöhenanalysator

Die Anwendung von Szintillationsdetektoren erfordert ein Gerät, das sogenannte Photomultiplier-Rohr (PM), welche die schwache Lichtimpulse aus dem Szintillator in ein elektrisches Signal umwandeln. Mit Hilfe eines Impulshöhenanalysators werden die Impulse (output) aus dem PM als Funktion der Zeit aufgezeichnet. Der Analysator verfügt über Kanäle (1024), in denen einzelne Impulshöhen bestimmten Energien zugeordnet sind. Die so registrierten Impulse werden ausgezählt und können so als Energiespektrum dargestellt werden. Ein Energiespektrum kann sich gegenüber den Kanälen während einer Messung verschieben. Die Energie-Drift liegt bei ungefähr zwei Kanälen pro Tag, weshalb das Gerät über einen Driftstabilisator verfügt.

### 5.2.2 Halbleiterdetektoren: Germaniumdetektor

Eine der grössten Begrenzungen von Szintillations-Detektoren ist die schlechte Energie-Auflösung. Die Ereignisse, die zur Bildung von Licht bzw. dem elektrischen Signal im Detektor führen, sind mit uneffizienten Schritten verbunden. Die nötige Energie um ein Informationsträger (ein Photoelektron) zu produzieren, hat eine Grösse von 100 eV und mehr. Demzufolge beträgt der Anzahl Informationsträger, die in einer typischen Einstrahlungs-Wechselwirkung (10-3000 keV) erzeugt werden, einige Tausend. Die statistischen Schwankungen in einer so kleinen Anzahl Informationsträger begrenzt der Energie-Auflösung.

Die einzige Möglichkeit, die statistische Energie-Auflösung zu verbessern, liegt in die Erhöhung der Informationsträger pro Impuls. Germanium-Detektoren benutzen als Informationsträger Elektronen-Loch-Paare, die im Detektormaterial entlang den Strahlungsweg erzeugt werden. Diese werden mit einer sehr kleinen Energie (knapp 1 eV) erzeugt, was die Anzahl der Informationsträger pro Impuls im Vergleich zum NaI-Detektor wesentlich erhöht. Die grosse Anzahl von Informationsträgern hat zwei positive Einflüsse auf die Energie-Auflösung. Die statistische Schwankung wird klein. Diese Charakteristik ist massgebend bei hohen Energien. Bei niedrigen Energien ist die Auflösung von dem elektronischen Rausch aus dem Vorverstärker beeinträchtigt aber die grosse Anzahl Informationsträger pro Impuls führt zu einem besseren Signal/Noise Verhältnis.

### □ Physikalische Eigenschaften von Halbleiter

Ein Halbleiter kann durch das Bänder-Modell dargestellt werden. Das untere Band, Valenzband genannt, entspricht jenem Band, in dem die Elektronen an eine bestimmte Gitterstelle (Atome) im Kristall gebunden sind. Bei Germanium sind diese Elektronen Teil der kovalenten Bindung, welche die interatomaren Kräfte des Kristalls bildet. Das obere Band, das Leitungsband, umfasst die Elektronen die sich im Kristall frei bewegen können. Elektronen im Leitungsband tragen zur Leitfähigkeit des Materials bei. Zwischen beiden Bändern gibt es eine Energiedifferenz, Bandabstand genannt. Dieser muss von einem Elektron überwunden werden, um vom Valenzband zum Leitungsband zu gelangen. Der Anzahl Elektronen im Kristall reicht gerade aus, um alle Stellen des Valenzbandes zu füllen, so dass sich im Abwesenheit von thermische Anregung kein Elektron im Leitungsband befindet. Bei Temperaturen oberhalb des absoluten Nullpunkt es ist möglich, dass ausreichend thermische Energie vorhanden ist, um Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband zu heben (beim absoluten Nullpunkt gleicht ein Halbleiter einem Isolator, welcher kein Elektron im Leitungsband besitzt).

Ein Prozess, der ein Elektron in das sonst leere Leitungsband hebt, produziert gleichzeitig ein Elektronen-Loch im sonst vollen Valenzband. Das Leitungsband-Elektron kann sich so frei bewegen. Das Elektron im Leitungsband kann unter Benutzung eines elektrischen Feldes bewegt werden. Das Loch, welches eine positive Ladung darstellt, wird parallel zum elektrischen Feld im Gegenrichtung zum Elektron bewegt. Die Bewegung beider Ladungen trägt zur beobachtbaren Leitfähigkeit des Materials bei. Die Wahrscheinlichkeit  $p$ , dass ein Elektronen-Loch-Paar durch thermische Energie erzeugt wird, ist durch Gl 16 gegeben:

$$p(T) = CT^{3/2} \exp\left(-\frac{E_g}{2kT}\right) \quad (16)$$

T	absolute Temperatur	[K]
$E_g$	Bandabstandsenergie	[eV]
K	Bolzmann Konstante	
C	Proportionalitätskonstante, abhängig von Materialeigenschaften	

Wenn ein elektrisches Feld anliegt, werden die Elektronen und die Löcher parallel zum elektrischen Feld mit einer Driftgeschwindigkeit proportional zur Stärke des elektrischen Feldes migrieren. Bei grösserem elektrischen Feld erreicht die Drift- die Sättigungsgeschwindigkeit. Bei Germanium beträgt die Sättigungsgeschwindigkeit ca.  $10^7$  cm/s, was für die Zeit die zu Sammeln der Energieträger über typische Entfernungen (Distanz gegenüberliegende Detektorfläche), einer Zeitdauer im Bereich von ns bis  $\mu$ s entspricht. Demzufolge gehören Halbleiter zu den am schnellsten antwortenden Detektoren.

Dringt ein geladenes Teilchen in den Halbleiter-Detektor, werden mehrere Elektronen-Loch-Paare entlang seines Weges gebildet. Die entscheidende Grösse bei diesem Prozess ist die Energie, die aufgewendet wird, um ein Elektron-Loch-Paar zu erzeugen. Diese Energie, Ionisationsenergie genannt, ist unabhängig von Art und Energie der Einstrahlung. Das ist wichtig für die Interpretation der Ereignisse als Term der Energie (Annahme: gesamte Strahlungsenergie wird innerhalb des Detektors absorbiert). Der grösste Vorteil des Halbleiters liegt in der geringen Grösse dieser Ionisationsenergie, die für Germanium ca. 0.79 eV beträgt.

Halbleiterdetektoren beruhen auf dem Prinzip der Erzeugung von Ladungsträgerpaaren infolge des Durchgangs von primär ionisierender ( $\alpha, \beta$ , usw.) oder sekundär ionisierender Strahlung ( $\gamma$ -Strahlung, Neutronen, usw.) durch die Materie. Wenn solche Teilchen ein Kristallgitter durchqueren, entstehen unelastische Stösse, bei denen Elektronen-Loch-Paare erzeugt werden. Diese können ihrerseits wieder weitere Ladungsträgerpaare bilden, falls ihre Energie ausreichend gross ist. Durch das starke elektrische Feld, das durch die Detektorbetriebsspannung (4000V) im Kristall erzeugt wird, werden die gebildeten Ladungsträgerpaare getrennt und zu den entsprechenden Elektroden, d.h. den zwei gegenüberliegenden Flächen des Kristalls, gezogen. Hier induzieren sie einen Ladungsimpuls, der am Arbeitswiderstand des Detektors als Ausgangsspannungsimpuls abgetragen wird. Mit Hilfe dieses Impulses kann in einem nachgeschalteten elektronischen System (Impulshöhenanalysator mit 4098 Kanäle) die Energie des nachgewiesenen Teilchens bestimmt werden.

---

## 6 MESSMETHODE

### 6.1 ANLEITUNG

Bei  $\gamma$ -Spektrometrischen-Messungen sind vor Beginn der eigentlichen Messung eine Reihe von Vorbereitungsarbeiten notwendig: Energiekalibrierung, Ermittlung der Background-Strahlung und für NaI Bestimmung der K-, U- und Th-Standard-Aktivitäten.

Da die Strahlung nicht nur von der zu messenden Probe, sondern auch vom Umgebungsmaterial und vom Weltall resultieren, sind Massnahmen zur Eliminierung oder mindestens zur Verminderung dieser Störungen, Background genannt, zu treffen. Die beiden in dieser Arbeit eingesetzten Germanium- und NaI-Messgeräte haben unterschiedliche Spektrenantworten, vor allem was die Peak-Auflösung betrifft. Dies ist der Grund, weshalb für die Auswertung der aus beiden Spektrometern erhaltenen Daten mit verschiedenen Methoden erfolgen muss. Beim NaI-Messgerät erfolgt die Auswertung durch Vergleich der Impulsinhalte bestimmter Energiefenster der unbekanntes Probe mit den Impulsinhalten derselben Fenster von Standards mit bekannter Aktivität. Da die Breite der Peaks beim NaI sehr gross ist, enthalten diese zu viele Störeffekte die eine absolute Auswertung der Peaks erschweren. Es ist daher für die Auswertung einer Probe unerheblich, welche absolute Antwort der Detektor auf die von der Quelle ausgesandte Strahlung tatsächlich gibt. Es handelt sich hierbei um eine relative Auswertung in Bezug auf Standards und nicht um eine absolute Messung der Strahlenintensität.

Beim Ge-Detektor ist die Energieauflösung genügend scharf, so dass sich einzelne  $\gamma$ -Linien abbilden lassen. Hier muss die spektrale Antwort des Detektors bekannt sein, um auf die wahren radioaktiven Aktivitäten schliessen zu können. Dafür ist eine enge Kalibrierung der Impulsantwort über das komplette messbare Energiespektrum notwendig. Diese Energiekalibrierung erfolgt anhand von speziellen Standards als Quellen für  $\gamma$ -Strahlung,

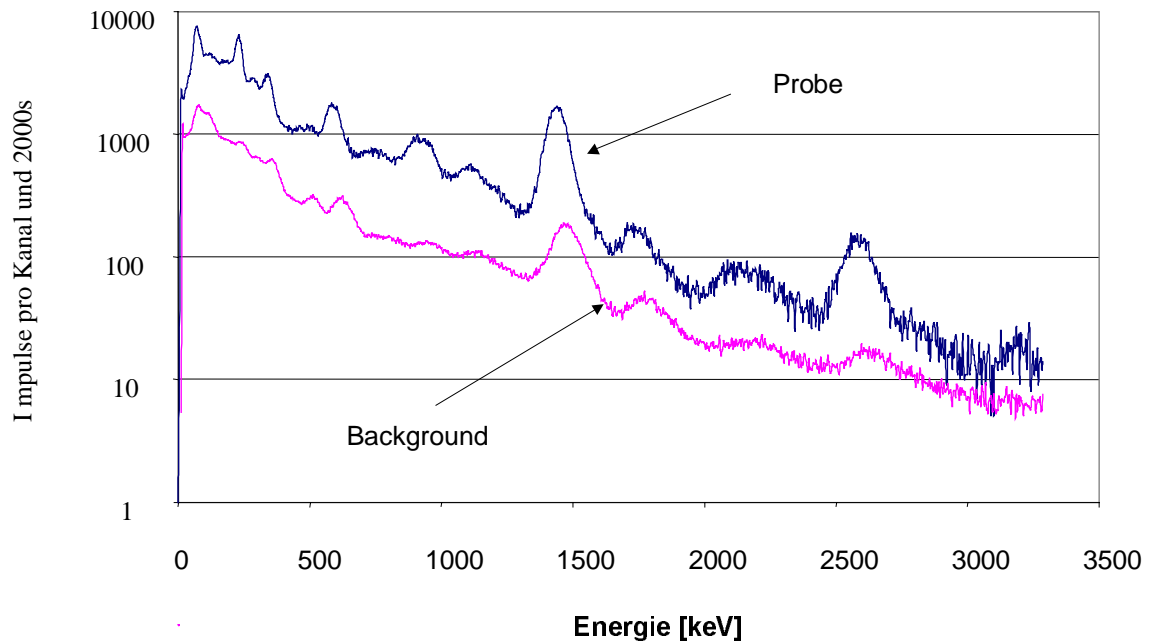
deren Aktivität auf das gesamte Energiespektrum verteilt und bekannt ist. Aus der Messung dieser Standards wird die Antwort des Detektors in Form einer sogenannten Ausbeutekurve gebildet (siehe Kapitel 6.2.2). Aus der  $\gamma$ -Linie lassen sich die in der Probe enthaltenen radioaktiven Elemente identifizieren. Voraussetzung ist eine Zuordnung der entsprechenden Elemente zur  $\gamma$ -Linie. Dazu dient die sogenannte Nuklidtabelle, welche Datenbanken mit Informationen zu radioaktiven Isotopen bezeichnet (siehe Kapitel 6.2.2).

## 6.2 MESSVERFAHREN

Der radioaktive Zerfall ist ein Zufallsprozess. Die Quantifizierung dieses Prozesses beruht auf der Messung der dabei emittierten Strahlung, welche statistischen Schwankungen unterworfen ist. Diese „inneren“ Schwankungen betreffen alle Messungen und stellen eine unvermeidbare Unsicherheitsquelle dar. Sie können minimiert werden, indem man über lange Zeit misst. Unerwünschte Effekte wie Strahlung, die nicht aus der Quelle stammt, können wirksam entfernt werden, da diese Umgebungsstrahlung eine gewisse Konstanz über die Zeit aufweist.

### 6.2.1 Background Reduktion

Die zu messende Probe ist nicht die einzige Strahlungsquelle die auf den Detektor wirkt, auch Strahlungen der Umgebung werden bei der Messung erfasst (Kosmische Strahlung, Strahlung von der Erde, von der Atmosphäre und der Messapparatur). Um den sogenannten Background zu minimieren, wirkt bereits die Bleiabschirmung, welche den Detektor umgibt. Um auch den restlichen Background zu minimieren, wird eine Backgroundmessung (oder Nullmessung genannt, Messung ohne radioaktive Quelle) durchgeführt. Für jede radiometrische Determination muss der Background-Impuls  $A_0$  vom gemessenen Impuls  $A$  (Probe + Background) subtrahiert werden.  $A_0$  wird periodisch bestimmt, indem ein leerer Probenbehälter über eine möglichst lange Zeit gemessen wird (z.B. 200000 s). Ein Beispiel der Backgroundaktivität ist in Abbildung 10 gegeben. Zum Vergleich ist der Background zusammen mit dem Spektrum von einem Silikatmarmor dargestellt. Bei dieser Bestimmung fehlt die Absorption der Probe selbst, da der Alu-Behälter leer ist. Während der Messung einer Probe absorbiert diese einen Teil der eigenen Strahlung (Autoabsorption) und einen Teil des Background. Hier wird angenommen, dass der Anteil des von der Probe absorbierten Backgrounds verschwindend klein ist.



**Abbildung 10:** Spektren einer Probe (Kb-D03, Silikatmarmor) gegen den von der Umgebung verursachten Background. Die Spektren sind logarithmisch dargestellt (Backgroundzeit normiert auf Probezeit).

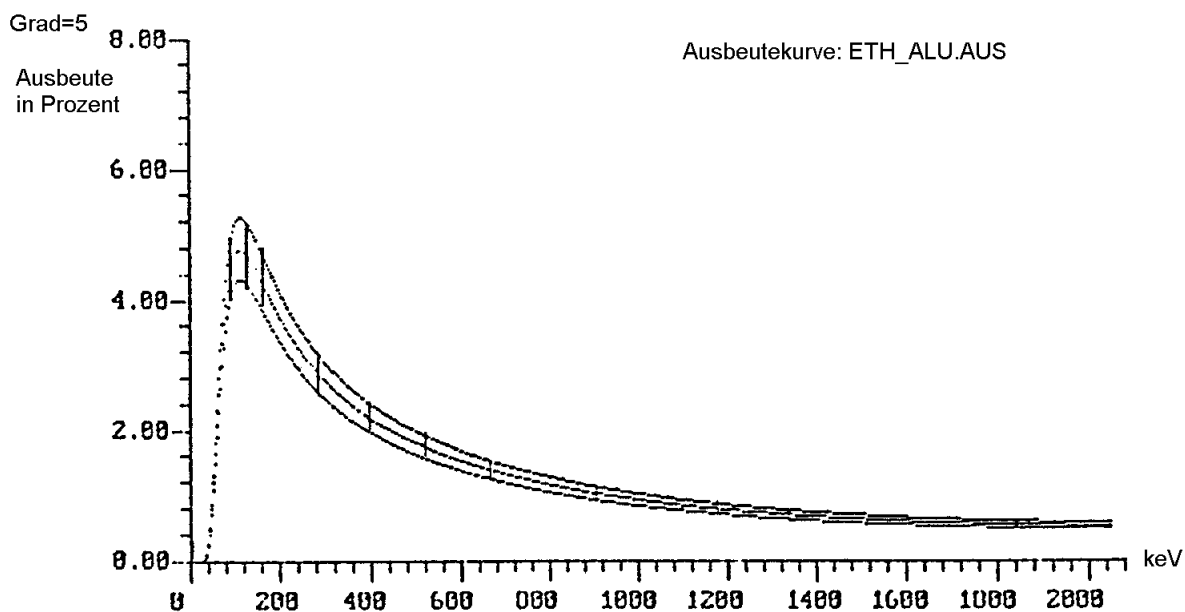
### 6.2.2 Germaniumspektrometer: Kalibrierung des Messgeräts

#### □ Ausbeutekurve

Bevor die Strahlungsenergie und die Strahlungsrate mittels eines Ge-Spektrometers gemessen werden können, muss die Effizienz des Spektrometers bekannt sein (ausgedrückt als die absolute Empfindlichkeit  $\epsilon_{\text{abs}}$  des Detektors). Nicht alle von der Probe ausgestrahlten Photonen können vom Detektor erfasst werden. Einerseits kann er nur einen Teil des Raumes um die Probe besetzen und andererseits gibt es Photonen, welche zwar in den Detektor eindringen, aber nicht interagieren. Es wird von relativer und absoluter Effizienz gesprochen. Die relative Effizienz ist das Verhältnis zwischen der Anzahl der gemessenen Wechselwirkungen und der durch den Detektor erfassten Photonen. Die Ausbeutekurve gibt die prozentuale Energieausbeute, d.h. die absolute Empfindlichkeit  $\epsilon_{\text{abs}}$  (Gl. 17), des Detektors an:

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{Anzahl erfasste Impulse}}{\text{Anzahl emittierte Quanten}} \quad (17)$$

Die Empfindlichkeit ist eine Funktion der Energie der  $\gamma$ -Quanten (Fontana, 1991). Die Ausbeutekurven dienen zusammen mit der Nuklidtabelle bei Ge-Spektrometer zur automatischen Erkennung und Auswertung der  $\gamma$ -Linien. Die Ausbeutekurve wird anhand spezieller Kalibrierungsproben (Standards) bestimmt, die dabei erfassten Aktivitäten werden über den ganzen Messbereich durch ein Polynom 5-ten Grades interpoliert. Abbildung 11 zeigt ein Beispiel einer so erhaltenen Ausbeutekurve.



**Abbildung 11:** Beispiel der Ausbeutekurve für das Ge-Spektrometer in Funktion der Energie für die Alu-Geometrie (modifiziert nach Fontana, 1991)

Die Ausbeutekurve wird mit einem Dichte-Korrekturfaktor  $K$  (Funktion der Dichte und der Energie) multipliziert. Somit stehen verschiedene Ausbeutekurven für Dichten zwischen  $0.5$  und  $2.0 \text{ g/cm}^3$  zur Verfügung. Die vorhandenen Ausbeutekurven wurden von Fontana erstellt (1991). Den Messungen der vorliegenden Arbeit liegt die Annahme zugrunde, dass diese der Effizienz des Detektors noch entsprechen sollen. Andererseits wäre für die Berechnung von neuen Ausbeutekurven eine neue Kalibrierungsquelle notwendig. Beim NaI-Spektrometer ist eine solche Kalibrierung der Effizienz nicht nötig, da hier nur die Ergebnisse bei bestimmte Fenster von Probe und Standard, welcher dieselben Radionuklide und dieselbe Geometrie besitzt, in Relation gesetzt werden.

### □ Nuklidtabelle

Für die Auswertung der Bohrkerne wurde eine Nuklidtabelle erstellt, welche die Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen enthält, da die Gesteinswärmeproduktion vor allem auf den Zerfall der Isotope U, Th und K zurückzuführen ist. Jedes Isotop besitzt mehrere typische  $\gamma$ -Linien (beispielsweise die 1.17 und 1.33 MeV von  $^{60}\text{Co}$ , vgl. Abbildung 1), welche die Aktivität des Isotops eindeutig feststellen. Die Wahrscheinlichkeit, mit der  $\gamma$ -Linien auftreten ( $\gamma$ -Wahrscheinlichkeit) ist sehr verschieden, weshalb sie im Spektrum ungleich vertreten sind. Da aber in jede  $\gamma$ -Linie eines Isotops Informationen zur Isotopaktivität enthalten sind, ist es wichtig für die Isotopenaktivitätsbestimmung, dass möglichst viele  $\gamma$ -Linien ausgewertet werden. Für die Auswertung von verschiedenen  $\gamma$ -Linien für die Ermittlung der Isotopenaktivität ist es deshalb wichtig zu wissen, welche Auftrittswahrscheinlichkeit jede  $\gamma$ -Linie eines Isotopes besitzt, um diese bei der Aktivitätsauswertung zu berücksichtigen. Um die Aktivitäten verschiedener  $\gamma$ -Linien zu vergleichen, werden die  $\gamma$ -Ausbeuten auf 100%-Aktivität normiert. Für jedes Element wurden nur die  $\gamma$ -Linien ausgewählt, deren Wahrscheinlichkeit im Detektionsbereich mindestens 1% betrug.  $\gamma$ -Linien mit kleineren Ausbeuten wurden vernachlässigt, da sie eine zu grosse Unsicherheit mit sich tragen. Alle Daten der Nuklidtabelle entstammen der LARA-Tabelle, einer Datenbank über sämtliche Isotope.

Um den Zerfall in mehrere Produkte zu berücksichtigen, werden nach der Nuklidtabelle die Zerfallsprodukte mit Zusatzfaktoren versehen. Beispielsweise zerfällt in der Reihe von Th-232, Bi-212 zur 33.7% in Tl-208 und 66.3% in Po-212, weshalb Tl-208 laut Nuklidtabelle den Zusatzfaktor 0.337 erhält. Diese Normierung der Aktivitäten von Elementen derselben Zerfallsreihe ermöglicht den Aktivitätsvergleich zwischen Bi-212 und Tl-208, deren spezifische Aktivitäten gleich gross sein sollten. Die für die Auswertung der Messung an den Gesteinsproben benutzte Nuklidtabelle ist im **Anhang C** beigefügt.



---

## 7 AUSWERTUNGSMETHODE: KONZENTRATIONS- UND WÄRMEPRODUKTIONSBESTIMMUNG

### 7.1 ISOTOPENKONZENTRATIONSBESTIMMUNG NACH DEM FENSTERMETHODE (FÜR NAI)

Die Konzentration eines radioaktiven Stoffes lässt sich nicht direkt aus dem aufgezeichneten Energiespektrum ablesen. Sie muss durch nachfolgend Methode berechnet werden. Die Methode ist für die Auswertung von NaI-Spektren gedacht, kann aber auch bei Ge-Spektren angewendet werden. Die spezifische Aktivität einer Probe im radioaktiven Gleichgewicht, lässt sich anhand der folgenden drei Gleichungen bestimmen (Rybach, 1971):

$$\begin{aligned} a_{1,P} &= f_1 c_K + f_2 c_U + f_3 c_{Th} \\ a_{2,P} &= f_4 c_K + f_5 c_U + f_6 c_{Th} \\ a_{3,P} &= f_7 c_K + f_8 c_U + f_9 c_{Th} \end{aligned} \quad (18)$$

$\alpha_{i,P}$	spezifische Aktivitäten der Probe P aufgrund der Impulsanzahl innerhalb der K-, U bzw. Th-Energiefenster [Bq/g]
$c_U / c_{Th} / c_K$	Konzentrationen der gesuchten radioaktiven Stoffe [ppm bzw. %]
$f_i$	Auswertungs-Koeffizienten [Bq/g,ppm bzw. Bq/g,%]

Die spezifische Aktivität  $\alpha_{ij}$  [Bq/g] ist zunächst noch unbekannt, kann jedoch aus den im Spektrum gezählten Impulsen wie folgt berechnet werden.

$$\alpha_{1j} = \frac{1}{G} \cdot \left( \frac{N_{ij}}{t_j} - \frac{I_{i0}}{t_0} \right) \quad (19)$$

G	Gewicht der Probe [g]
$N_{ij}$	Impulse der Probe <b>j</b> im <b>i-ten</b> Fenster
$t_j$	Messzeit der Probe <b>j</b> [s]
$I_{i0}$	Impulse des Null-Effekts im <b>i-ten</b> Fenster
$t_0$	Messzeit des Null-Effekts [s]

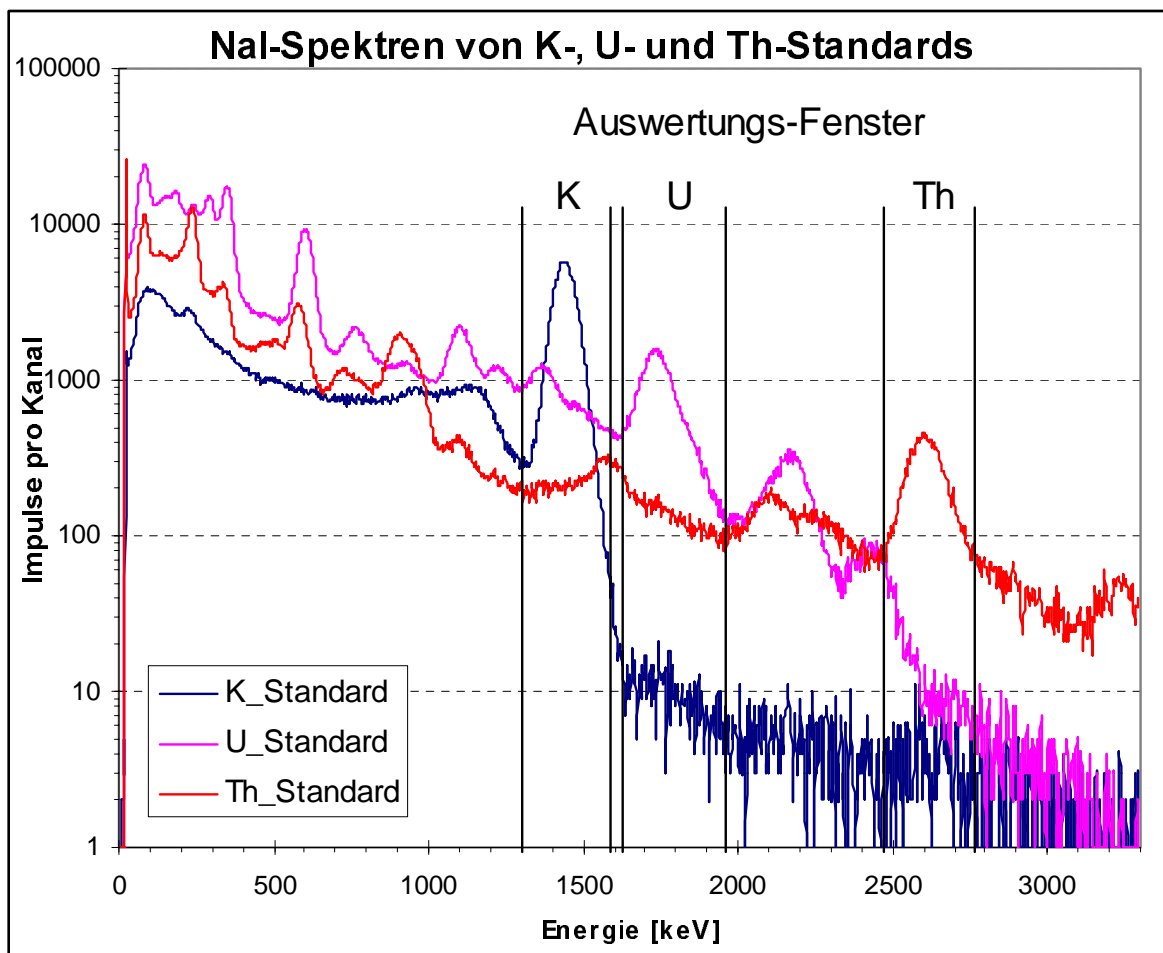
An der berechneten spezifischen Aktivitäten wurde keine Dichtekorrektur vorgenommen, da die Bestimmung eines Korrekturfaktors schwierig ist. Andererseits hat die Dichtekorrektur bei kleinen Unterschieden der Probedichte keinen grossen Einfluss auf das Endresultat (vgl. Schwarz, 1985).

Der Gehalt der radioaktiven Stoffe Uran-, Thorium- und Kalium in den Proben soll bestimmt werden. Dazu müssen die Konstanten  $f_1$  bis  $f_9$  aus Gl 18 bekannt sein. Zur Bestimmung der Kalibrierfaktoren stehen drei Standardproben zur Verfügung. Sie enthalten jeweils eines der zu bestimmenden Elemente in genau bekannter Konzentration. Sie sind aus natürlichen Erzen und Gesteinen hergestellt wurden, um in ihrer Isotopenzusammensetzung realen Gesteinsproben möglichst nahe zu kommen. Für alle Proben werden die Impulse in den drei Fenstern Uran, Thorium und Kalium ausgezählt. Die Fenster sind so gewählt, dass möglichst nur ein Peak des jeweiligen Elementes erfasst wird. Für K gibt es nur einen Peak bei 1460 keV, dementsprechend muss das K-Fenster diesen Peak einschliessen. Für Uran ist der Peak von  $^{214}\text{Bi}$  bei 1764 keV günstig, während er es für Thorium von  $^{208}\text{Tl}$  bei 2.62 MeV ist (vgl. Abbildung 12). Die für die Berechnung der Impulsinhalte in NaI-Spektren benutzten K-, U- und Th-Fenster sind in Tabelle 3 zusammengefasst.

**Tabelle 3:** Fensterbreite für die Berechnung der Impulse am NaI-Spektrometer

Element	Peak	Energie [MeV]	Kanäle
Kalium	K-40	1.46	425-505
Uran	Bi-412	1.76	525-605
Thorium	Tl-208	2.615	770-860

Abbildung 12 enthält die Spektren der K-, U- bzw. Th-Standards. In der Abbildung sind auch die Auswertungsfenster eingetragen.



**Abbildung 12:** K-, U-, und Th-Standards-Spektren mit gewählte Auswertungsfenster

Jedes Isotop verursacht aufgrund von Nebeneffekten auch Impulse in beiden anderen Fenstern. Hier handelt es sich vor allem um das von  $^{214}\text{Bi}$  verursachte Compton-Kontinuum, welches die Impulse im Kalium-Fenster erhöht, sowie um das von  $^{208}\text{Tl}$ , welches mehr Impulse in beiden anderen Fenstern verursacht. Aus den Impulsen in jedem Fenster werden mittels Gl 19 die spezifischen Aktivitäten berechnet (vgl. Tabelle 12). Die erhaltenen Aktivitäten und die Konzentrationen der Standardproben sind nun zur Berechnung der  $f_i$ -Koeffizienten einzusetzen. Die für die Lösung des Gleichungssystems 18 benutzten Standards besitzen folgende Charakteristiken:

Kalium-Standard	512.2 g	reines $\text{K}_2\text{SO}_4$ (also 44.87 % K)
Uran-Standard:	504.6 g	1000 ppm U
Thorium-Standard:	488.5 g	1000 ppm Th, 40 ppm U

Durch Einsetzen der  $f_i$  und der gemessenen Aktivitäten der Probe lassen sich nun die gesuchten Konzentrationen der Isotope in der Versuchsprobe berechnen (vgl. Tabelle 14).

### 7.1.1 Auswertung der Daten des NaI-Spektrometers:

Die spezifischen Aktivitäten wurden jeweils auf der Grundlage von Einzelmessungen nach Gl 19 bestimmt. Der Fehler berechnet sich deshalb nach der Regel der Differentialrechnung (Busch und Ott, 1996) wie folgt:

$$\Delta\alpha_{ij} = \pm \frac{1}{G} \cdot \left( \frac{\Delta N_{ij}^2}{t_i^2} + \frac{\Delta I_{i0}^2}{t_0^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (20)$$

wobei gilt:  $\Delta I_{i0} = \pm I_{i0}^{-1/2}$  sowie  $t_i$  und  $G$  seien bekannt

Für den Fehler der Impulse  $\Delta N_{ij}$  wurde  $\pm 5\%$  angenommen. Diese wurde aus der relative Fehler von drei Messungen berechnet. Aus dem Fehler der Aktivitäten werden die Fehler der Konzentrationen (Gl. 21) berechnet, es gilt:

$$\Delta c_{Th} = \pm \frac{\sqrt{(f_1 f_5 - f_2 f_7)^2 (f_1 \Delta \alpha_3)^2 + [(f_1 f_8 - f_2 f_7) f_4 - (f_1 f_5 - f_2 f_7) f_7]^2 \Delta \alpha_1^2 + [(f_1 f_8 - f_2 f_7) f_1 \Delta \alpha_2]^2}}{\{(f_1 f_9 - f_3 f_7) \cdot (f_1 f_5 - f_2 f_4)\} - [(f_1 f_8 - f_2 f_7) / (f_1 f_6 - f_3 f_4)]}$$

$$\Delta c_U = \pm \frac{\sqrt{(f_1 \Delta \alpha_2)^2 + (f_7 \Delta \alpha_1)^2 + (f_1 f_6 - f_3 f_4)^2 \Delta c_{Th}^2}}{f_1 f_5 - f_2 f_4} \quad (21)$$

$$\Delta c_K = \pm \frac{1}{f_1} \cdot \sqrt{(\Delta \alpha_1)^2 + (f_2 \Delta c_U)^2 + (f_3 \Delta c_{Th})^2}$$

### 7.1.2 Messablauf

Das NaI-Spektrometer muss vor Beginn der Messungen kalibriert werden. Dazu werden für die drei zu untersuchenden Elemente, Thorium, Uran und Kalium, Standardproben während einer vorgegebenen Zeit gemessen. Man erhält je ein Energiespektrum mit den repräsentativen Peaks für die drei Elemente (vgl. K-, U-, Th-Standards im Anhang A). Da die Proben auf den Gehalt dieser drei Elemente untersucht werden sollen, werden bei der Referenzmessung Fenster festgelegt, in denen die Impulse der einzelnen Elemente zu erwarten sind (vgl. Abbildung 12). Die Fenster werden so definiert, dass der Einfluss der Aktivität eines anderen Nuklids möglichst klein ist. Im Fenster sollte also nur die durch einen der drei Nuklide erzeugten Impulse aufgezeichnet werden. Demzufolge dürfen die Fenster nur den Peak des zu messenden Nuklids enthalten. Die Messung der Gesteinsprobe erstreckt sich über 20'000 Sekunden.

Zur Bestimmung des Nulleffektes (vgl. Abbildung im Anhang A) wird ein leerer Alu-Behälter über 200'000 Sekunden der Messung unterzogen. So werden die Hintergrundeffekte aufgezeichnet. Solche können durch Strahlungen von Aussen oder vom Gerät selbst verursacht werden. Die so entstandenen Effekte sind von den Spektren der Probe zu subtrahieren. Mit den ausgezählten Impulsen kann man anhand Gl (19) und der Lösung des Gleichungssystems 18 auf die Konzentration des Kalium, Uran und Thorium schliessen.

### 7.1.3 Auswertung

Die Auswertung der Messdaten aus dem NaI-Spektrometer erfolgt manuell, während die Daten aus dem Ge-Spektrometer durch ein Messprogramm ausgewertet werden. Voraussetzung für die Messung mit dem NaI-Spektrometer ist die Bestimmung der 9  $f_i$  – Koeffizienten durch Aktivitätsmessungen an den Standards. Tabelle 4 enthält die Aktivitätsmesswerte für K-, Th- und U-Standards und die mit Gl (19) berechneten spezifischen Aktivitäten.

**Tabelle 4:** Aktivitätswerte und spezifische Aktivitäten (Gl 19) für Background (Nulleffekt) sowie K-, Th- und U-Standards

<b>Probe</b>		<b>Nulleffekt</b>	<b>K-Standard</b>	<b>Th-Standard</b>	<b>U-Standard</b>
File-Name	(*SPE)	Nullm2	K_Standard	Th_Standard	U_Standard
Datum		24.11.00	27.11.00	27.11.00	27.11.00
Messzeit	$t_j$ [s]	200000	5000	1000	1000
Aktivität $N_{ij}$ im K-Fenster	[Impulse]	93787	171608	18775	64513
Aktivität $N_{ij}$ im U-Fenster	[Impulse]	30028	826	11348	68148
Aktivität $N_{ij}$ im Th-Fenster	[Impulse]	13019	340	20732	1622
Probengewicht $G_j$	[g]	0	512,2	488,5	504,6
spez. Aktivität $a_{1j}$	[Bq/g]		0,0661	0,0375	0,1269
spez. Aktivität $a_{2j}$	[Bq/g]		0	0,0229	0,1348
spez. Aktivität $a_{3j}$	[Bq/g]		0	0,0423	0,0031

Die  $f_i$ -Koeffizienten wurden anhand eines Gleichungssystems (18) berechnet und sind in Tabelle 3 zusammengefasst

**Tabelle 5:** Koeffizienten  $f_i$  für die Lösung des Gleichungssystems (18), zugehörig zu NaI-Spektrometer

Koeffizienten $f_i$	
$f_1$	1,473 E-03 [Bq/g%]
$f_2$	1,2692 E-04 [Bq/g ppm]
$f_3$	3,24 E-05 [Bq/g ppm]
$f_4$	6,553 E-07 [Bq/g%]
$f_5$	1,3476 E-04 [Bq/g ppm]
$f_6$	1,7534 E-05 [Bq/g ppm]
$f_7$	1,264 E-07 [Bq/g%]
$f_8$	3,0854 E-06 [Bq/g ppm]
$f_9$	4,2186 E-05 [Bq/g ppm]

## 7.2 Isotopenkonzentrationsbestimmung beim Ge-Spektrometer:

Die Auswertung der Ge-Spektren bezüglich der drei Nuklide K, U und Th erfolgt anhand der verschiedenen Tochterisotope (ausser bei K, welches mit nur einer Energielinie bei 1460 keV auftritt). Zur Bestimmung von Uran eignen sich besonders  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Pb}$ , während es für Thorium  $^{228}\text{Ac}$  und  $^{208}\text{Tl}$  sind. Die Eignung dieser Isotope beruht auf ihrer hohen  $\gamma$ -Ausbeute. Die Bestimmung der Aktivität erfolgt über den Mittelwert aus den verschiedenen Energielinien.

Die Radioisotope die für die Ermittlung der U und Th Konzentration, also  $^{214}\text{Bi}$  und  $^{214}\text{Pb}$  für Uran und  $^{208}\text{Tl}$  für Thorium, befinden sich nach  $^{222}\text{Rn}$  bzw. nach  $^{220}\text{Rn}$ . Da Radon im gasförmigem Zustand vorkommt, muss man bei der Probearbeitung geeignete Massnahmen treffen (dicht Abschluss der Behälter), so dass die gemessenen Konzentrationen aus dem Tochterisotop der des Mutterisotopes entsprechen. Das Entweichen von Radon kann vor allem ein Problem für die  $^{238}\text{U}$ -Reihe sein, da  $^{222}\text{Rn}$  eine Halbwertszeit von 3.825 Tagen hat. Die Thorium-Reihe hingegen stellt kein Problem dar, da  $^{220}\text{Rn}$  eine Halbwertszeit von 55.6 Sekunden hat.

Die Peaksuche ist automatisiert, wird aber manuell überprüft. Eventuell eintretende störende Effekte bei wichtigen Peaks werden beseitigt, indem markierte Kanäle, die den Untergrund verfälschen, gelöscht werden. Das so erhaltene Spektrum, mit den markierten Peaks, kann dann automatisch ausgewertet werden: das Programm gibt als Resultat eine Tabelle mit den identifizierten (oder nicht identifizierten) Peaks, den gemittelten Aktivitäten (Bq/kg) sowie den Fehler (2- $\sigma$ -Fehler in Bq/kg) wieder. Die Nettofläche  $S_n$  unter einem Peak wird mit Gl. 22 berechnet:

$$S_n = S_b - \sum_k F_k \quad (22)$$

Wobei  $S_b$  die Bruttofläche unter dem Peak bezeichnet und der Hintergrund durch Gl. 23 gegeben ist:

$$\sum_k F_k = Y_b + (Y_a - Y_b) \frac{\sum_k^k Y_k}{\sum_a^a Y_k} \quad (23)$$

$Y_a$  mittlerer Inhalt der drei ersten Kanäle des Peaks

$Y_b$  mittlerer Inhalt der drei letzten Kanäle des Peaks

$Y_k$  laufender Inhalt des Kanals

Für die Berechnung der spezifischen Aktivität  $\alpha_m$  aus der Nettofläche  $S_n$  ergibt sich:

$$\alpha_m = \frac{S_n}{t_a} \cdot \frac{100}{\varepsilon} \cdot \frac{100}{R_{db}} \cdot \frac{1}{q} \cdot K \cdot D_m \quad (24)$$

$$D_m = \frac{\lambda \cdot t_r}{1 - e^{-\lambda \cdot t_r}} \quad (25)$$

$t_{ja}$  effektive Messzeit [s] („live time“)

$\varepsilon$  Ausbeute in Prozent-Gehalt von der Energie des Peaks

$R_{db}$  Verzweigungsverhältnis in Prozent-Gehalt des betrachteten Peaks

$q$  Gewicht der Probe

$K$  Umrechnungsfaktor für Einheiten (Aktivität und Gewicht der Probe)

$D_m$  Zerfallsfaktor während der Messzeit



$t_r$  reelle Messzeit [s] („real time“, d.h.  $t_r = t_a + T_{\text{odzeit}}$ )

Durch das Ge-Auswertprogramm wird der Fehler der Aktivität durch einen Sicherheitsfaktor von  $n\sigma$  berücksichtigt. Der Fehler für die berechnete Aktivität berechnet sich mit  $N=2$  (2- $\sigma$ -Fehler):

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = n \sqrt{\left(\frac{\sigma(S_n)}{S_n}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(\varepsilon)}{\varepsilon}\right)^2} \quad (26)$$

$\sigma(S_n)$  Standardabweichung von der Nettofläche  $S_n$

$\sigma(\varepsilon)$  Standardabweichung der Ausbeute  $\varepsilon$  sind.

Die gewichteten Aktivitätsmittelwerte und Abweichungen werden wie folgt berechnet:

$$\alpha = \frac{\sum_i \frac{\alpha_i}{\sigma_i^2}}{\sum_i \frac{1}{\sigma_i^2}} \quad (27) \quad \text{UND} \quad \Delta\alpha = n \left( \sum_i \frac{1}{\sigma_i^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (28)$$

$\alpha_i$  Aktivität des i-ten Peaks

$\sigma_i$  Standardabweichung der Aktivität i

n gewählte  $\sigma$  ( $n=1\dots 3$ )

Zur Bestimmung der K-, U- und Th-Gehalten aus den Aktivitäten wurden, unter Voraussetzung der natürlichen Zusammensetzung, folgende Beziehungen angewandt:

$$1 \text{ \% Kalium} \cong 309 \text{ Bq/kg}$$

$$1 \text{ ppm Uran} \cong 12.4 \text{ Bq/kg}$$

$$1 \text{ ppm Thorium} \cong 4.0 \text{ Bq/kg}$$

### 7.3 Wärmeproduktionsbestimmung

Die radioaktive Wärmeproduktion ist eine skalare gesteinsphysikalische Grösse, welche von in situ-Druck und –Temperatur unabhängig ist. Die Wärmeproduktion wird meist in Einheiten pro Zeit- und Volumen erzeugten Wärme angegeben (z.B. in  $\mu\text{W}/\text{m}^3$ ). Wesentlicher Anteil des terrestrischen Wärmeflusses stammen von der Zerfallswärme der natürlichen Radioisotope. Der Wärmefluss an der Oberfläche beträgt im Durchschnitt etwa  $65 \text{ mW}/\text{m}^2$ , der Wärmefluss aus dem Mantel (in kontinentale Gebieten) rund  $20 \text{ mW}/\text{m}^2$ ; die Differenz rührt von der radioaktiven Wärmeproduktion der Krustengesteine her. Bei radioaktiven Zerfall wird Masse in Energie umgewandelt. Die gesamte freigesetzte Zerfallsenergie wird in Wärme umgewandelt (Rybach und Cermak, 1982)

Unter Anwendung von Gleichung (29) kann aus den ermittelten K-,U- und Th-Konzentrationen die radiogene Wärmeproduktion  $A$  [ $\mu\text{W}/\text{m}^3$ ] eines Gesteins bestimmt werden, wobei  $H_U$ ,  $H_{Th}$  bzw.  $H_K$  die Wärmeproduktionskonstanten (von U, Th bzw. K freigesetzte Wärme pro Gramm radioaktive Substanz pro Zeiteinheit) sind (Rybach, 1976):

$$A = \rho \cdot (H_U \cdot c_U + H_{Th} \cdot c_{Th} + H_K \cdot c_K) \quad (29)$$

A	radioaktive Wärmeproduktion	$[\mu\text{W}/\text{m}^3]$	
$\rho$	Gesteinsdichte	$[\text{kg}/\text{m}^3]$	
$H_U$	Umrechnungskostante	$[\mu\text{W}/\text{kg}]$	$9.52 \cdot 10^{-5}$
$H_{Th}$	Umrechnungskostante	$[\mu\text{W}/\text{kg}]$	$2.56 \cdot 10^{-5}$
$H_K$	Umrechnungskostante	$[\mu\text{W}/\text{kg}]$	$3.48 \cdot 10^{-5}$

Für den Fehler bei der Wärmeproduktion  $\Delta A$ , ausgehend von Gl 29, bekommt man (Gl 30):

$$\Delta A = \sqrt{\rho^2 (H_U^2 \cdot \Delta c_U^2 + H_{Th}^2 \cdot \Delta c_{Th}^2 + H_K^2 \cdot \Delta c_k^2) + \Delta \rho^2 \cdot A^2} \quad (30)$$

---

## 8 RESULTATE

Jede der 15 Proben aus dem Koralmtnunnel wurden sowohl mit dem NaI- als auch mit dem Ge-Spektrometer gemessen. Dazu wurden Backgroundmessungen für beide Geräte durchgeführt. Für die Berechnungen der K-, U- und Th-Konzentrationen mit dem NaI-Detektor wurden auch K-, Th- und U-Standards gemessen. Die Messdauer beeinflusst die Messgenauigkeit; je länger, desto genauer die Resultate. Je nach Gerät wurde die Messzeit pro Probe unterschiedlich gewählt:

NaI-Spektrometer 20'000 s

Ge-Spektrometer 80'000 s

Sämtliche Spektren sind im Anhang A (für NaI) und B (für Ge).

Wegen der besseren Ausbeute des NaI- im Vergleich zu jener des Ge-Spektrometers könnte man eine viermal kürzere Messdauer für das NaI-Spektrometer wählen. 20'000 Sekunden gewähren auswertbare Ergebnisse auch für schwach aktive Proben. 80'000 Sekunden Messdauer führen beim Ge-Spektrometer zu einem kleineren Fehler im Vergleich zu kurzer Messdauer und gibt die Möglichkeit, eine Messung pro Tag durchzuführen. Eine Zeit von 40'000 Sekunden wäre im Hinblick auf den Fehler keine schlechte Lösung, eine Messung von 2 Proben pro Tag ist aber trotzdem nicht möglich (vgl. Fontana, 1991). Tabelle 6 beinhaltet die Resultate dieser Messungen. Bei Probe KB-D18 handelt es sich um einen Eklogitamphibolit, der erwartungsgemäss eine sehr tiefe Aktivität bzw. geringere Konzentrationen an Radionukliden aufweist. Auch KB-D23B weist gegenüber anderen Proben geringe Konzentrationen auf (besonders Th-Konzentration). Gneis-Glimmerschiefer, Plattengneise Quarzreicher Gneise und Silikatmarmor zeigen ähnliche Konzentrationen. Für diese Gruppe von Gesteinen kann man folgende mittlere Konzentrationen berechnen:

NaI-Spektrometer	Ge-Spektrometer
2,7% K	2,5% K
3,3 ppm U	2.5 ppm U
13 ppm Th	11 ppm Th

**Tabelle 6:** Konzentrationen von K, Th und U aus NaI- und Ge-Messmethode sowie prozentuale-Unterschiede der Konzentrationen zwischen beiden Messmethoden

NaI-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	Ge-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	$\Delta(K)$ [%]	$\Delta(U)$ [%]	$\Delta(Th)$ [%]
KBD10A	1.50	2.81	11.75	KBD10A_G	1.32	2.05	9.34	12.2	27.0	20.5
KBD10B	2.88	3.11	13.67	KBD10B_G	2.88	2.56	12.45	0.1	17.5	8.9
KBD10C	4.36	3.73	11.18	KBD10C_G	4.23	3.04	10.10	3.0	18.4	9.7
KBD18	0.27	0.29	0.35	KBD18_G	0.27	0.19	0.32	-0.8	33.9	9.1
KBD23A	2.68	3.23	12.40	KBD23A_G	2.55	2.41	10.49	4.6	25.3	15.4
KBD23B	1.70	1.98	2.89	KBD23B_G	1.52	1.23	2.26	10.4	37.7	21.9
KBD03	3.03	3.47	15.23	KBD03_G	3.03	2.83	14.46	-0.1	18.4	5.1
KBD12	1.46	2.30	7.74	KBD12_G	1.35	1.59	6.20	7.3	30.6	19.9
TBD01A	0.85	2.65	6.23	TBD01A_G	0.80	1.58	4.90	5.5	40.5	21.3
TBD01B	2.82	3.53	13.21	TBD01B_G	2.69	2.77	11.40	4.4	21.5	13.7
TBD01C	2.82	3.54	11.94	TBD01C_G	2.69	2.97	10.72	4.7	16.1	10.3
TBD02A	2.91	3.98	17.29	TBD02A_G	2.93	3.10	16.24	-1.0	22.1	6.1
TBD02B	2.80	3.27	13.63	TBD02B_G	2.78	2.67	12.51	0.6	18.3	8.2
TBD02C	2.07	3.14	12.78	TBD02C_G	2.05	2.32	11.29	1.0	26.0	11.6
TBD02D	2.79	3.46	15.01	TBD02D_G	2.75	2.86	13.72	1.5	17.3	8.6
Mittelwerte der Abweichung								3.8	24.7	12.7
Mittelwerte ohne Ausreisser (Amphibolit & Eklogitamphibolit)								3.0	20.7	10.7

Die Messwerte der Aktivitäten und demzufolge der Konzentrationen aus dem Ge-Spektrometer liegen stets unterhalb derer des NaI-Spektrometers (vgl. Tabelle 6 bzw. Abbildung 13). Die Mittelwerte der Abweichung (ohne Berücksichtigung von „Ausreißern“) der Messresultate des NaI- und Ge-Messgerätes betragen (vgl. Tabelle 6):

$$\Delta K=3.0\%$$

$$\Delta U=20.7\%$$

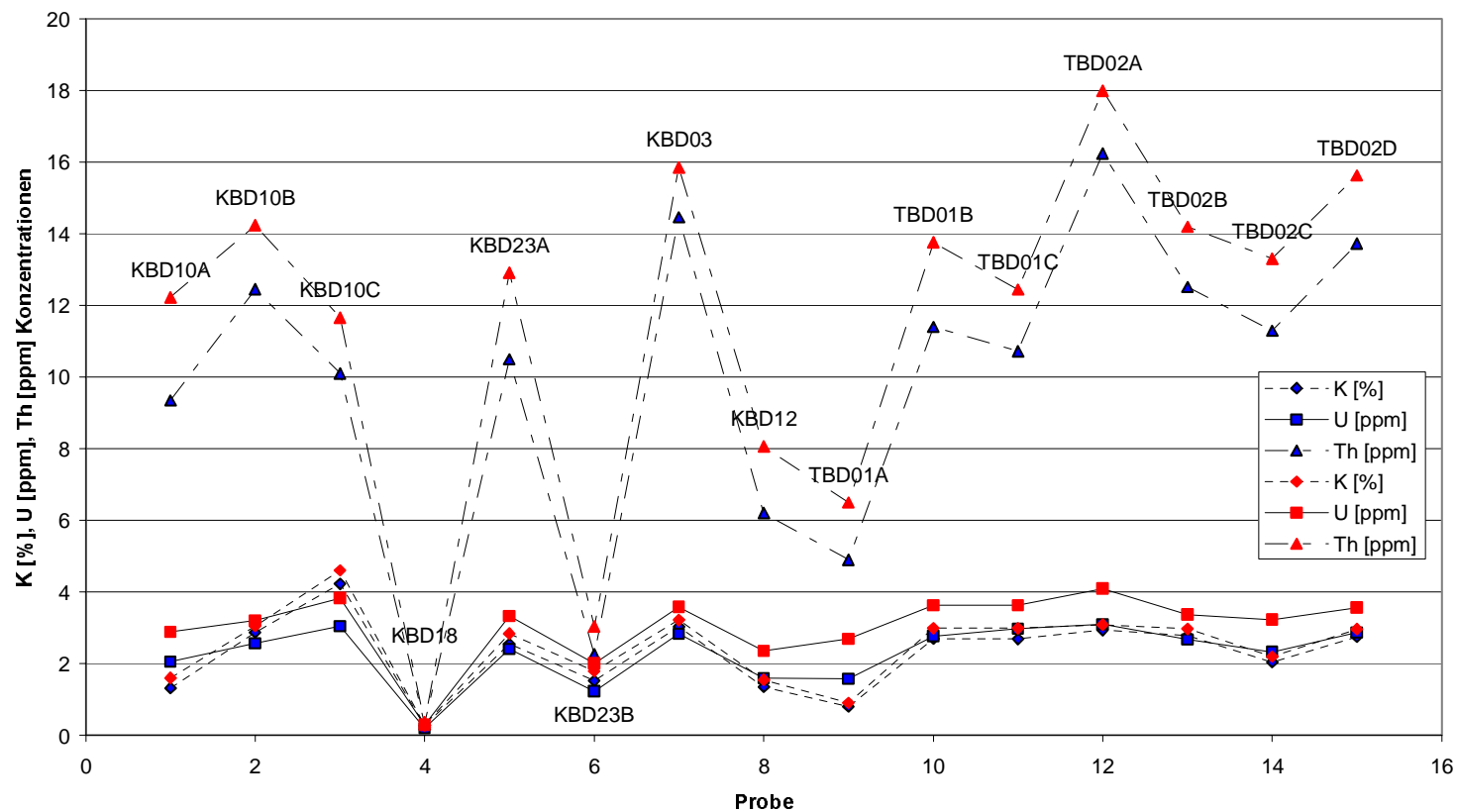
$$\Delta Th= 10.7\%$$

Ein Vergleich der Konzentrationswerte der Koralm-gesteine mit Literaturdaten aus Rybach und Cermak (1982) zeigt, dass die Werte der Z-, U- und Th-Konzentrationen in den bekannten Wertebereichen der Literatur liegen. Der Vergleich zwischen den Daten aus der beiden Spektrometer lässt erkennen, dass die bestimmte Aktivitätswerte aus dem Ge-Spektrometer stets kleiner als die des NaI-Spektrometers sind. Die Ge-Messwerte der K-, U- bzw. Th-Standards liegen ausserdem unterhalb der theoretischen Aktivitätswerte: während die Resultate des NaI-Spektrometers relativ zur Aktivität der Standardprobe berechnet werden, sind die Resultate aus dem Ge-Spektrometer von der kalibrierte Detektorempfindlichkeit abhängig. Aus Tabelle 7 ist zu entnehmen, wie beispielweise die Aktivität des Thorium-Standards (1000 ppm Th und 40 ppm U) zur Thorium-Konzentration von nur 886 ppm anstatt 1000 ppm führ. Gleiches ist für Uran zu beobachten: Uran-Konzentration von 35.9 ppm anstatt 40 ppm. Unter der Annahme, dass die Standardkonzentrationen stimmen, werden demnach die Werte für dieser Proben durch das Messgerät mit 11.4% und 10.25% unterschätzt.

**Tabelle 7:** K-, Th- und U-Konzentrationen aus Ge-Spektrometer-Messungen für Standardproben

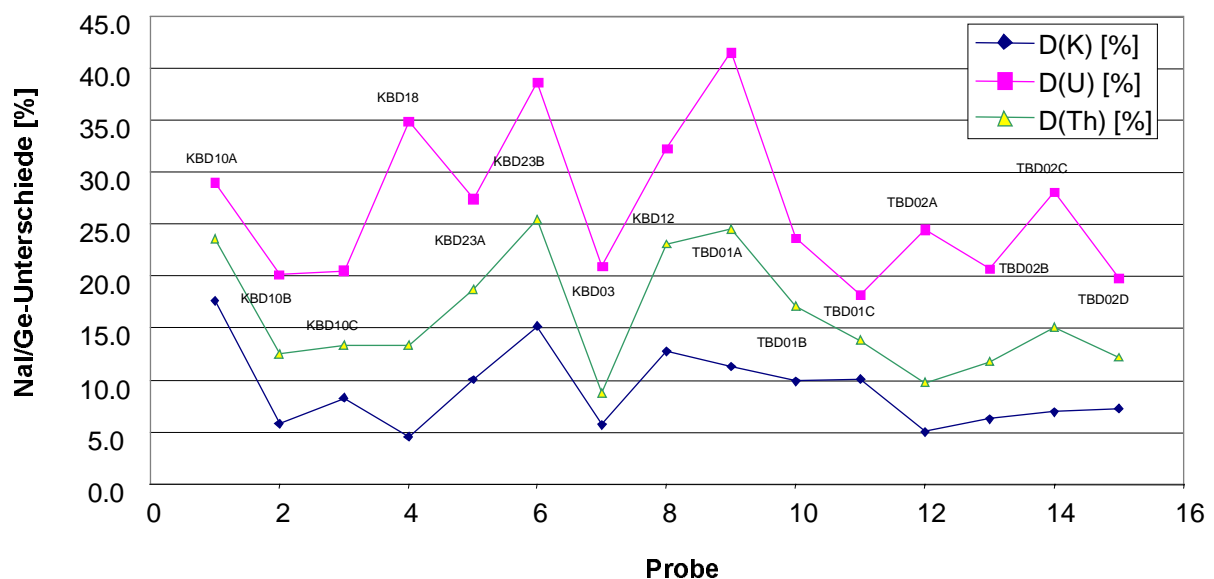
<b>Probe</b>		<b>U-St. 1000 ppm</b>	<b>U-St. 10 ppm</b>	<b>Th 1000/U40</b>
<b>Messungen mit Ge-Spektrometer</b>				
File-Name	(*SPE)	U_ST_G	U_ST10_G	Th_St_G
Messzeit $t_{ij}$	[s]	15000	80000	80000
Gewicht	[g]	505	477	488
Probendichte	[g/cm <sup>3</sup> ]	1,78	1,69	1,73
<b>Konzentration</b>				
K-40	[%]	0	0	0
U-238	[ppm]	766,0	8,4	35,9
Th-232	[ppm]	0	0,5	885,9

Vergleich der Messresultate aus NaI-(in rot) /Ge-(in blau)Spektrometer für die Koralmproben



**Abbildung 13:** Vergleich der Konzentrationen an K, U und Th für die Koralmproben aus NaI- und Ge- Spektrometer, vgl. Tabelle 6

Um herauszufinden, was die Ursache dieser Abweichungen ist, sind die Daten unterschiedlich dargestellt worden. In Abbildung 14 sind die prozentualen Unterschiede der K-, Th- und U-Konzentrationen zwischen beiden Mess- bzw. Auswertungsmethoden zusammengestellt. Die Daten für Uran zeigen grosse, diese von K hingegen kleine Abweichungen. Ferner ist den Angaben zu entnehmen, dass die genannten Abweichungen bei Proben mit kleinen Aktivitäten grösser sind. Grund dafür ist, dass sich der statistischer Fehler des Zerfallsprozesses und die Backgroundstörung auf kleine Aktivitäten stärker auswirkt als auf höhere Aktivitäten. Die Daten der K-, Th- und U-Konzentrationen zeigen im Vergleich zu beiden Messmethoden eine gute Korrelation, vgl. Tabelle 6 und Abbildung 13.



**Abbildung 14:** Konzentrationenunterschiede für K, Th und U in Prozent zwischen NaI- und Ge-Auswertungsmethode

Ein Versuch anhand der so erhaltenen Korrelationsgerade die Daten von Ge-Spektrometer in zur NaI-Spektrometer vergleichbare Werte umzuwandeln, führt trotzdem zu einem relativ grossen Fehler, besonders im Bereich kleiner Aktivitäten. Ursache für diese Unterschiede könnte eine verminderte Empfindlichkeit des Gerätes sein. Tatsächlich sind Halbleiterdetektoren besonders anfällig gegenüber Strahlungsschäden. Der Vorteil von HPGe-Detektoren ist, dass diese Art von Schäden leicht rückgängig gemacht werden können. Knoll (1989) beschreibt ein Tempern-Verfahren durch welches Strahlungsschäden repariert und die Originaldetektionscharakteristiken wiederhergestellt werden. Um eine Verminderung der Empfindlichkeit des Detektors zu berücksichtigen, wäre die Erstellung einer neuen Ausbeutekurve notwendig, was wiederum die Verfügbarkeit eines Standards voraussetzt. Das

Alter des am Institut vorhandenen Standards beträgt 10 Jahre, weshalb die Aktivität der meist kurzlebigen Nuklide (abgesehen von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{60}\text{Co}$ ) unter die Nachweisgrenze gefallen sind, was die Erstellung einer neuen Ausbeutekurve unmöglich macht. Eine erste Annahme liegt also darin, dass die ermittelten Konzentrationsunterschiede auf eine verminderte Ausbeute des Ge-Spektrometers zurückzuführen sind. Eine Alternative wäre demzufolge, die Auswertung der Ge-Daten nach dem Fenstermethode vorzunehmen. Unter Benutzung mehrerer schmaler Fenster für die wichtigsten  $\gamma$ -Linien der Thorium- und Uran-Reihe sowie eines Fensters für die Kalium-Linie, sollten ähnliche Resultate wie aus den Messungen mit NaI erhaltbar sein. Die Resultate diese Auswertung der Ge-Spektren sind in Kapitel 9 zusammengefasst und werden mit jenen des NaI-Spektrometers verglichen.

## 8.1 WÄRMEPRODUKTION DER KORALMPROBEN

Durch Einsetzen der Konzentrationswerte in Gl. 29 erhält man die Wärmeproduktion der Probe. In Tabelle 8 sind die spezifischen Aktivitäten  $\alpha_{ij}$  (mit absolutem Fehler  $\Delta\alpha_{ij}$  nach Gl. 20), K-, U- und Th-Konzentrationen (mit absolutem Fehler  $\Delta K$ ,  $\Delta U$  bzw.  $\Delta Th$  nach Gl. 21) sowie die Wärmeproduktion  $A$  (mit absolutem Fehler nach Gl. 30) zusammengefasst. Als Ausgangswerte für die Berechnung der Wärmeproduktion in Tabelle 8 wurden die Daten aus dem NaI-Versuch benutzt. Die Wärmeproduktionswerte für die Koralmproben sind in Abbildung 15 graphisch dargestellt.



**Tabelle 8:** K-, U- bzw. Th-Konzentrationen und Gesteins-Wärmeproduktions-bestimmung mit absolute Fehler für die Koralm-Proben.

Probe	K- Konzentration [%]	Abs. Fehler $\Delta K$ [%]	U- Konzentration [ppm]	Abs. Fehler $\Delta U$ [ppm]	Th- Konzentration [ppm]	Abs. Fehler $\Delta Th$ [ppm]	Dichte $\rho$ [g/cm <sup>3</sup> ]	Wärme- Produktion A [ $\mu W/m^3$ ]	$\Delta A$ [ $\mu W/m^3$ ]
KB-D10/99 273.1m	1.50	0.02	2.81	0.09	11.75	0.21	2.71	<b>1.68</b>	0.11
KB-D10/99 268.1m	2.88	0.02	3.11	0.09	13.67	0.21	2.85	<b>2.13</b>	0.13
KB-D10/99 257.5m	4.36	0.02	3.73	0.10	11.18	0.22	2.74	<b>2.17</b>	0.13
KB-D18/99 122m	0.27	0.01	0.29	0.04	0.35	0.08	3.18	<b>0.15</b>	0.04
KB-D23/99 258.6m	2.68	0.02	3.23	0.09	12.40	0.22	2.78	<b>2.00</b>	0.12
KB-D23/99 291.15	1.70	0.02	1.98	0.07	2.89	0.13	2.97	<b>0.96</b>	0.08
KB-D03/00 129-129.1m	3.03	0.02	3.47	0.09	15.23	0.23	2.83	<b>2.34</b>	0.14
KB-D12/00 78m	1.46	0.02	2.30	0.08	7.74	0.18	2.75	<b>1.29</b>	0.09
TB-D01/00 389.3-389.4m	0.85	0.01	2.65	0.07	6.23	0.16	2.76	<b>1.22</b>	0.09
TB-D01/00 518-518.15m	2.82	0.02	3.53	0.09	13.21	0.22	2.84	<b>2.19</b>	0.13
TB-D01/00 544m	2.82	0.02	3.54	0.09	11.94	0.22	2.83	<b>2.10</b>	0.13
TB-D02/00 601.9-602m	2.91	0.02	3.98	0.09	17.29	0.23	2.96	<b>2.73</b>	0.16
TB-D02/00 306.15m	2.80	0.02	3.27	0.09	13.63	0.21	2.97	<b>2.25</b>	0.13
TB-D02/00 630.9-631m	2.07	0.02	3.14	0.09	12.78	0.21	2.83	<b>1.98</b>	0.12
TB-D02/00 376.85-377m	2.79	0.02	3.46	0.09	15.01	0.22	2.90	<b>2.35</b>	0.14

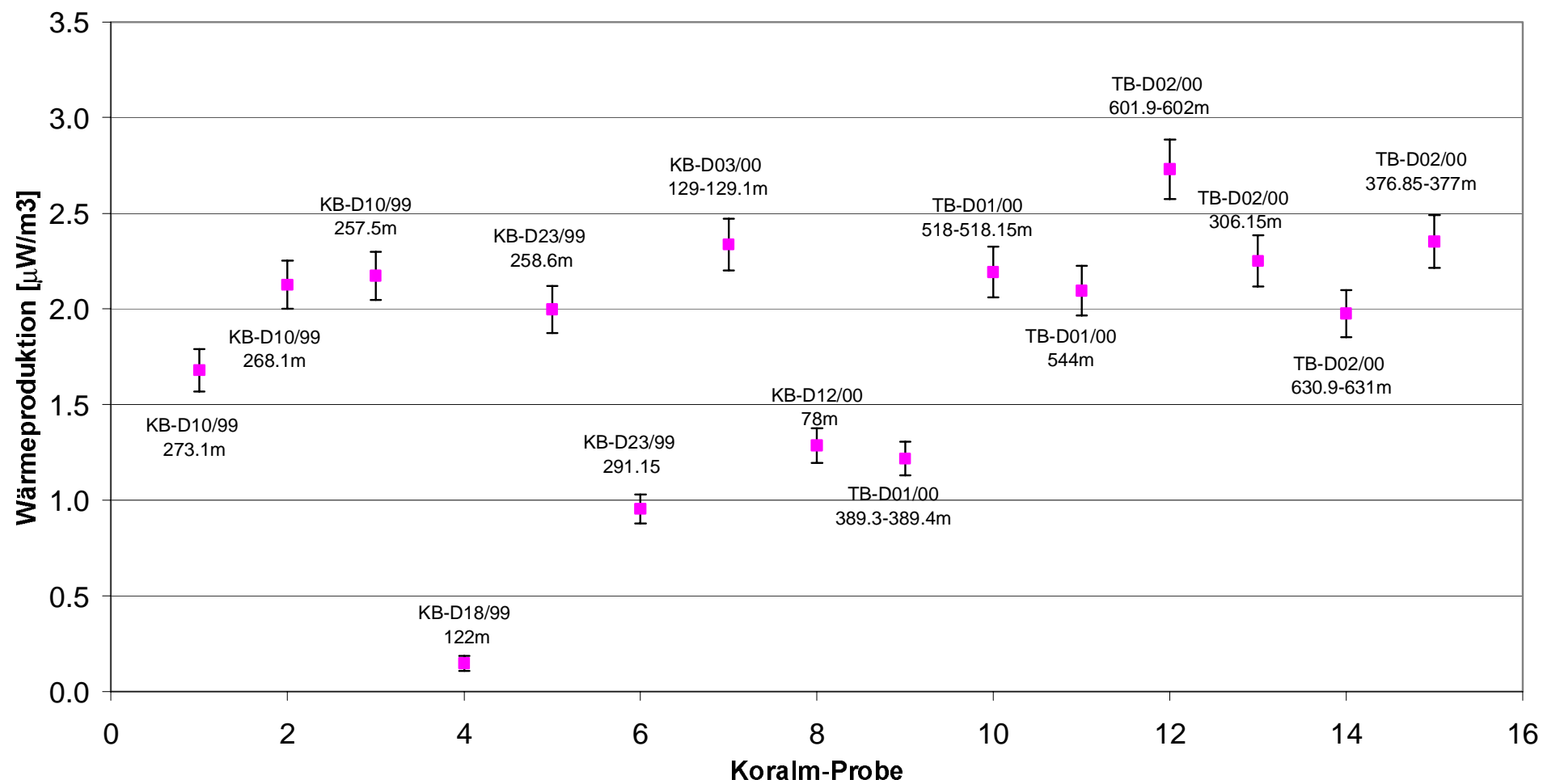


Abbildung 15: Wärmeproduktion in  $\mu\text{W}/\text{m}^3$  mit abs. Fehler von Koralmgesteines.

---

## 9    UNTERSUCHUNG DER AUSWERTUNGSMETHODE

### 9.1   Auswertung der Ge-Spektren mit Fenster-Methode

Ein Versuch um die Abweichung der Konzentrationen zwischen Ge- und NaI-Spektren-Auswertung zu minimieren, liegt in der Auswertung mit derselben Methode, also der bei NaI benutzten Fenstermethode. Als „Fenster“ wurden die Netto-Peak-Inhalte der 1460-<sup>40</sup>K-Peak, der 1764 - <sup>214</sup>Bi-Peak für Uran und für Th den 911 -<sup>228</sup>Ac-Peak (da die Energieskala bei Ge nur bis knapp 2000 keV reicht, könnte den 2615 -<sup>208</sup>Tl-Peak wie auch beim NaI nicht verwendet werden). In Tabelle 9 sind die Resultate der Konzentrationen, verglichen mit denen aus NaI enthalten. Die Mittelwerte der Abweichung (2.9% für K, 4% für U bzw. 6% für Th) sind hier viel kleiner als bei denen in Tabelle 6, bei welchen die Ge-Resultate mit der Ausbeutekurve berechnet wurden. Aus diesem Grund könnte es möglich sein, dass die Ausbeutekurve nicht richtig bestimmt wurde.

**Tabelle 9:** Auswertung der Ge-Spektren nach dem Fenster-Methode. Vergleich mit NaI-Konzentrationen

NaI-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	Ge-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	$\Delta(K)$ [%]	$\Delta(U)$ [%]	$\Delta(Th)$ [%]
KBD10A	1.49975	2.80536	11.7464	KBD10A_G	1.3741	2.7309	10.5816	8.4	2.7	9.9
KBD10B	2.88121	3.10843	13.6698	KBD10B_G	2.975	3.124	16.8479	-3.3	-0.5	-23.2
KBD10C	4.35764	3.73002	11.1833	KBD10C_G	4.4562	3.926	10.9867	-2.3	-5.3	1.8
KBD18	0.26905	0.29496	0.34738	KBD18_G	0.2796	0.2041	0.23002	-3.9	30.8	33.8
KBD23A	2.67755	3.23348	12.4042	KBD23A_G	2.6904	3.3455	11.7851	-0.5	-3.5	5.0
KBD23B	1.69723	1.97963	2.89356	KBD23B_G	1.5792	1.712	2.43204	7.0	13.5	15.9
KBD03	3.02765	3.47052	15.2283	KBD03_G	3.1612	3.3987	15.8461	-4.4	2.1	-4.1
KBD12	1.45903	2.29775	7.73775	KBD12_G	1.4128	2.2257	7.59793	3.2	3.1	1.8
TBD01A	0.85126	2.64832	6.22603	TBD01A_G	0.8339	2.1503	5.50726	2.0	18.8	11.5
TBD01B	2.81547	3.52992	13.2052	TBD01B_G	2.8328	3.6901	12.7853	-0.6	-4.5	3.2
TBD01C	2.81728	3.53786	11.9425	TBD01C_G	2.828	3.5742	12.5681	-0.4	-1.0	-5.2
TBD02A	2.90659	3.97688	17.2858	TBD02A_G	3.0324	3.6577	18.2719	-4.3	8.0	-5.7
TBD02B	2.79613	3.27342	13.6293	TBD02B_G	2.8763	3.0853	14.0915	-2.9	5.7	-3.4
TBD02C	2.06704	3.14022	12.7758	TBD02C_G	2.1334	2.9029	12.7899	-3.2	7.6	-0.1
TBD02D	2.79197	3.46166	15.0112	TBD02D_G	2.8426	3.3497	15.677	-1.8	3.2	-4.4
Mittelwerte								3.2	7.4	8.6
Mittelwerte ohne Ausreisser (Amphibolit & Eklogitamphibolit)								2.9	4.0	6.0

## 9.2 Auswertung der Ge-Spektren mit Gewichtungen

Ein andere Methode, realistischere Resultate aus den Ge-Spektren abzuleiten, besteht darin, Gewichtungen anstatt der wahren Umrechnungsfaktoren zu verwenden, um von den spezifischen Aktivitäten auf die Konzentrationen zu schliessen. Diese Gewichtungen werden aus dem Vergleich der Aktivitäten der Standards mit denen bekannter Konzentrationen bestimmt. Das ist praktisch die Ermittlung von fi-Koeffizienten, nur dass hier 3 anstatt von 9 Koeffizienten resultieren, da sich die ermittelten K-,U- bzw. Th-spezifischen Aktivitäten nur auf die eigene Isotopen-Aktivität zurückführen lassen. Die Gewichtungen für die verschiedenen Elemente sind in Tabelle 10 zusammengefasst:

**Tabelle 10** Gewichtungen für die Berechnung der K-,U-Th-Konzentrationen aus denen spezifische Aktivitäten

	richtige Umrechnungsfaktoren	Gewichtungen
1ppm U	12.45 Bq/kg	9.57 Bq/kg
1ppm Th	4 Bq/kg	3.54 Bq/kg
1% K	309 Bq/kg	303.54 Bq/kg

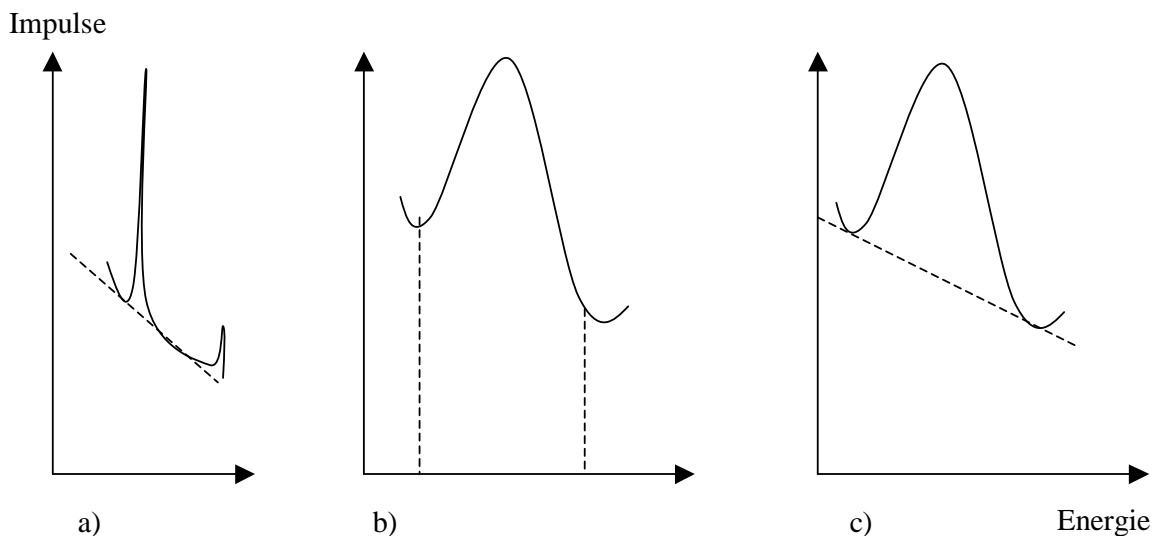
Tabelle 11 enthält die Konzentrationsdaten aus den Auswertungen der Ge-Spektren anhand der Gewichtungen. Der Mittelwert der Abweichungen von den Auswertungen dieser Methode und der NaI-Konzentrationswerte beträgt für K 2.6%, für U 5.4% und für Th 4%. Diese Werte stellen ein besseres Ergebnis dar, als jene der Auswertung der Ge-Spektren nach der Fenstermethode.

**Tabelle 11:** Auswertung der Ge-Spektren anhand der Gewichtungen aus Tabelle 10. Vergleich mit NaI-Konzentrationen

NaI-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	Ge-Daten	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	$\Delta(K)$ [%]	$\Delta(U)$ [%]	$\Delta(Th)$ [%]
KBD10A	1.49975	2.80536	11.7464	KBD10A_G	1.3412	2.6745	10.5475	10.6	4.7	10.2
KBD10B	2.88121	3.10843	13.6698	KBD10B_G	2.9297	3.3466	14.0539	-1.7	-7.7	-2.8
KBD10C	4.35764	3.73002	11.1833	KBD10C_G	4.3025	3.9732	11.3997	1.3	-6.5	-1.9
KBD18	0.26905	0.29496	0.34738	KBD18_G	0.276	0.2544	0.35643	-2.6	13.8	-2.6
KBD23A	2.67755	3.23348	12.4042	KBD23A_G	2.6006	3.1513	11.8442	2.9	2.5	4.5
KBD23B	1.69723	1.97963	2.89356	KBD23B_G	1.5474	1.6109	2.55044	8.8	18.6	11.9
KBD03	3.02765	3.47052	15.2283	KBD03_G	3.0849	3.6975	16.32	-1.9	-6.5	-7.2
KBD12	1.45903	2.29775	7.73775	KBD12_G	1.3767	2.0819	6.99591	5.6	9.4	9.6
TBD01A	0.85126	2.64832	6.22603	TBD01A_G	0.8193	2.0563	5.53267	3.8	22.4	11.1
TBD01B	2.81547	3.52992	13.2052	TBD01B_G	2.739	3.6181	12.8644	2.7	-2.5	2.6
TBD01C	2.81728	3.53786	11.9425	TBD01C_G	2.734	3.8755	12.0982	3.0	-9.5	-1.3
TBD02A	2.90659	3.97688	17.2858	TBD02A_G	2.9874	4.0421	18.3293	-2.8	-1.6	-6.0
TBD02B	2.79613	3.27342	13.6293	TBD02B_G	2.8306	3.4917	14.1245	-1.2	-6.7	-3.6
TBD02C	2.06704	3.14022	12.7758	TBD02C_G	2.0824	3.0343	12.7459	-0.7	3.4	0.2
TBD02D	2.79197	3.46166	15.0112	TBD02D_G	2.7989	3.7382	15.4833	-0.2	-8.0	-3.1
Mittelwerte								3.3	8.3	5.3
Mittelwerte ohne Ausreisser (Amphibolit & Eklogitamphibolit)								2.6	5.4	4.0

### 9.3 PROBLEME BEI DER ERMITTLUNG DER FENSTER-IMPULS-INHALT BEIM NAI-SPEKTROMETER

Eine der grössten Fehlerquellen bei der Ermittlung der Wärmeproduktion liegt in der Berechnung des Fenster-Impuls-Inhaltes. Beim Germaniumspektrometer nähert sich die Form von Peaks hervorragend gut an die ideale Form einer schmalen Gauss'schen Kurve. Das ermöglicht eine genaue Trennung des Peaks vom Background-Verlauf. Da der Inhalt der Kanäle in denen sich eine Gammalinie befindet auch Impulse enthält, die zu einer höheren Energie eines Comptoneffektes einer anderen Gammalinie gehören, ist es wünschenswert, diesen Backgroundeffekt zu eliminieren. Dafür wird der Background-Trend vom gesamten Peak-Impuls-Inhalt subtrahiert. Der Background unter dem Peak wird nach Gl 23 berechnet. Diese Annahme stimmt für Germanium-Spektren sehr gut überein, da sich jeder einzelne Peak über ein sehr kleines Energie-Intervall erstreckt (z.B. nur etwa 5 KeV bei 1460KeV-<sup>40</sup>K-Linie). Beim NaI-Spektrometer reicht der <sup>40</sup>K-Peak bis ca. 300 keV. Ob in diesem Fall der Background aus der Berechnung nach Gl 23 noch eine gute Näherung darstellt, ist fraglich.



**Abbildung 16:** Ansatz für die Berechnung des Peakinhaltes - Impulsinhaltbestimmung auf Basis von: a) Nettopeakinhalt bei Ge-Spektren. b) Bruttopeakinhalt bei NaI-Spektren und c) Nettopeakinhalt bei NaI-Spektren

**Tabelle 12** Spezifische Aktivitäten berechnet mit GL.18. für Ge (aus Netto-Peak-Impuls-Inhalt) und NaI (aus Brutto- bzw. Netto-Peak-Impuls-Inhalt).

Aktivität in Probe-Bez.	Ge (nur Peak)			NaI (ganze Fenster)			NaI (nur Peak)		
	K-Fe [Bq/g]	U-Fe [Bq/g]	Th-Fe [Bq/g]	K-Fe [Bq/g]	U-Fe [Bq/g]	Th-Fe [Bq/g]	K-Fe [Bq/g]	U-Fe [Bq/g]	Th-Fe [Bq/g]
K-St.	0,0093	0,0000	0,0000	0,0696	0,0001	0,0000	0,0655	0,0000	0,0000
Th-St.	0,0002	0,0006	0,0097	0,0418	0,0244	0,0440	0,0000	0,0039	0,0307
U-St.	0,0000	0,0092	0,0000	0,1282	0,1351	0,0036	0,0000	0,0905	0,0000
KBD10A	0,0003	0,0000	0,0001	0,0031	0,0006	0,0005	0,0023	0,0002	0,0003
KBD10B	0,0006	0,0000	0,0001	0,0054	0,0007	0,0006	0,0042	0,0002	0,0004
KBD10C	0,0009	0,0000	0,0001	0,0077	0,0007	0,0005	0,0065	0,0003	0,0003
KBD18	0,0001	0,0000	0,0000	0,0005	0,0000	0,0000	0,0005	0,0000	0,0000
KBD23A	0,0006	0,0000	0,0001	0,0050	0,0007	0,0006	0,0043	0,0002	0,0003
KBD23B	0,0003	0,0000	0,0000	0,0030	0,0003	0,0001	0,0024	0,0002	0,0001
KBD03	0,0007	0,0000	0,0002	0,0057	0,0008	0,0007	0,0041	0,0002	0,0005
KBD12	0,0003	0,0000	0,0001	0,0028	0,0005	0,0003	0,0022	0,0002	0,0002
TBD01A	0,0002	0,0000	0,0001	0,0019	0,0005	0,0003	0,0011	0,0002	0,0002
TBD01B	0,0006	0,0000	0,0001	0,0053	0,0007	0,0006	0,0042	0,0003	0,0004
TBD01C	0,0006	0,0000	0,0001	0,0053	0,0007	0,0005	0,0041	0,0004	0,0004
TBD02A	0,0006	0,0000	0,0002	0,0057	0,0009	0,0008	0,0043	0,0003	0,0005
TBD02B	0,0006	0,0000	0,0001	0,0053	0,0007	0,0006	0,0039	0,0002	0,0004
TBD02C	0,0004	0,0000	0,0001	0,0041	0,0007	0,0006	0,0032	0,0002	0,0004
TBD02D	0,0006	0,0000	0,0002	0,0053	0,0008	0,0007	0,0041	0,0003	0,0005



Ausserdem ist die Identifizierung der Grenzkanäle bei NaI-Spektren aufgrund von Überlappungen der Peaks untereinander und Verzerrungen der Peakform schwieriger als beim Ge-Spektrometer. Aus diesem Grund wird für die Berechnung der Impulse und demzufolge der Aktivität bei NaI-Spektren der ganze Fenster-Inhalt anstatt einzelner Peak-Inhalte bevorzugt. Der „Mehrinhalt“ des Fensters, welcher hauptsächlich auf den Comptoneffekt einer energetisch höherliegenden Gammalinie zurückzuführen ist, stellt eine Fehlerquelle dar. Dieser Fehler wird minimiert, indem dieser Effekt bei der Feststellung der  $f_i$ -Koeffizienten berücksichtigt wird. Tabelle 12 enthält die Aktivitäten der K-, U- und Th-Fenster der Proben. Die daraus berechneten  $f_i$ -Koeffizienten, erforderlichlich zur Berechnung der Konzentrationen, sind in Tabelle 13 enthalten (9 Koeffizienten bilden die 3x3-Matrix). Dazu ist die inverse Matrix  $F^{-1}$  von F gegeben, so dass die Berechnung der Konzentrationen nach Gl 31 möglich wird.

$$C = F^{-1} \cdot A \quad (31)$$

C Konzentrationen der Elemente K, U und Th in der Probe

A Aktivität der Probe im K-, U- und Th-Fenster

$F^{-1}$  Inverse der Koeffizienten-Matrix F

ODER

$$\begin{pmatrix} K \\ U \\ Th \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} ff_{11} & ff_{12} & ff_{13} \\ ff_{21} & ff_{22} & ff_{23} \\ ff_{31} & ff_{32} & ff_{33} \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \alpha_K \\ \alpha_U \\ \alpha_{Th} \end{pmatrix} \quad (32)$$

K, U, Th Konzentrationen der Elemente K, U und Th

$ff_{ii}$  Koeffizienten der inversen Matrix ( $F^{-1}$ ) von F

$\alpha_K, \alpha_U$  und  $\alpha_{Th}$  Aktivität der Probe im K-, U- und Th-Fenster

Wie aus Gl. 32 zu entnehmen ist, wird der Wert der K-Konzentration auch von der Konzentration an U und Th beeinflusst. Diese Abhängigkeit ist von den Koeffizienten  $f_{12}$  und  $f_{13}$  geregelt. Diese sind negativ, was bedeutet, dass die Einflüsse der U- bzw. Th-Konzentration (Compton-Impulse aus U- und Th-Zerfall im K-Fenster) subtrahiert werden (wie es zu erwarten wäre). Tabelle 13 enthält die Koeffizienten der F-Matrix und der Inversen Matrix  $F^{-1}$ . Ausgangsbasis für die Aktivitäten in der Berechnung von F bzw.  $F^{-1}$  ist für das

Ge-Spektrometer der Netto-Peak-Impuls-Inhalt und für das NaI-Spektrometer der Brutto- bzw. Netto-Peak-Impuls-Inhalt.

**Tabelle 13:** Berechnung der F- und  $F^{-1}$ -Koeffizienten für Ge (aus Netto-Peak-Impuls-Inhalt) und NaI (aus Brutto- bzw. Netto-Peak-Impuls-Inhalt)

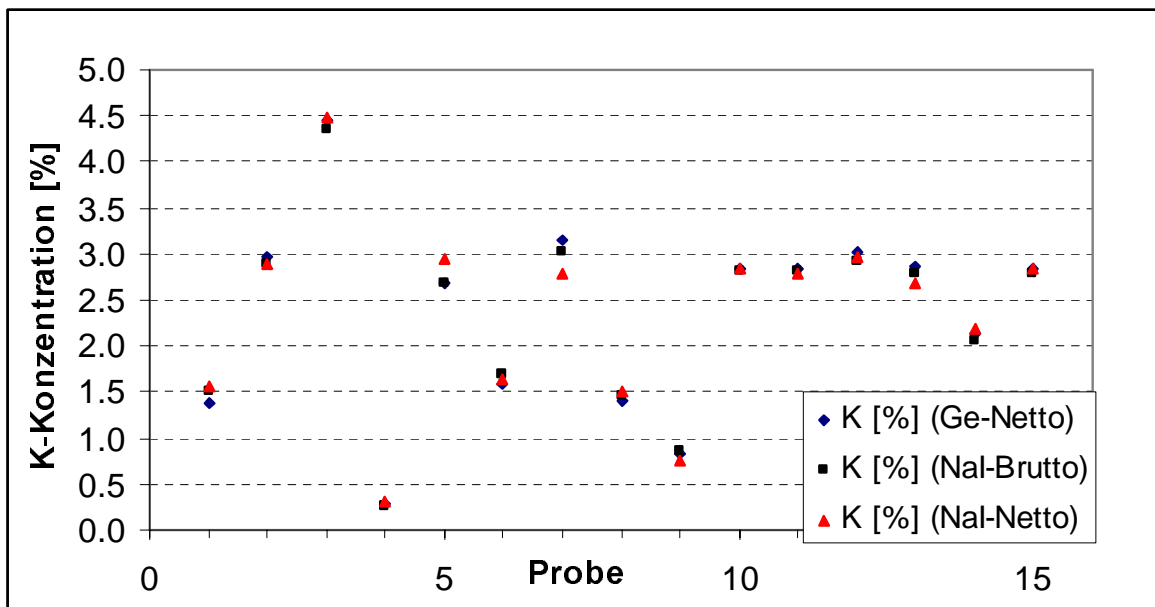
Fcoeff_Ge (nur Peak)			Fcoeff_NaI (ganze Fenster)			Fcoeff_NaI_2 (nur Peak)		
F			F			F		
0.00021	0	1.89E-07	0.00155	0.00013	3.67E-05	0.00146	9.38E-10	9.26E-10
0	9.25E-06	1.98E-07	1.71E-06	0.00014	1.90E-05	8.14E-09	9.05E-05	2.35E-07
0	0	9.73E-06	2.74E-07	3.58E-06	4.38E-05	4.87E-09	1.02E-09	3.07E-05
Inverse(F)			Inverse(F)			Inverse(F)		
4829.1	0	-94.03	645.08	-604.71	-278.57	685.42	-0.0071	-0.0206
0	108160	-2197.9	-7.6626	7493.5	-3235	-0.06131	11044	-84.632
0	0	102820	-3.4131	-608.7	23091	-0.10871	-0.36688	32546

Es lässt sich beobachten, dass für Koeffizienten, welche für das ganze Fenster berechnet wurden,  $ff_{12}$  (-604.7) und  $ff_{13}$  (-278.8) dieselbe Größenordnung von  $ff_{11}$  (645.1) haben. Das bedeutet, dass die Einflüsse von U- bzw. Th-Konzentration für die K-Konzentrationen wichtig sind. Wird derselbe Vergleich für die  $f_{ii}$ -Koeffizienten des Germanium-Spektrometers ( $ff_{11}=4829.1$ ,  $ff_{12}=0$ ,  $ff_{13}=-94$ ) und für die Koeffizienten des NaI-Spektrometers (berechnet nur für Peaks;  $ff_{11}=685.4$ ,  $ff_{12}=-0.007$ ,  $ff_{13}=-0.021$ ) gemacht, bei denen  $ff_{11}$  zwei bis drei Größenordnungen von  $ff_{12}$  und  $ff_{13}$  besitzt, stellt man fest, dass die Einflüsse der U- bzw. Th-Konzentration für die K-Konzentrationen verschwindend klein sind. Wenn man, nach demselben Prinzip für die Koeffizienten von NaI, die für das ganze Fenster berechnet wurden, einen Vergleich der Koeffizienten für die U-Konzentration durchführt ( $ff_{21}=-7.7$ ,  $ff_{22}=7493.5$ ,  $ff_{23}=-3235$ ), erkennt man, dass nur noch der Koeffizient von Th eine Rolle spielt. Ein Vergleich der Koeffizienten für die Th-Konzentration ( $ff_{31}=-3.4$ ,  $ff_{32}=-608.7$ ,  $ff_{33}=23091$ ) zeigt, dass die Koeffizienten von K und U bei der Bestimmung der Th-Konzentration eine untergeordnete Rolle spielen. Da die Ermittlung der Peak-Impuls-Inhalte für das Ge-Spektrometer eine grössere Genauigkeit als bei NaI-Spektrometer bietet, wird angenommen, dass die Konzentrationen aus dem Ge-Spektrometer genauer sind als die aus beiden Auswertemethoden des NaI-Spektrometers.

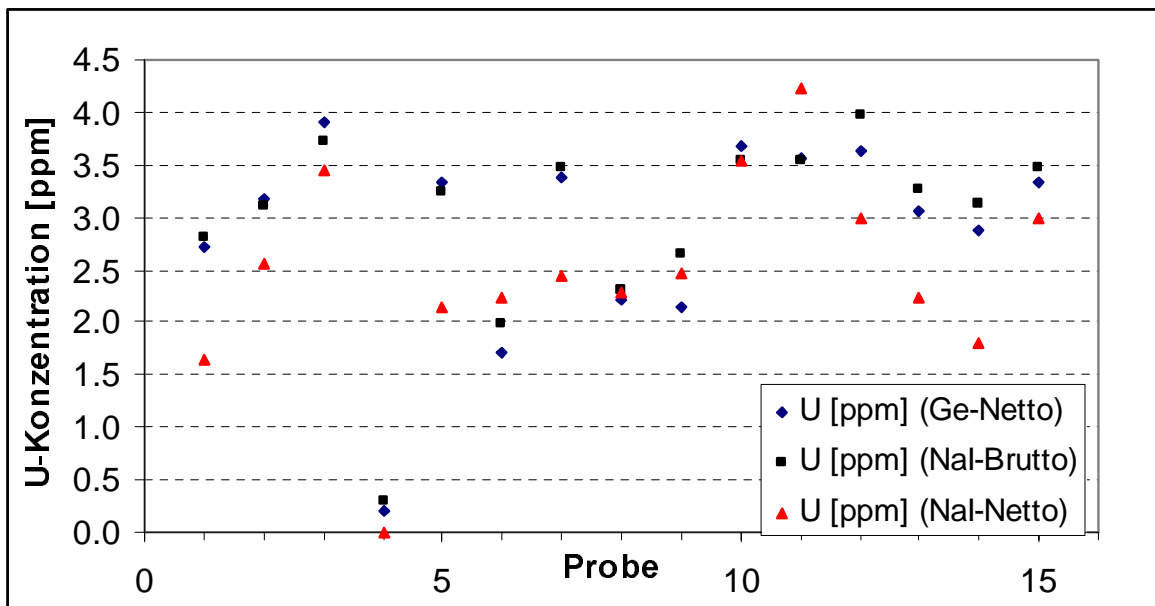
In Abbildung 17 (A-C) sind die K-, U- bzw. Th-Konzentrationen aus Tabelle 14 graphisch dargestellt. In den Abbildungen (A-C) ist deutlich zu erkennen, wie sich die Konzentrationswerte aus Ge (Netto)- und NaI (Brutto)- Spektrometern messungen ähneln, während die Daten des NaI (Netto)-Spektrometers nicht nur verschieden zu dem des Ge-Spektrometers sondern auch zu NaI (Brutto) sind. Theoretisch sollte die Auswertung der Netto- und Brutto-Impuls-Inhalt der NaI-Spektrometern messungen dieselben Resultate aufweisen. Da die Werte für NaI-Brutto stimmen besser mit denen aus der Ge-Spektrometern messung überein als mit den NaI-Netto-Daten. Man kann deshalb annehmen, dass die Brutto-NaI-Auswertung genauere Resultate liefert. Dies zeigt, wie problematisch es ist, die Auswertungs-fenster des Netto-Impuls-Inhalt am NaI-Spektrometern zu berechnen.

**Tabelle 14** K-, U- bzw. U-Konzentrationen berechnet für Ge und NaI. Für die Berechnungen wurden die spezifische Aktivitäten aus Tabelle 12 und die  $f_i$ -Koeffizienten aus Tabelle 13 benutzt

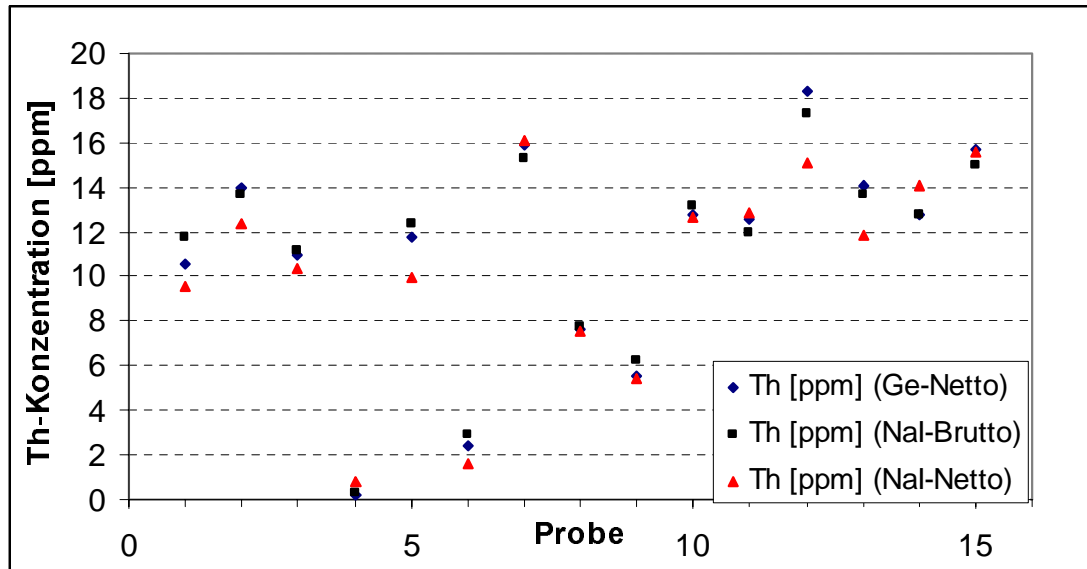
Probe	Ge (nur Peak)			NaI (ganze Fenster)			NaI (nur Peak)		
	Konzentrationen			Konzentrationen			Konzentrationen		
	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]	K [%]	U [ppm]	Th [ppm]
K_St.	44.87	0	0	44.87	0	0	44.87	0	0
Th_St.	0	40	1000	0	40	1000	0	40	1000
U_St.	0	1000	0	0	1000	0	0	1000	0
KBD10A	1.37	2.72	10.58	1.50	2.81	11.75	1.56	1.64	9.58
KBD10B	2.98	3.17	13.98	2.88	3.11	13.67	2.89	2.55	12.38
KBD10C	4.46	3.91	10.99	4.36	3.73	11.18	4.47	3.44	10.36
KBD18	0.28	0.20	0.23	0.27	0.29	0.35	0.32	0.00	0.76
KBD23A	2.69	3.33	11.79	2.68	3.23	12.40	2.93	2.15	9.93
KBD23B	1.58	1.70	2.43	1.70	1.98	2.89	1.64	2.24	1.65
KBD03	3.16	3.38	15.85	3.03	3.47	15.23	2.78	2.45	16.04
KBD12	1.41	2.21	7.60	1.46	2.30	7.74	1.51	2.28	7.54
TBD01A	0.83	2.14	5.51	0.85	2.65	6.23	0.75	2.47	5.42
TBD01B	2.83	3.67	12.79	2.82	3.53	13.21	2.85	3.53	12.68
TBD01C	2.83	3.56	12.57	2.82	3.54	11.94	2.78	4.23	12.83
TBD02A	3.03	3.64	18.27	2.91	3.98	17.29	2.98	3.00	15.04
TBD02B	2.88	3.07	14.09	2.80	3.27	13.63	2.68	2.25	11.87
TBD02C	2.13	2.89	12.79	2.07	3.14	12.78	2.18	1.81	14.09
TBD02D	2.84	3.33	15.68	2.79	3.46	15.01	2.84	2.99	15.58



- A -



- B -



- C -

**Abbildung 17:** K-, U- und Th-Konzentrationen für Koralm-Proben: Vergleich zwischen Ge- und NaI-Spektromettermessungen (Werte aus Tabelle 14). K-Konzentrationen (A), U-Konzentration (B) und Th-Konzentrationen (C)

---

## 10 BESTIMMUNG DER $f_i$ -KOEFFIZIENTEN ANHAND VON PROBEN

Gammastrahlungsspektrometrie wird nicht nur zur Wärmeproduktionsbestimmungen an Gesteinsproben oder vergleichbaren Problemstellungen verwendet, sondern auch zur Überwachung von Radioaktivitätsintensität in der Umwelt. Für diesen Zweck wird Aerogammastrahlungsspektrometrie betrieben. Die im Einsatz benutzten NaI-Detektoren müssen regelmässig kalibriert werden. Zu überprüfen ist die  $f_i$ -Konstanten-Robustheit, d.h. ob deren Bestimmung anhand der mit einem Ge-Spektrometer gemessenen Aktivitätswerte möglich ist. Insbesondere muss der Fehlereinfluss der Gesteinsproben im Vergleich zu beispielsweise den Standards mit hohen Isotopenkonzentrationen untersucht werden. Weiterhin ist zu prüfen, ob die Kalibrierung nicht auf der Grundlage einfacher Proben mit bekannter Aktivität anstelle von Standardquellen vorgenommen werden könnten.

Für die Berechnung der  $f_i$ -Koeffizienten wurden verschiedene Proben-Tripel sortiert. Proben-Tripel ähnlicher Aktivität sowie Proben mit stark unterschiedlichen Aktivitäten sind dafür ausgewählt worden. Tabelle 15 enthält die Namen der Probentripletten. Die entsprechenden Konzentrationen für die Berechnung der  $f_i$ -Koeffizienten beziehen sich auf Tabelle 6. Als Ausgangsdaten für den Vergleich werden die Konzentrationen an K, U, und Th der K-, U- bzw. Th-Standards und die daraus berechnete  $f_i$ -Koeffizienten verwendet.

Die spezifische Aktivität der Probe im K-, U- und Th-Fenster wurden in Gl 18 eingesetzt, um die  $f_i$ -Koeffizienten zu berechnen. Für die K-, U- und Th-Konzentrationen der Gesteinsproben wurden die mit den Standards berechneten Werte eingesetzt (Werte aus Tabelle 12). Wichtig bei der Wahl der Probe zur Berechnung der  $f_i$ -Konstanten ist, dass die jeweiligen K-, U- und Th-Konzentrationen nicht dieselben Werte aufweisen. Prinzipiell müssen die Proben eines Tripel untereinander linear unabhängig sein.

**Tabelle 15:** Proben-Bezeichnung der Tripel für die Berechnung der  $f_i$ -Koeffizienten

Ausgangsdaten	K_Standard (NaI)	Th_Standard (NaI)	U_Standard (NaI)
	K_Standard_G	Th_Standard_G	U_Standard_G
1°Tripel	KBD10A_G	KBD10B_G	KBD10C_G
2°Tripel	KBD23A_G	KBD23B_G	KBD03_G
3°Tripel	TBD01B_G	TBD01C_G	TBD02A_G
4°Tripel	KBD12_G	TBD01A_G	TBD01B_G

**Tabelle 16:** Berechnete  $f_i$ -Koeffizienten für NaI aus verschiedene Proben-Tripel aus Tabelle 15

<b><math>f_i</math> - Koeffizienten für NaI</b>		
<b>F(Standards aus NaI)</b>		
0.001552	0.000128	3.67E-05
1.71E-06	0.000135	1.90E-05
2.74E-07	3.58E-06	4.38E-05
<b>F(Standards aus Ge)</b>		
0.00158	0.0001674	4.04E-05
1.74E-06	0.0001764	2.03E-05
2.79E-07	4.68E-06	4.94E-05
<b>F(1°Trippel)</b>		
0.001268	0.000528	-5.67E-06
-3.31E-05	0.000181	1.49E-05
-4.21E-05	7.89E-05	3.44E-05
<b>F(2°Trippel)</b>		
0.001629	0.000285	-2.58E-05
8.17E-05	0.000100	1.04E-05
-7.20E-05	8.99E-05	3.77E-05
<b>F(3°Trippel)</b>		
0.001448	0.000285	1.24E-05
-6.02E-05	0.000148	2.82E-05
-0.000559	0.000399	5.53E-05
<b>F(4°Trippel)</b>		
0.001159	9.13E-05	0.000132
-6.09E-05	0.000248	-5.54E-07
2.40E-05	6.28E-05	2.25E-05

Der Vergleich der  $f_i$ -Koeffizienten in Tabelle 16, berechnet anhand der Standards und den Proben-Trippeln, zeigt sehr grosse Unterschiede. Das wird deutlich, wenn man anhand dieser  $f_i$ -Koeffizienten die Konzentrationen für die Standards berechnet (Tabelle 17) Deswegen kann man schlussfolgern, dass ihre Bestimmung anhand von Gesteinsproben unmöglich ist.

**Tabelle 17:** Bestimmung der K-, U- und Th-Konzentration bei den K-, U- bzw. Th-Standard beim NaI-Spektrometer anhand der  $f_i$ -Koeffizienten berechnet aus Probentripel gemessen mit dem Ge-Spektrometer. Für die Berechnung der Konzentrationen werden die spezifische Aktivitäten der Standards aus dem NaI-Versuch mit die  $f_i$ -Koeffizienten in der Tabelle multipliziert.

		<b>K [%]</b>	<b>U [ppm]</b>	<b>Th [ppm]</b>
Soll-Werte	K_Standard	44.87	0	0
	Th_Standard	0	40	1000
	U_Standard	0	1000	0
fi aus K_St_G,U_St_G und Th_St_G	K_Standard	44.08	7E-18	0
	Th_Standard	-3E-15	35.9	885.9
	U_Standard	4E-15	766	0
fi aus KBD10A_G, KBD10B_G KBD10C_G	K_Standard	52.7	5.8	51.6
	Th_Standard	22.5	38.3	1218.5
	U_Standard	-276.5	882.0	-2258.8
fi aus KBD23A_G KBD23B_G KBD03_G	K_Standard	62.2	-82.6	315.7
	Th_Standard	14.2	142.8	852.0
	U_Standard	-433.0	2358.8	-6349.4
fi aus TBD01B_G, TBD01C_G TBD02A_G	K_Standard	29.5	118.9	-558.6
	Th_Standard	16.5	30.9	737.8
	U_Standard	253.5	-1387.6	12627
fi aus KBD12_G, TBD01A_G TBD01B_G	K_Standard	73.3	1780	-128.1
	Th_Standard	-197.9	54.0	2016.7
	U_Standard	270.8	606.5	-1825.3

Die Werte aus den Standards stellen die besten Resultate dar, jene der Gesteinsproben-Tripel hingegen sind unbrauchbar. Demzufolge können die Koeffizienten für den Detektor nicht anhand von Gesteinsprobe bestimmt werden.



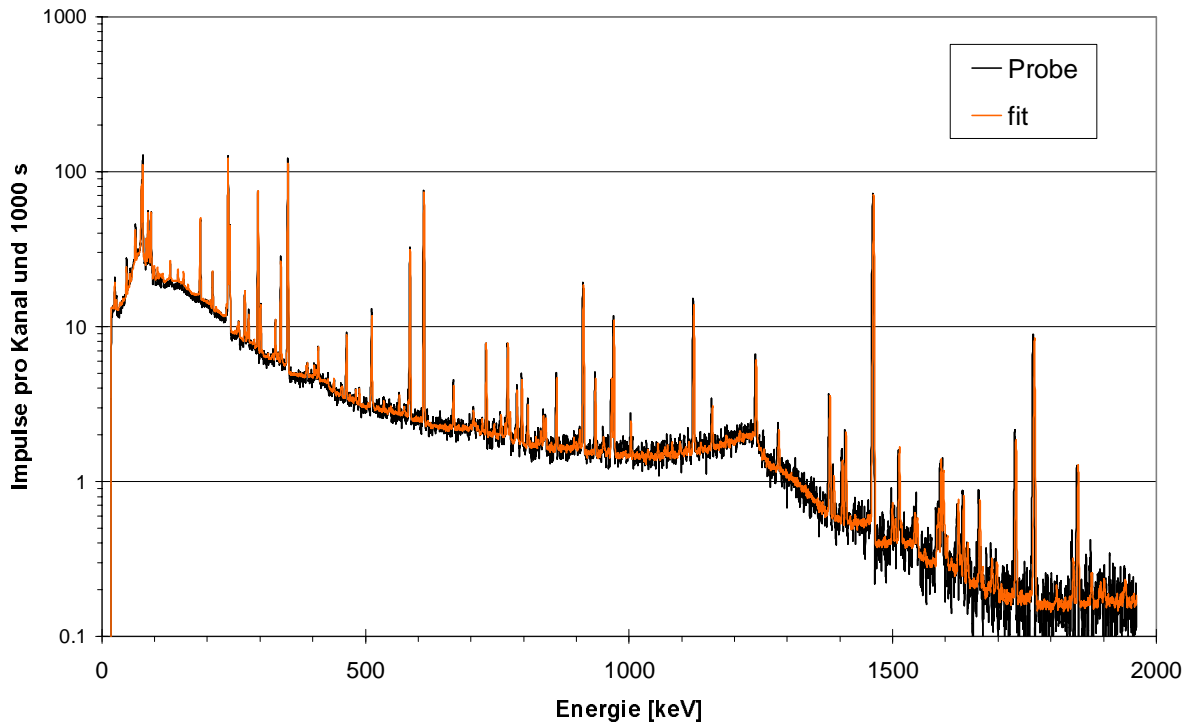
---

# 11 UNTERSUCHUNG DER SPEKTRENFORM: FITTING VON SPEKTREN

Zu überprüfen war, wie charakteristisch die Form eines beliebigen Spektrums in Zusammenhang mit den enthaltenen Nukliden einer Probe ist. Anders formuliert war zu prüfen, ob die Reproduzierbarkeit der Spektrenform durch zufällige Prozesse verringert wird. Für die Berechnung der spezifischen Aktivitäten wird nur mit einer begrenzten Anzahl von Daten aus dem Spektrum gearbeitet: in Ge-Spektren mit Peaks von mindestens 1%  $\gamma$ -Wahrscheinlichkeit und in NaI-Spektren nur mit drei Fenstern (ungefähr 25% der Kanäle). Die Form eines Spektrums ist aber nicht willkürlich, sondern abgesehen vom Detektor-Typ auch von der Menge der verschiedenen Isotope abhängig. Im Folgenden wurde versucht, die Form eines beliebigen Spektrums anzupassen. Dafür sind charakteristische Spektren der verschiedenen Isotope, hier K, U und Th, erforderlich. Diese müssen in einer über die Zeit, die Masse und die Aktivität normierten Form vorliegen. Vom Spektrum der Probe, welche „gefittet“ werden soll, muss den Nulleffekt subtrahiert werden. Das „fit“ berechnet sich nach Gl 33:

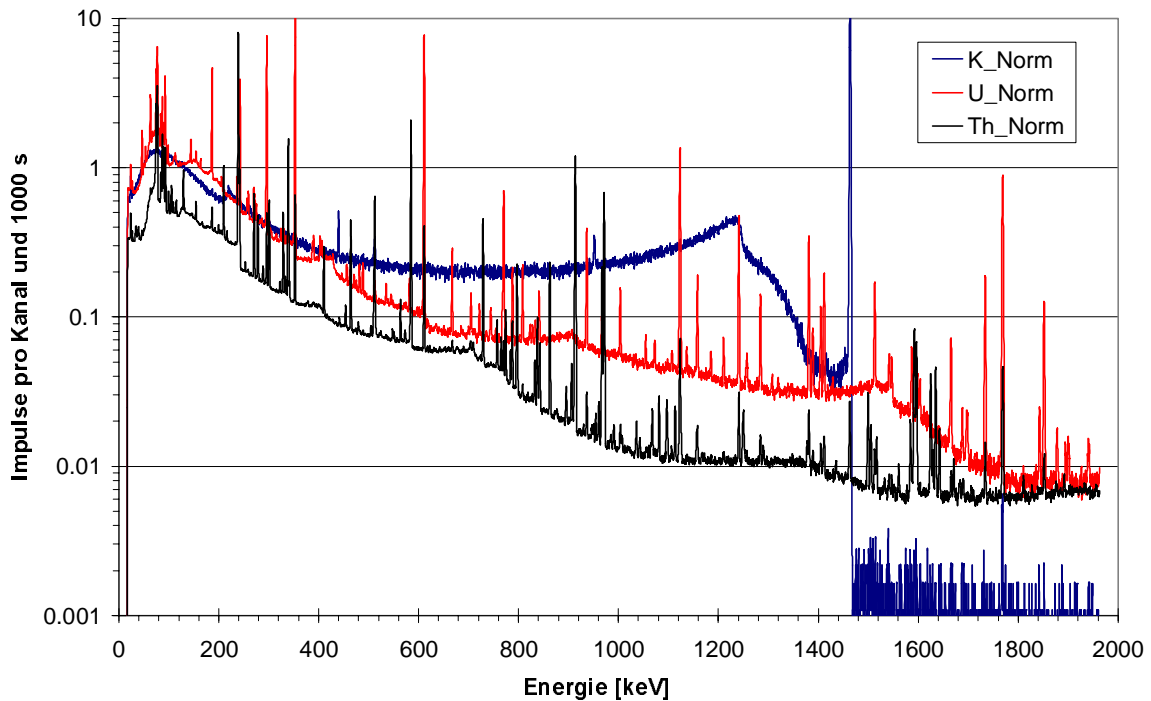
$$Spektrum_{Fit} = \sum_i Konzentration_i * Spektrum_{i-te Standard} \quad (33)$$

i	Isotop für dieses Beispiel K, U, Th
Konzentration <sub>i</sub>	Konzentration der i-te-Isotop in der Probe
Spektrum <sub>i</sub> :	normierte Spektrum der i-te-Standard



**Abbildung 18:**normierte Spektrum einer Gesteinsprobe Probe (schwarz) und Spektrum des „fit“ (orange, berechnet nach Gl. 33)

Abbildung 18 zeigt das „Fit-Spektrum“ hergestellt nach der Methode in Gl.33 zusammen mit dem zugehörigen gemessenen Spektrum. Der Fit stimmt sehr gut mit dem gemessenen Spektrum überein. Um einen solchen „fit“ zu erstellen, müssen alle verwendeten Spektren mit derselben Gain am Hauptverstärker gewonnen werden. Erfolgt dies nicht, stimmt die Relation Energie zu Kanal der verschiedenen Spektren untereinander nicht mehr überein. Peaks derselben  $\gamma$ -Linie überlappen sich in Folge nicht mehr. Abbildung 19 enthält die normierten Spektren für K, U und Th des Ge-Spektrometers. Die Formen der Spektren sind für die enthaltenen Isotope und für das Messgerät charakteristisch.



**Abbildung 19:** Spektren von K, U und Th für Ge-Spektrometer: die Spektren sind zuerst mit dem Background subtrahiert und dann auf 1000 s 500 g und 1% K bzw. 1ppm U oder 1ppmTh reduziert.

Ein Vorteil des „fit“ gegenüber dem realen Spektrum ist der bessere Verlauf der Impulshöhe, welche kleinere Schwankung aufweist (beim Summieren der Spektren, zufällige Impulshöhe heben sich ab). Die Ursache dafür ist vor allem in der Diskretisierung der Energie zu suchen

Mit dieser Methode ist es möglich, für einen bestimmten Detektor, synthetische Spektren für beliebige Isotope und Isotopenkonzentrationen zu erstellen. Dazu muss ein Katalog von Standardspektren (normierte Spektren von Einzelisotopen-Quellen, Bsp. Abbildung 19) vorhanden sein.

---

## 12 DISKUSSION UND SCHLUSSFOLGERUNG

Wie aus der Vergleich der Daten des NaI- und Ge- Spektrometer zu entnehmen ist (vgl. Abbildung 13 und Tabelle 6), sind systematische Unterschiede der Resultate festzustellen. Die Konzentrationen aus der Auswertung der Ge-Spektren liegen stets unterhalb derer der NaI-Spektren. Im Folgenden werden die Fehlerquellen untersucht, die eine solche Abweichung verursacht haben können. Für Ge-Spektrometer wurden folgende Annahmen getroffen:

1. Vorhandene Ausbeutekurve wurde korrekt bestimmt.
2. Die Ausbeutekurve des Ge-Spektrometers ist immer noch gültig (keine Verschlechterung der Ausbeuteeigenschaften).
3. Computer-Taktfrequenz ist korrekt oder ist konstant über die Zeit geblieben (Taktfrequenz gilt als Basis für die Messzeit-Berechnung).
4. Isotopen-Daten stimmen:  $\lambda$ , %-Ausbeute von  $\gamma$ -Linien, evtl. Zusatzfaktoren (für die Berücksichtigung des Zerfalls in zwei Tochterisotope).
5. Gewicht der Probe ist korrekt.

Für das NaI-Spektrometer wurden folgende Annahmen getroffen:

1. Angegebene Konzentrationen der K-, U- und Th-Standards sind korrekt.
2. Computer-Taktfrequenz ist korrekt oder verändert sich nicht während einer Messreihe.
3. Gewicht der Probe und des Standards wurde korrekt bestimmt.

Folgend werden die Annahmen in Bezug auf ihre Richtigkeit betrachtet:

- Annahme (5-Ge) bzw. (3-NaI) sind berechtigt, da die Gewichte mit einer hochpräzisen Waage bestimmt wurden (Mettler Toledo, Genauigkeit  $\pm 0.01\text{g}$ ). Andererseits hätten Gewichtsfehler kleine absolute Fehler für beide Messgeräte gegeben. In jedem Fall hätten so keine systematischen Fehler zwischen beiden Auswertungen verursacht werden können.
- Annahme (4-Ge): die genutzte Nuklidtabelle scheint fehlerfrei.
- Annahme (3-Ge): ein Vergleich der Spektren (Guspisbachprobe, K-Standard {K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> rein}, Uran-Standard (1000ppm U) und Th-Standard {1000ppm Th, 40ppm U}, Messungen 1991 unmittelbar nach der Bestimmung der Ausbeutekurve), zeigen dieselben Ergebnisse (gleicher Impulsinhalt für jeden Kanal), was auch von gleich hohen spezifischen Aktivitäten der enthaltenen Isotope bestätigt wurde. Es lässt sich schlussfolgern, dass die Taktfrequenz heute gleich schnell verläuft wie zur Zeit der Bestimmung der Ausbeutekurve (vor 10 Jahren). Hätte sich die Taktfrequenz über die Zeit tatsächlich verändert, wäre heute eine höhere Frequenz zu erwarten gewesen, wodurch weniger Impulse „gesammelt“ werden.
- Annahme (2-Ge) ist mit derselben Methode wie Annahme (3-Ge) überprüft worden und kann deshalb als richtig betrachtet werden.
- Annahme (2-NaI): beim NaI-Computer wurde festgestellt, dass die Taktfrequenz langsamer als ein realer Sekundentakt verläuft. Es war nicht möglich zu beobachten, ob es Unterschiede in der Taktfrequenz zwischen Anfang und Ende der Messreihe gegeben hat, da die Beobachtungen der Messzeit erst später vorgenommen wurden. Die  $f_i$ -Koeffizienten berechnen sich aus dem Mittelwert je dreier Messungen der spezifischen Aktivitäten der K-, U- und Th-Standards. Diese Messungen erfolgten vor und nach der Messung der Proben. Damit ist der mit eventuellen Schwankungen der Taktfrequenz verbundene Fehler minimiert.
- Annahme (1-Ge) und (1-NaI): Entweder ist die Ausbeute bereits zu Beginn überschätzt worden oder die K-, U- und Th-Standards enthalten weniger % bzw. ppm der jeweiliger Isotop als angegeben. Da aber die Standards auch chemisch bestimmt wurden, kann man davon ausgehen, dass die Auswertungen aus dem NaI besser als die aus Ge sind.

Aus der obigen Diskussion und aus der Beobachtung der Resultate für die verschiedenen Auswertungen der Ge-Spektren, hat sich der feste Verdacht entwickelt, dass die Ausbeutekurve am Ge-Spektrometer nicht korrekt bestimmt wurde. Die Abweichungen sind mit ca. 20% für Uran-Konzentrationen relativ hoch, während sie für Kalium mit ca. 3% bzw. für Thorium mit ca. 11% noch innerhalb akzeptabler Grenzen liegen. Die alternativen Ge-Auswertungsmethoden, vorgestellt in Kapitel 9.1 bzw. 9.2, liefern deutlich bessere Ergebnisse, welche mit denen des NaI vergleichbar sind und damit eine sehr gute Basis für Vergleichsmessungen zwischen beiden Geräten bilden. Ein Versuch die  $f_i$ -Eichkoeffizienten für dem NaI-Spektrometer, anhand von Proben-Konzentrationen aus dem Ge-Spektrometer zu bestimmen, hat gezeigt, dass dies unmöglich ist. Die Konzentrationswerte sowie die Wärmeproduktion der Koralm-Gesteinsprobe liegen in den Grenzwerten der Literatur (vgl. Rybach und Cermak, 1982).

## 12.1 VOR- UND NACHTEIL BEIDER MESSMETHODEN

Obwohl beide Geräte im Prinzip dasselbe messen, gibt es grosse Unterschiede in der Auflösung der Energie. Für die Ermittlung der Wärmeproduktion ist das NaI-Spektrometer gut geeignet, da die Konzentrationen der Elemente K, U und Th anhand von drei repräsentativen Energiefenstern berechnet werden können. Wenn man aber qualitative oder sogar quantitative Angaben über andere Nuklide geben möchte, lassen sich diese nur schwer ermitteln, da sich die recht breiten Peaks der verschiedenen Nuklide überlagern. Für solche Angaben ist das Ge-Spektrometer besser geeignet. Die schmale Peakbreite erlaubt es, eng benachbarte Peaks aufzulösen. Ausserdem können mit dieser Methode einzelne Nuklide erkannt und ausgewertet werden (Energienlinien). Spektrometrie-Messgeräte sind einer gewissen Drift des Energie-Spektrums bezüglich der Kanäle ausgesetzt, z.B. infolge Temperaturänderungen. Während beim Ge-Spektrometer die Energiekalibrierung ständig unter Kontrolle (automatische Erkennung der Peaks innerhalb der Nachweisgrenze) bleibt, ist eine Energiekalibrierungskontrolle und eventuelle -verbesserung praktisch vor jeder Messung erforderlich. Da beim NaI-Spektrometer die Auswertung nur anhand der drei Energiefenster geschieht, ist es nicht möglich eventuell eintretende Ungleichgewichte in den Isotopenverhältnissen zu ermitteln, die z.B. auf die Ausweichung von Rn aus dem Probenbehälter zurückzuführen sind. Beim Ge kann diese nicht geschehen, da könnte beobachtet werden, ob die Tochterisotope einer Reihe dieselbe Aktivität aufweisen oder nicht.

---

## 13 AUSBLICK

Um die Ursache den festgestellten Unterschiede in den Resultaten der beiden Messgeräte zu finden, wurden in den vorherigen Kapiteln zwei Möglichkeiten vorgeschlagen: die Überprüfung der Konzentrationen der K-, U- und Th-Standard und die Bestimmung einer neuen Ausbeutekurve für das Ge-Messgerät. Die Installation neuer Hardware für die NaI-Messapparatur könnte dazu beitragen, durch die Computertaktfrequenz verursachte Fehler zu eliminieren. Die Installation einer moderneren Version des Mess- und Auswertprogrammes sollte damit verbunden werden.

Unter der Voraussetzung, dass das Ge-Spektrometer mit der erforderlichen Genauigkeit kalibriert ist, können Messungen an diesem Gerät deutlich detailliertere Informationen zu einer Probe erfasst werden als mit einem NaI-Spektrometer. Für die Untersuchung künstlicher Isotope ist dies sehr vorteilhaft. Im Gegensatz dazu genügen weniger detaillierte Daten für die Abschätzung der Wärmeproduktion von natürlichen Gesteinen völlig aus.

---

## 14 LITERATURVERZEICHNIS

- Busch, G. und Ott, H.R. (1996): Anleitung zum Physikalischen Praktikum an der ETH Zürich, 15.Auflage.
- Evans, R.D.(1982): The Atomic Nucleus, Krieger, New York.
- Fontana, G. P. (1991): Beitrag zum "RAPROS" (Radon Programm Schweiz) mittels hochauflösender Gammaskpektrometrie, Diplomarbeit an der Abteilung IXB der ETH-Zürich
- Glenn, F. Knoll (1989): Radiation detection and measurement, Second Edition. John Wiley & Sons New York ISBN 0-471-81504-7
- Rybach, L. (1971): "Radiometric Techniques". In: "Modern Methods of Geochemical Analysis". Wainerdi, R.E. and Uken, E.A., editors. Plenum Publishing Co., New York, Chapter 10, 271-318.
- Rybach, L. ,Cermak, V. (1982): 4.4 Radioaktive Wärmeproduktion in Gesteinen. Landolt-Börnstein,Numerical Data and Funktional Relationships in Science and Technology, Group V, Volume 1: Physikal Properties of Rocks.Subvolume a. Ed.: G. Angenheister. Springer-Verlag, Berlin, p. 353-371.
- Rybach,L (1976): in R.G.J Stens (Ed.): The Physics and Chemisty of Minerals and Rocks, Wiley & Sons, London, p. 309-318.
- Schwarz, G. F. (1985): Software-Entwicklung zur gammaskpektrometrischen Uran-, Thorium- und Kalium-Bestimmung, Diplomarbeit an der Abteilung für Naturwissenschaften der ETH, Zürich.

### WEITFÜHRENDE LITERATUR

- Adams, F. and Dams, R.(1970): Applied Gamma-Ray Spectrometry, Second Edition. Ed. by C. E. Crouthame, Pergamon Press, Oxford [etc.].
- Debertin, K. and Helmer, R.G. (1988): Gamma- and X-ray spectrometry with semiconductor detectors. North-Hoolland Publ. Co., Amsterdam.
- Quittner, P. (1972): Gamma-Ray Spectroscopy. Akademiai Kiado, Budapest.

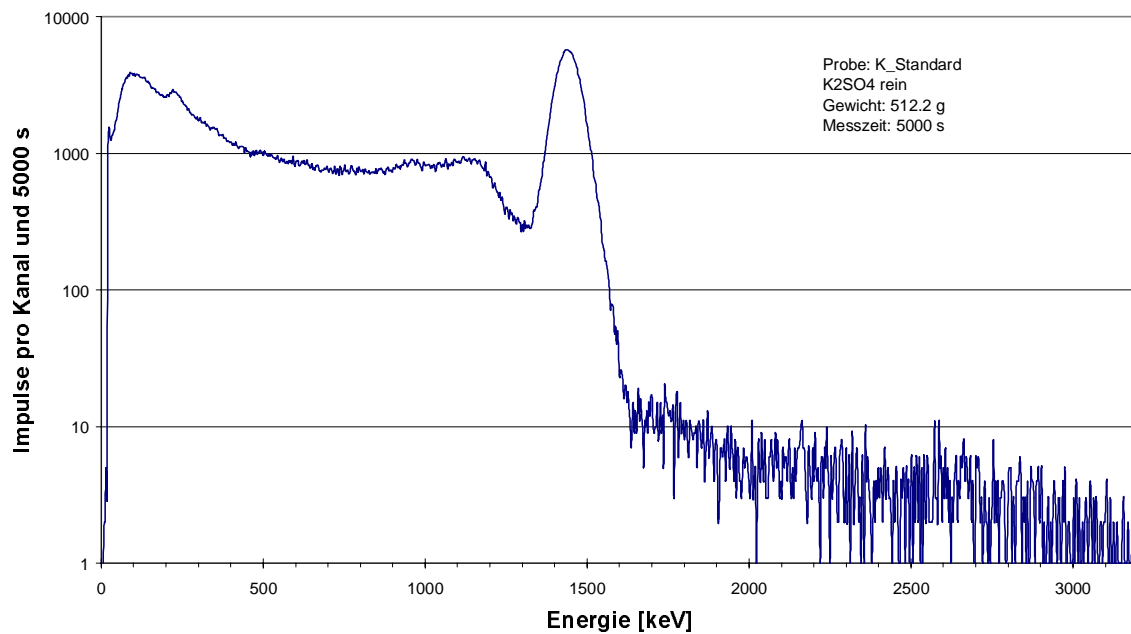


---

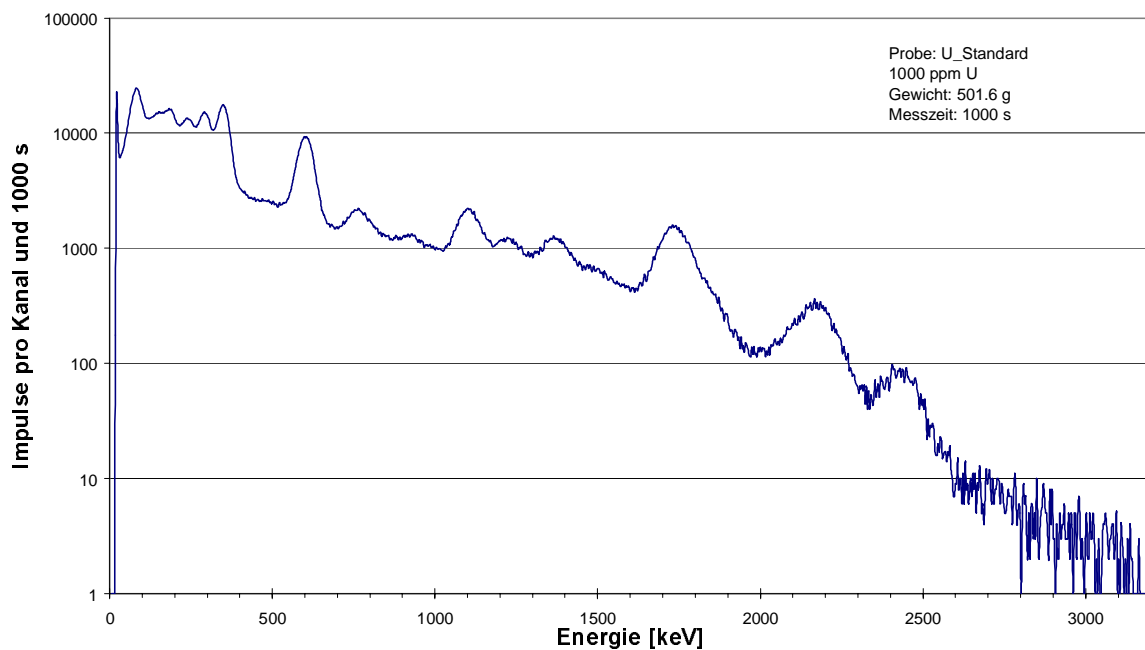
## 15 ANHANG

- A NaI-Spektren
- B Ge-Spektren
- C Nuklidtabelle

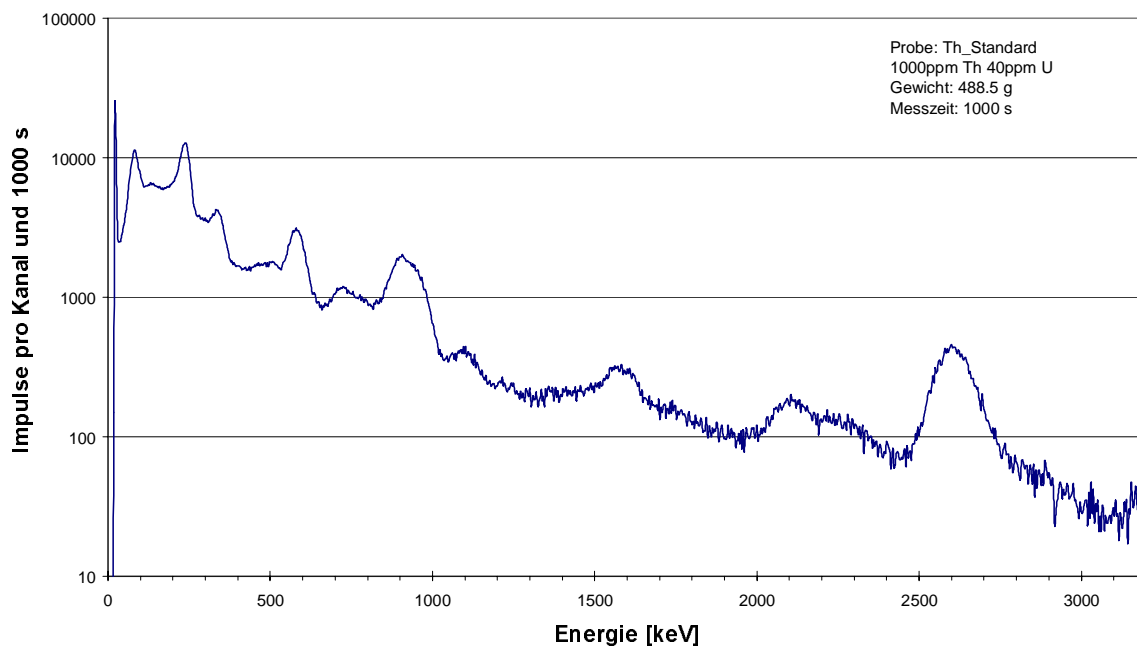
## Anhang A: NaI-Spektren

NaI-Spektrum von Kalium Standards (rein K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)

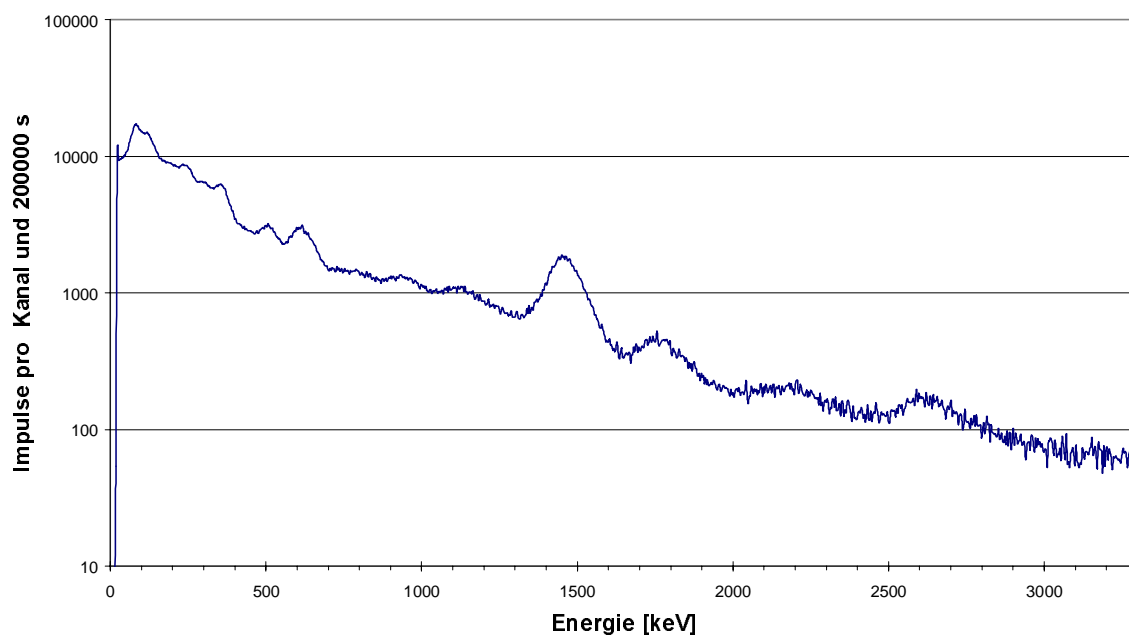
NaI-Spektrum von Uran Standard (1000ppm U)



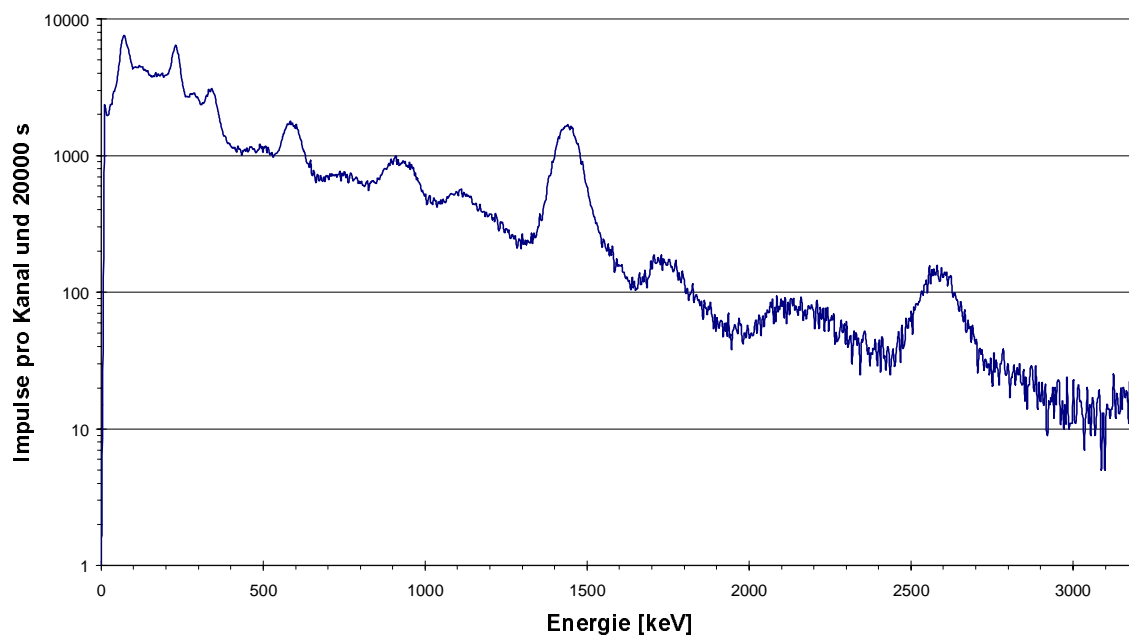
NaI-Spektrum von Thorium Standard (1000 ppm Th, 40 ppm U)



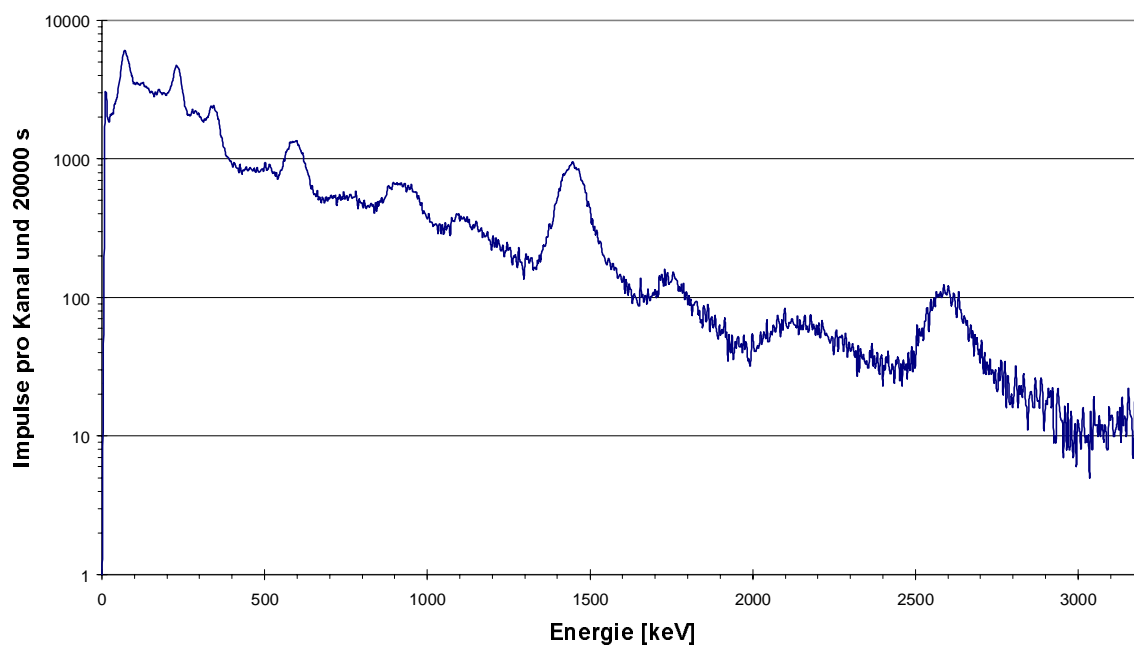
Background-Strahlung bei dem NaI-Spektrometer



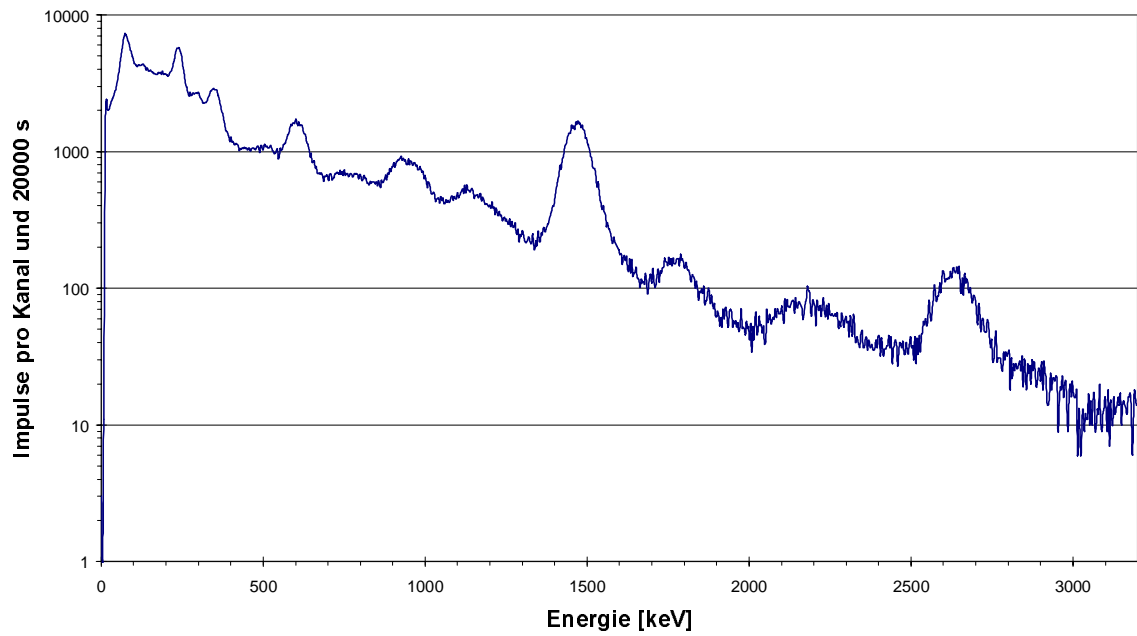
NaI-Spektrum von KB-D03/00 129-129.1 m



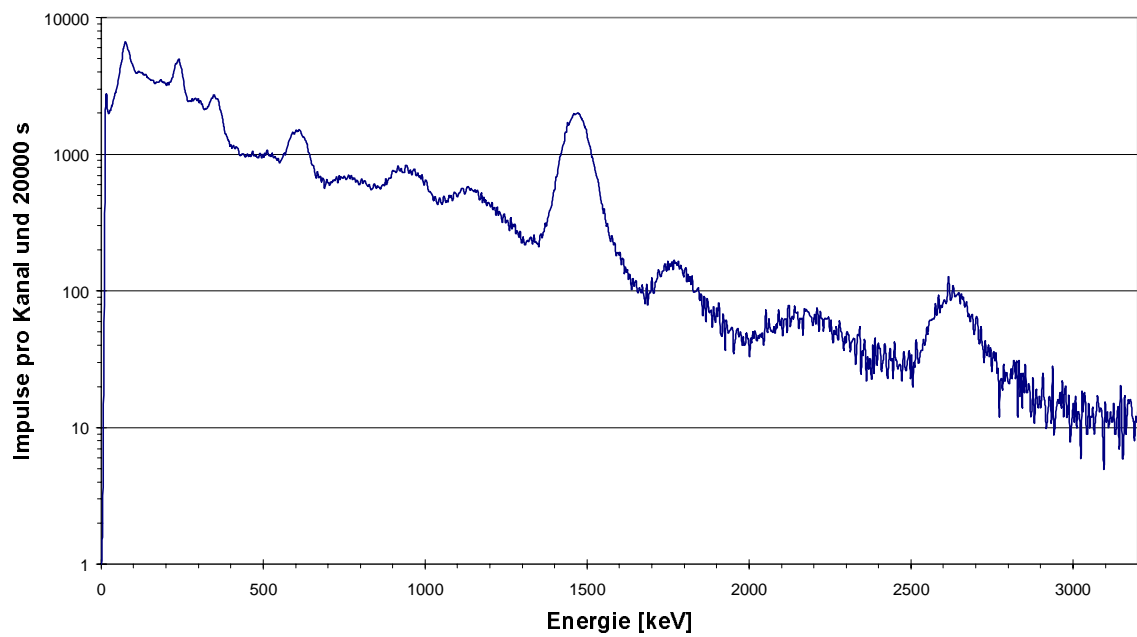
NaI-Spektrum von KB-D10/99 273.1 m



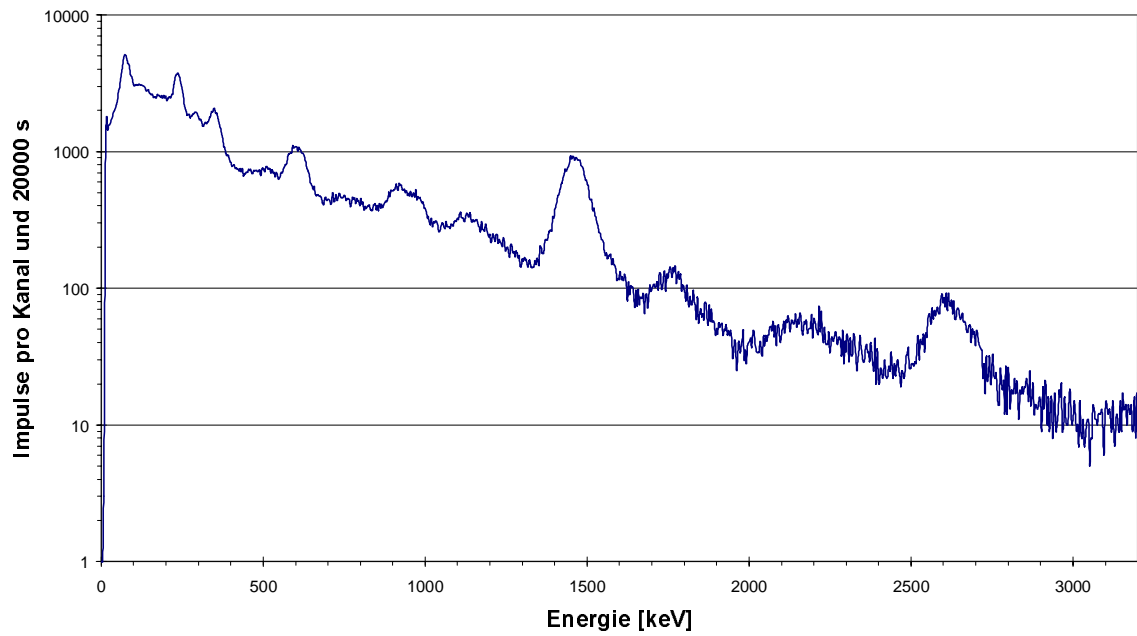
NaI-Spektrum von KB-D10/99 268.1 m



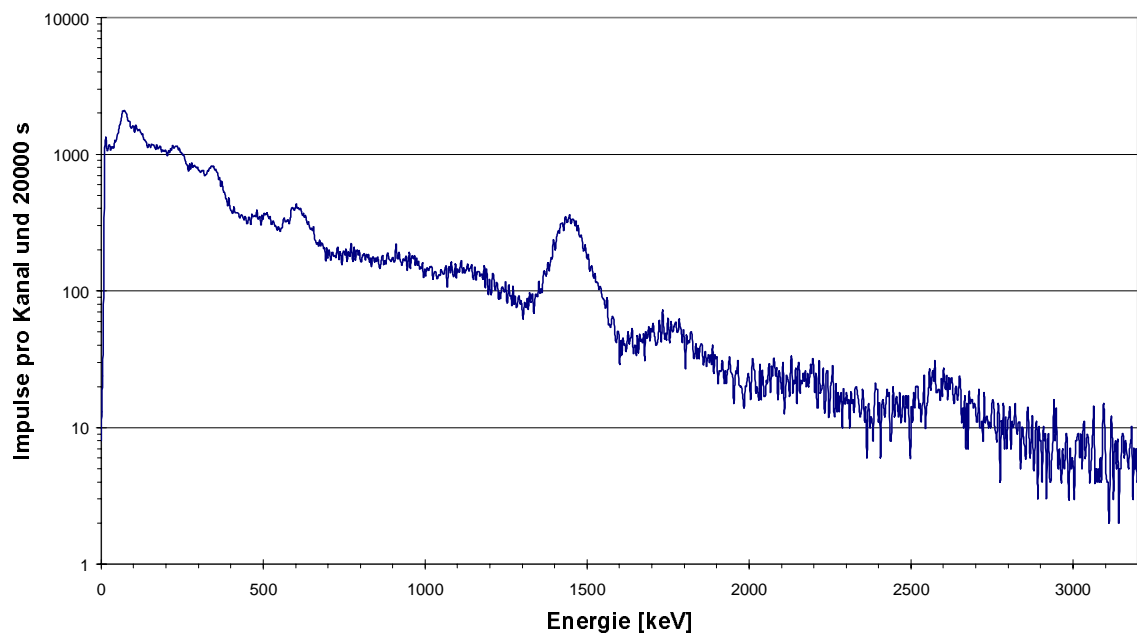
NaI-Spektrum von KB-D10/99 257.5 m



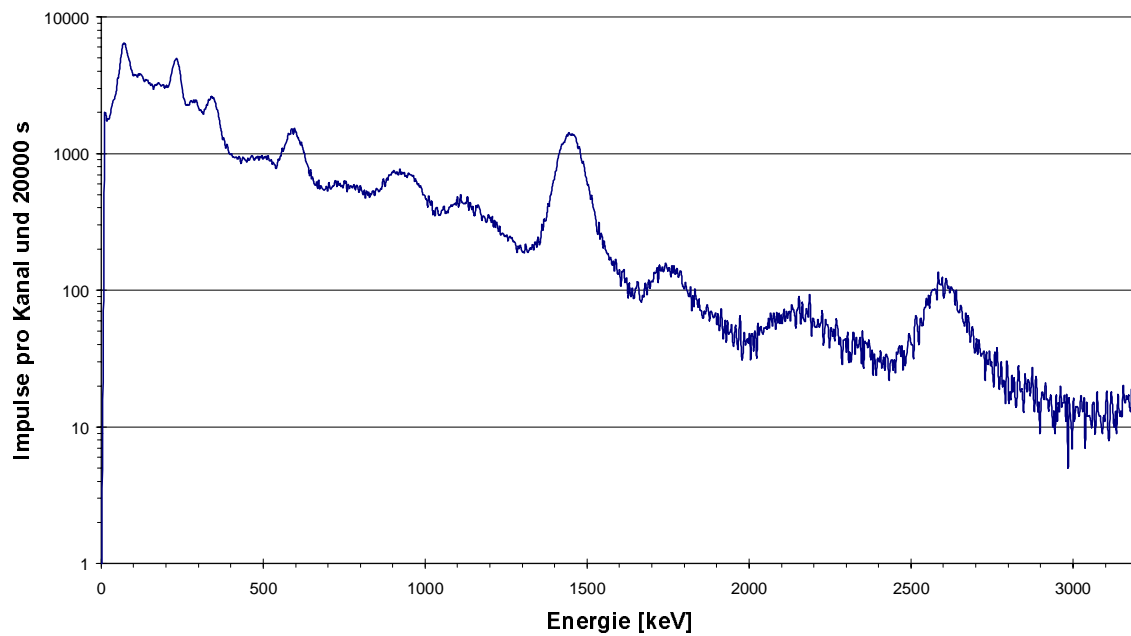
NaI-Spektrum von KB-D12/00 78 m



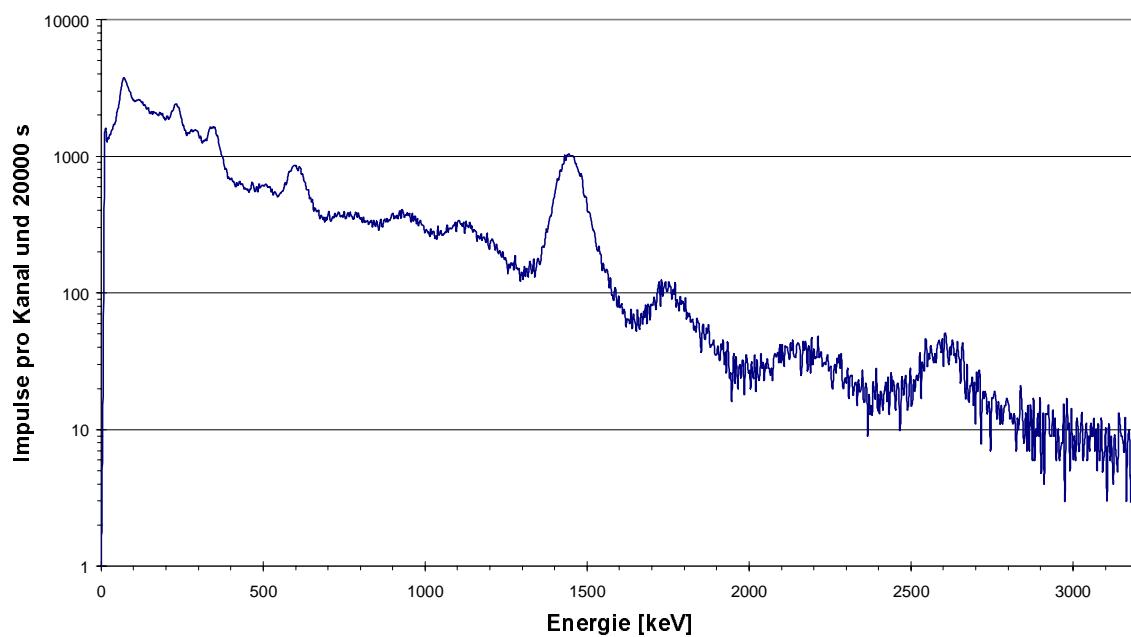
NaI-Spektrum von KB-D18 122 m



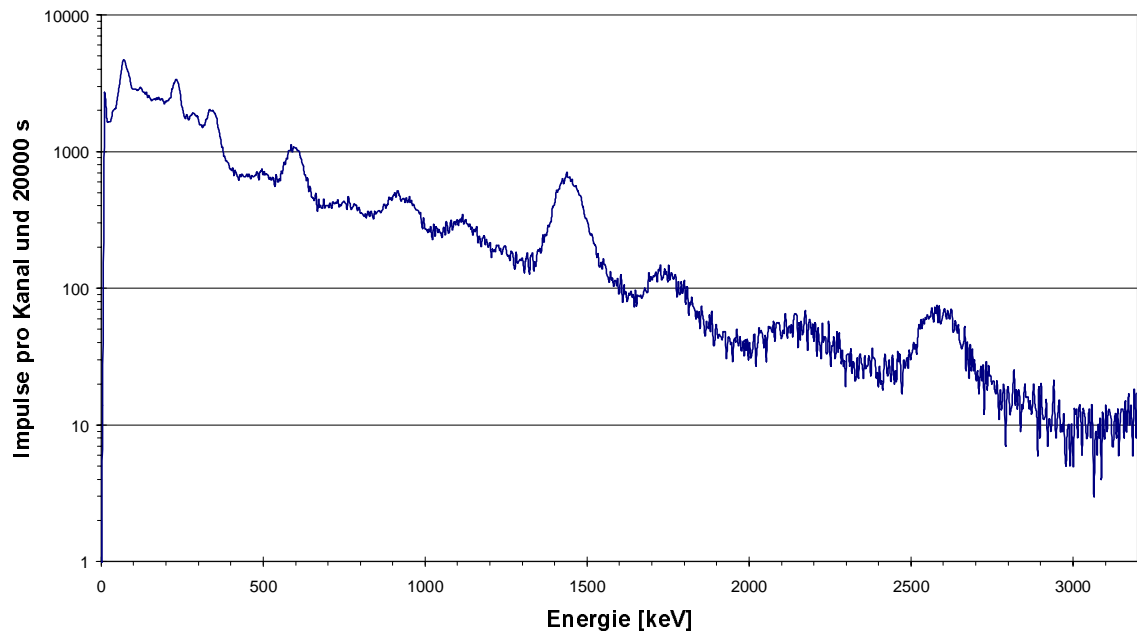
NaI-Spektrum von KB-D23/99 258.6 m



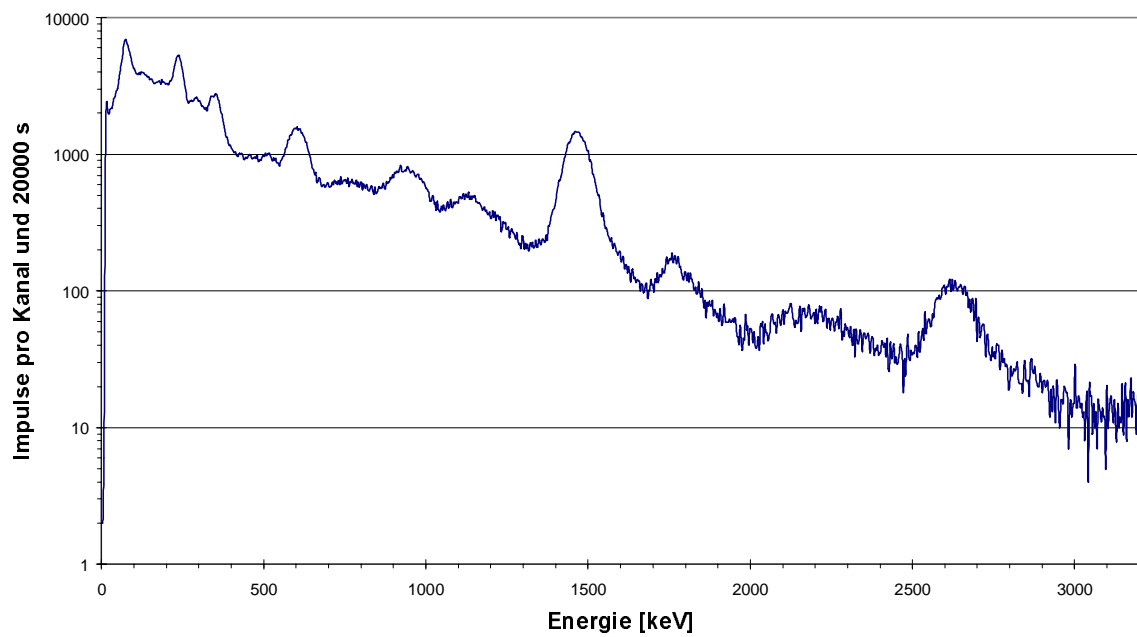
NaI-Spektrum von KB-D23/99 291.15 m



NaI-Spektrum von TB-D01/00 389.3-389.4 m

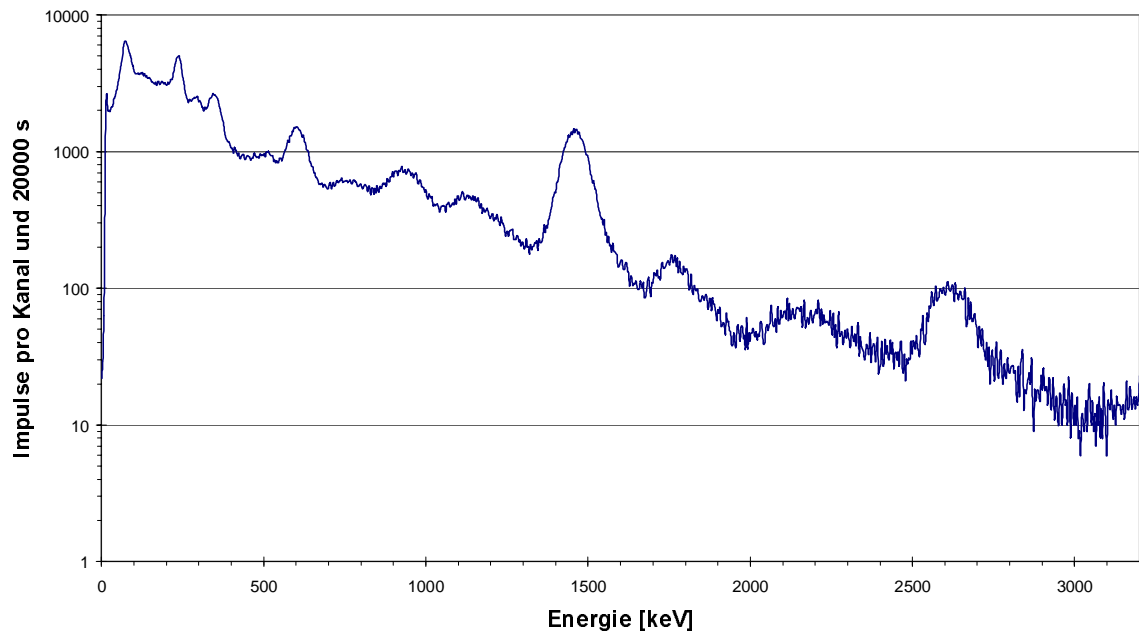


NaI-Spektrum von TB-D01/00 518-518.15 m

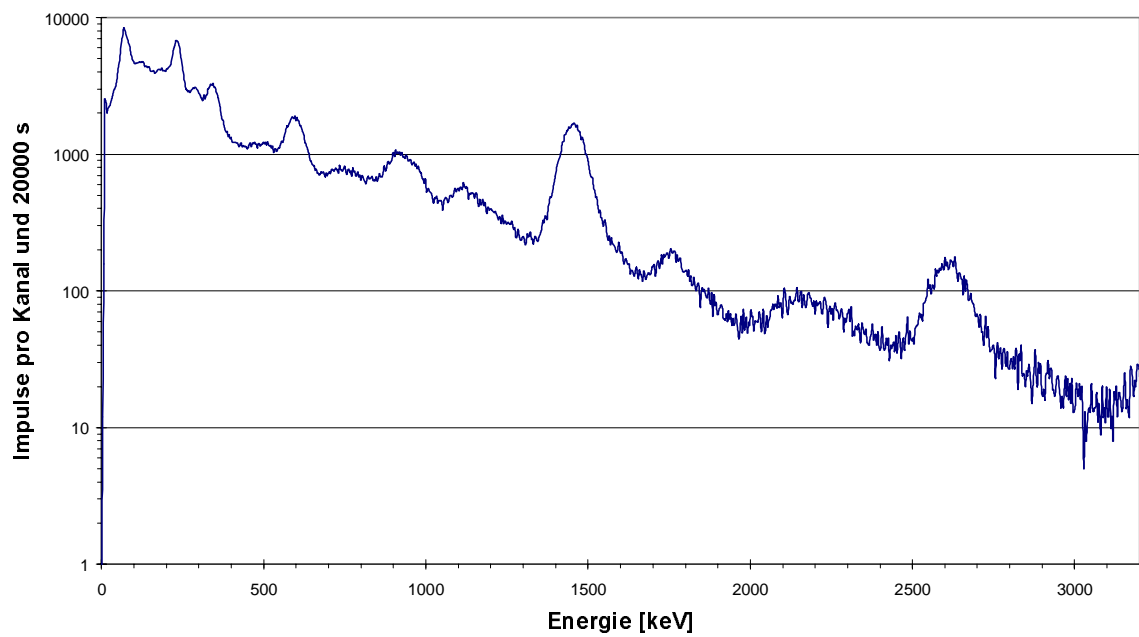




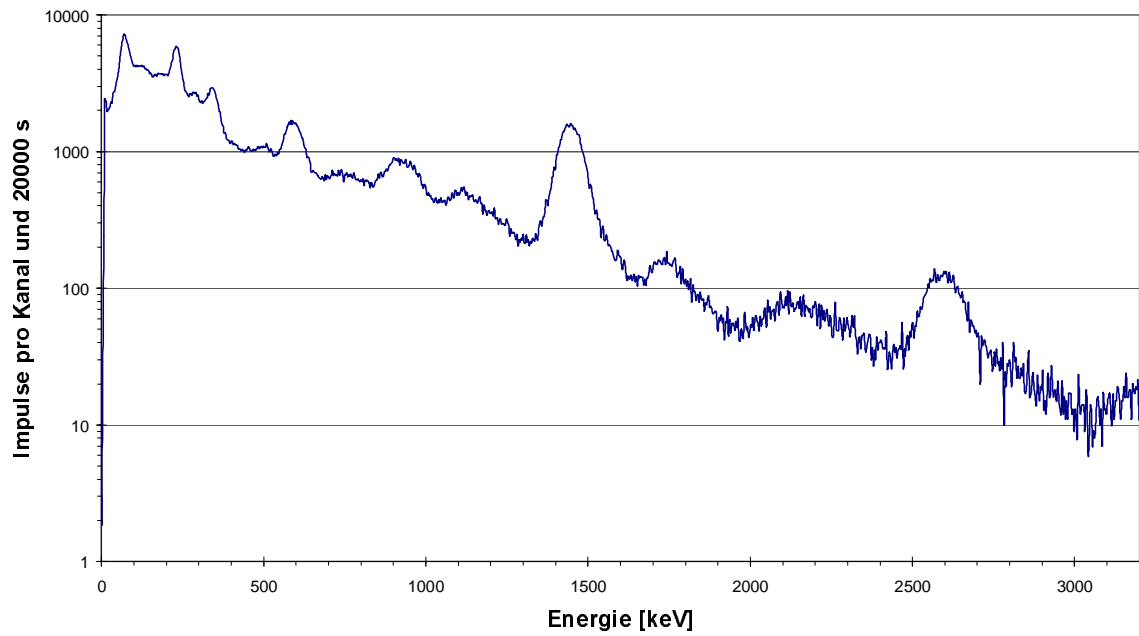
NaI-Spektrum von TB-D01/00 544 m



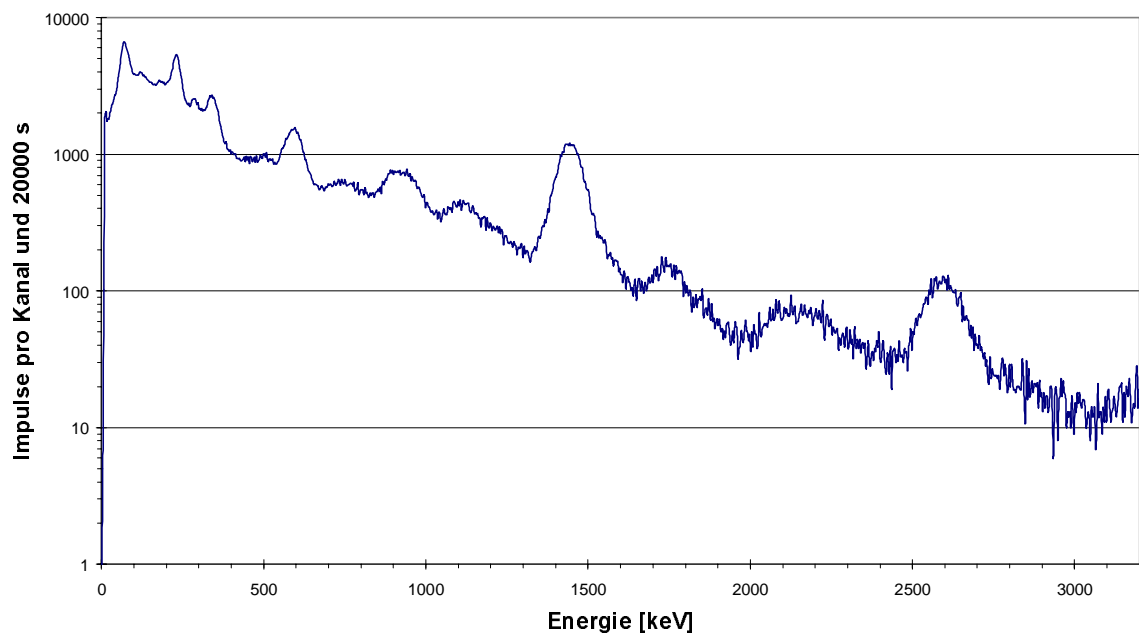
NaI-Spektrum von TB-D02/00 601.9-602 m



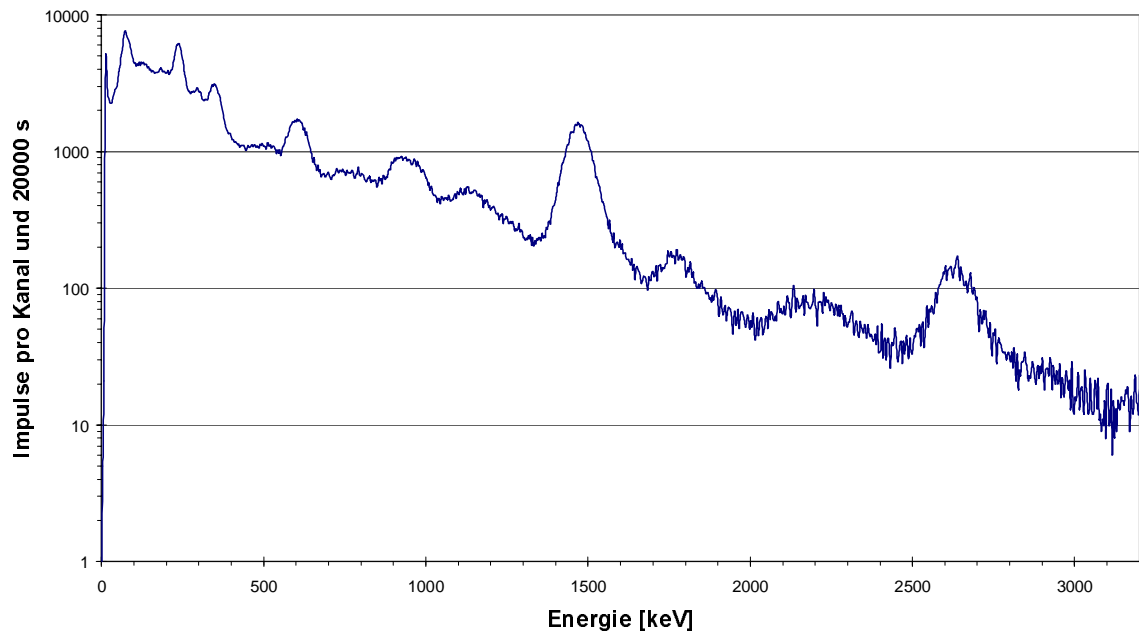
NaI-Spektrum von TB-D02/00 306.15 m



NaI-Spektrum von TB-D02/00 630.9-631 m

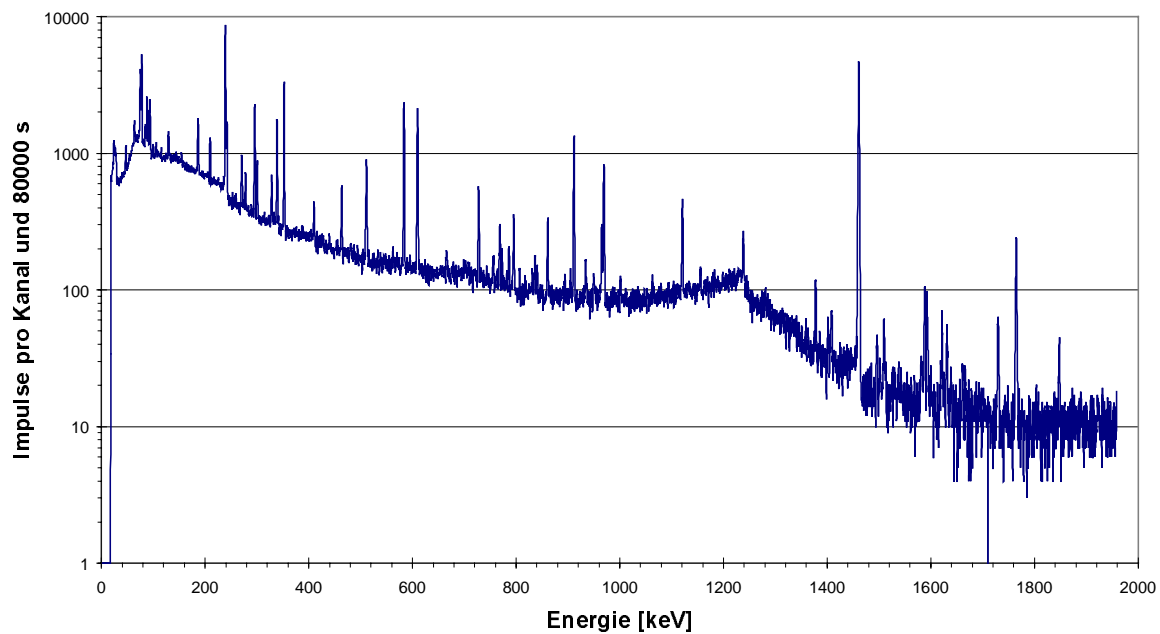


NaI-Spektrum von TB-D02/00 376.85-377 m

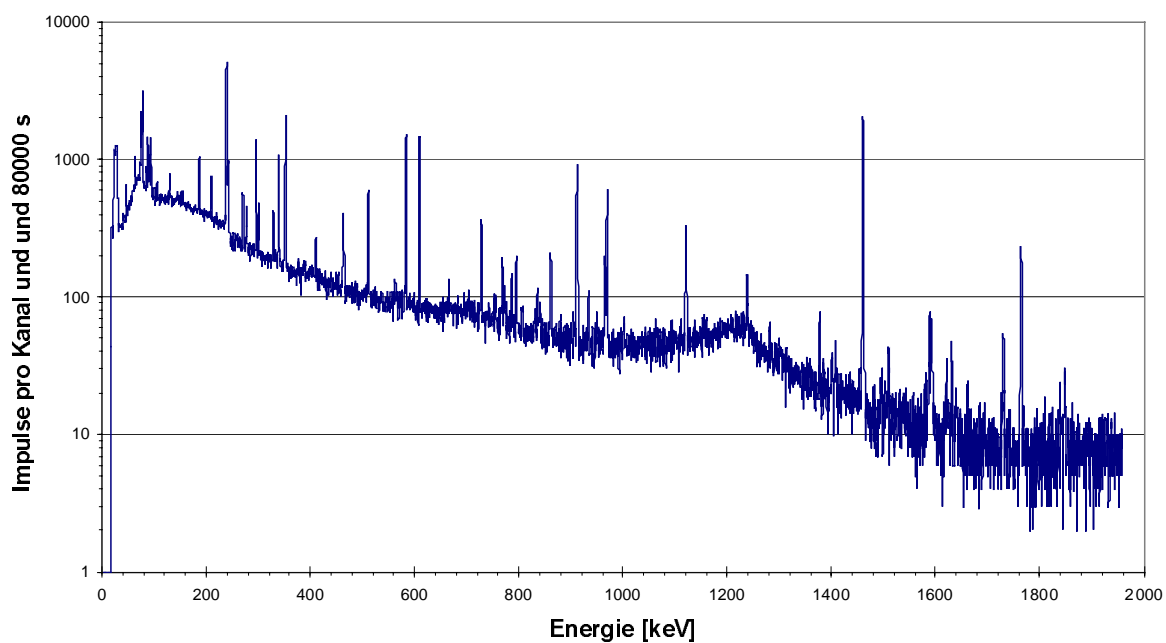


## Anhang B: Ge-Spektren

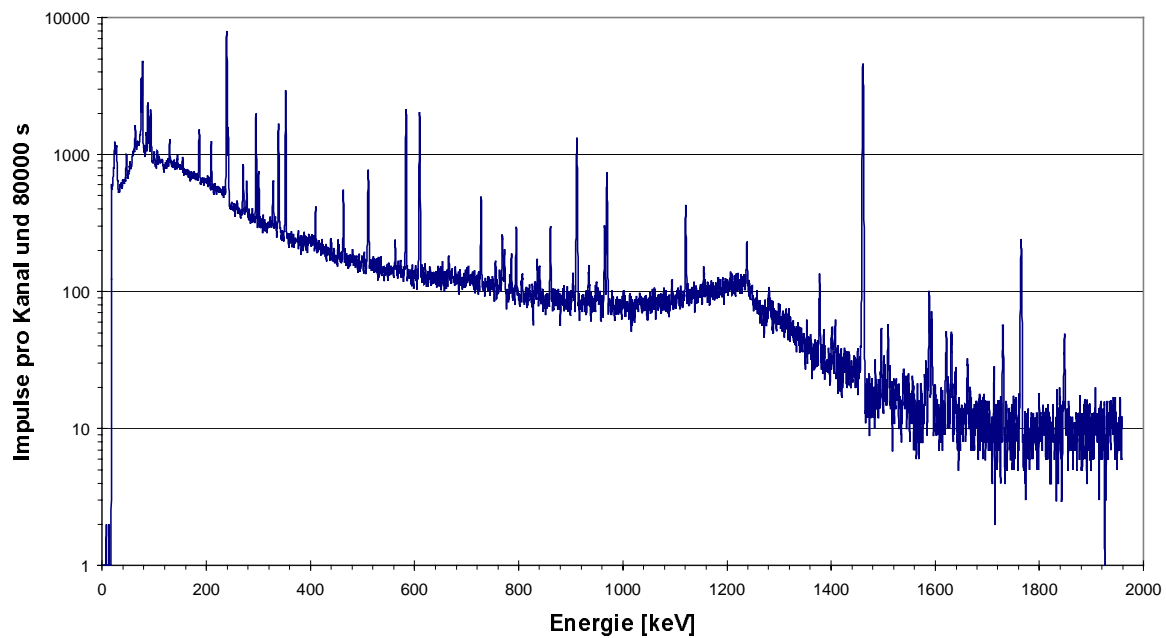
Ge-Spektrum von KB-D03/00 129-129.1 m



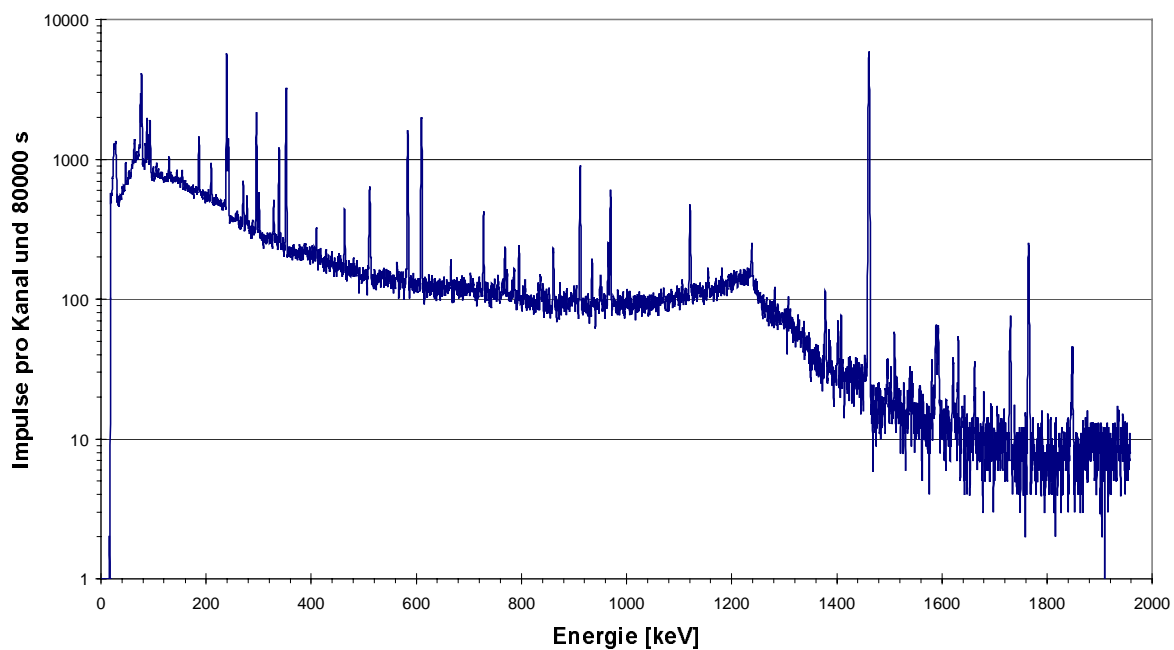
Ge-Spektrum von KB-D10 /99 273.1 m



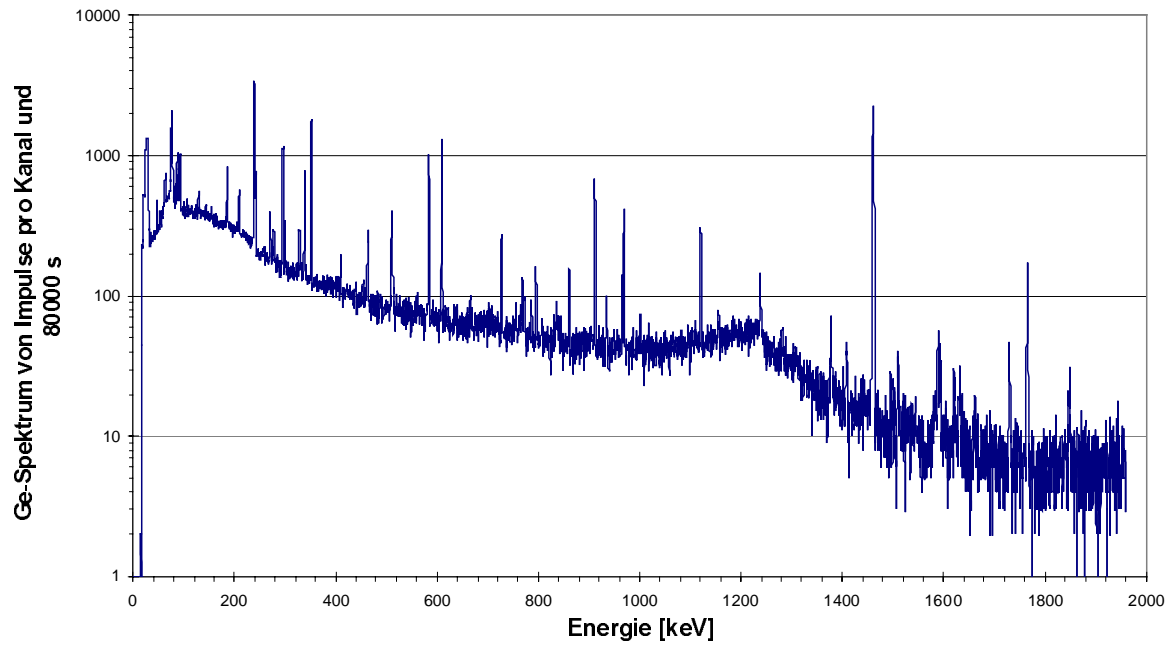
Ge-Spektrum von KB-D10/99 268.1 m



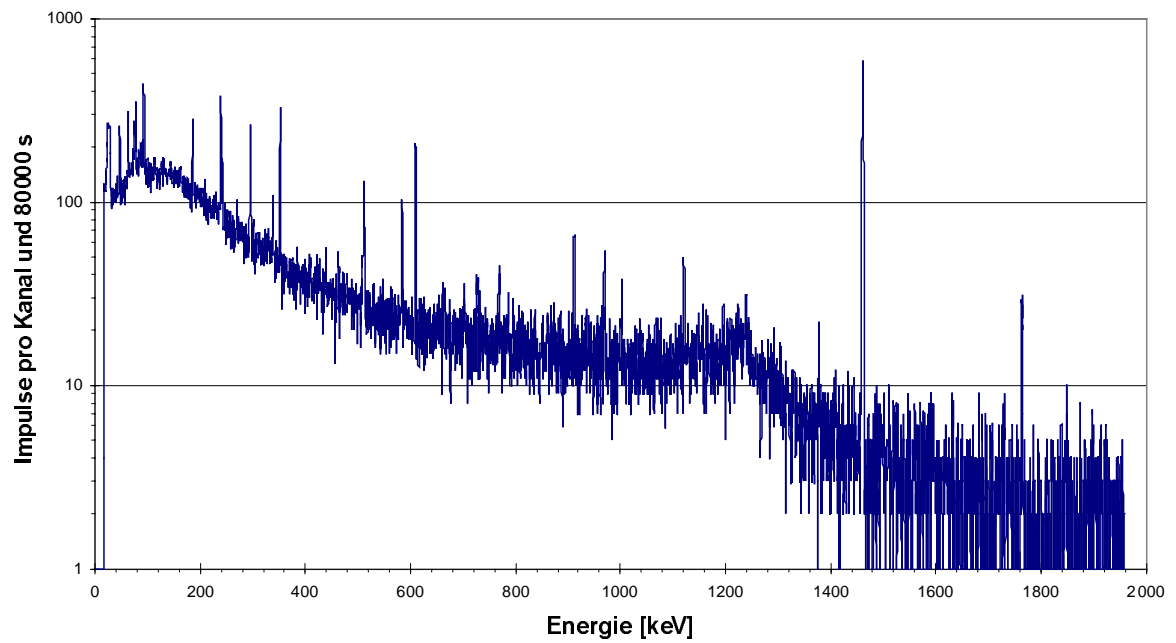
Ge-Spektrum von KB-D10/99 257.5 m



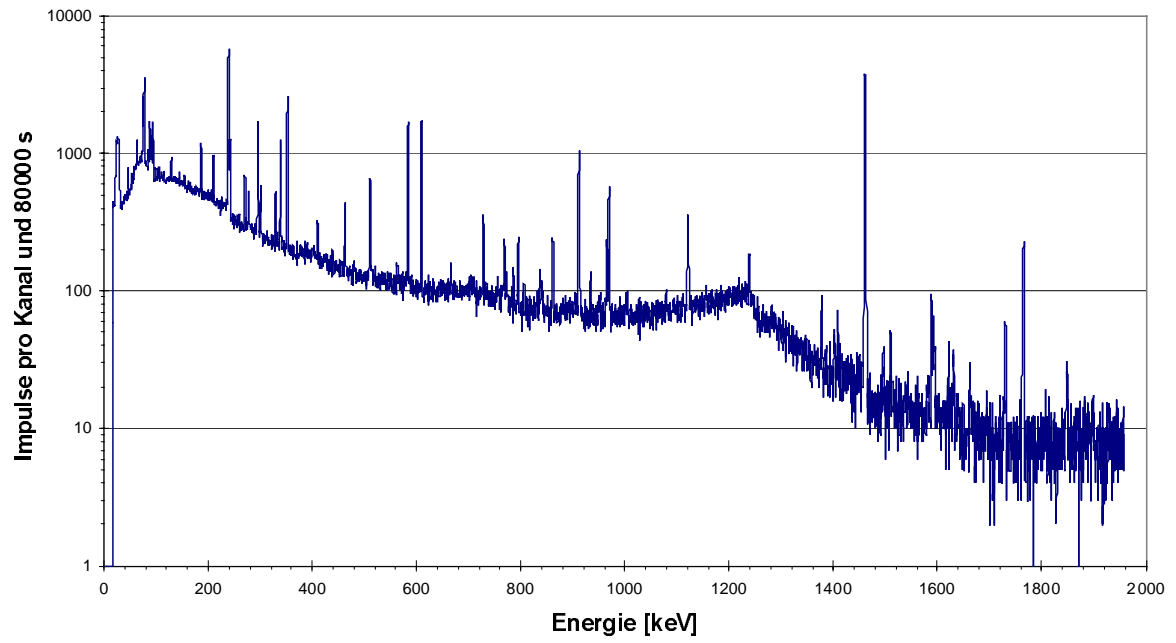
Ge-Spektrum von KB-D12 78 m



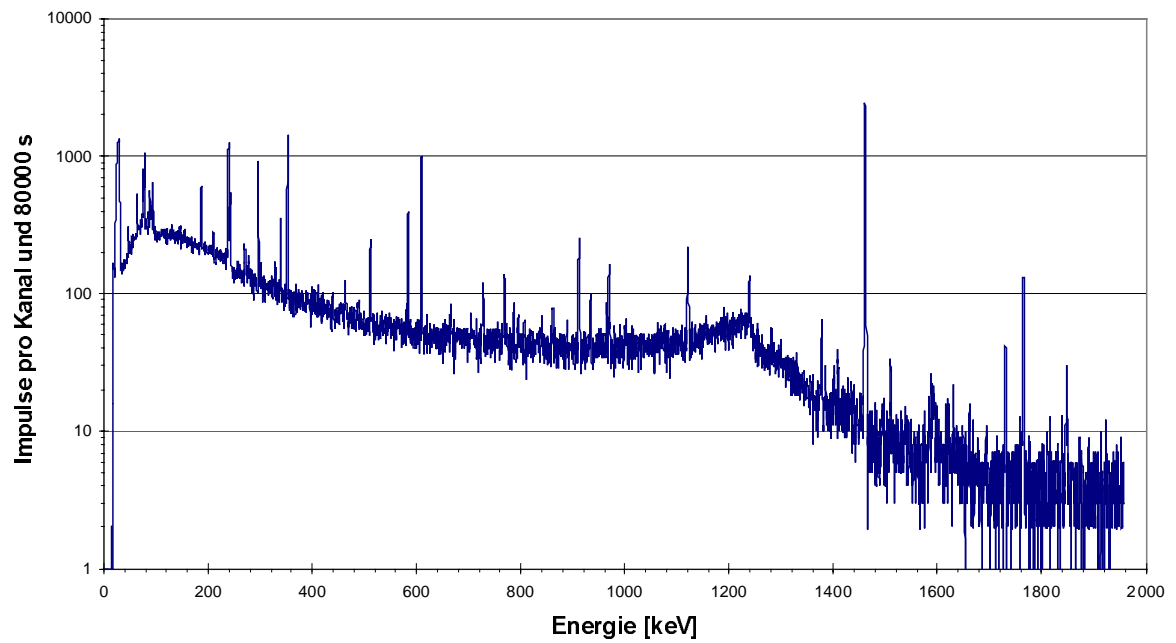
Ge-Spektrum von KB-D18 122 m



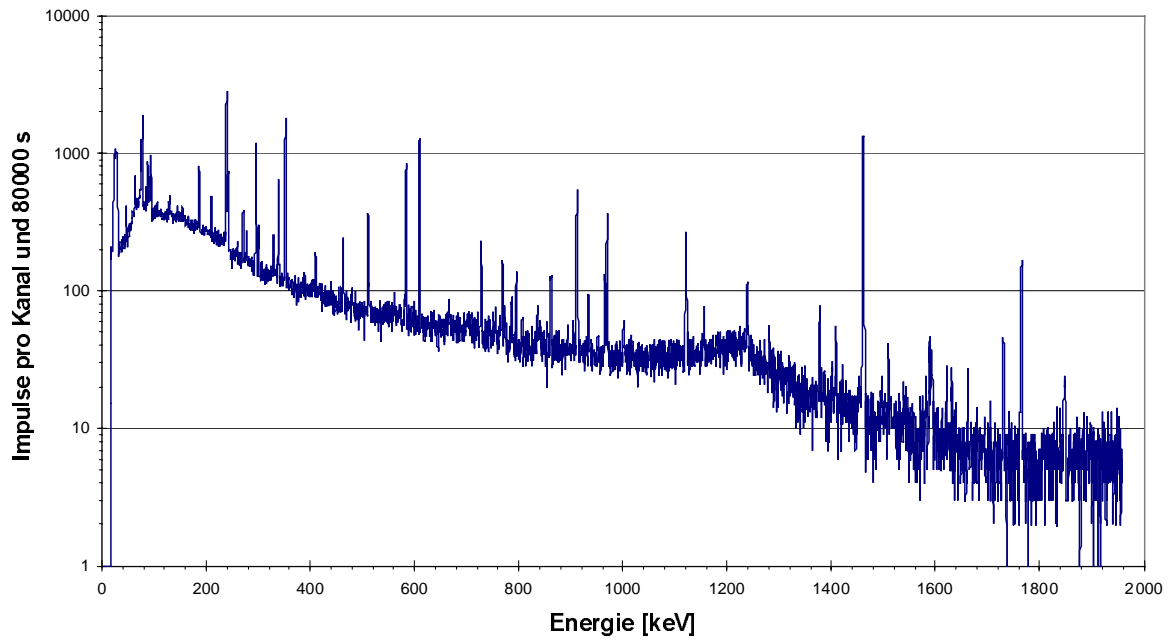
Ge-Spektrum von KB-D23/99 258.6 m



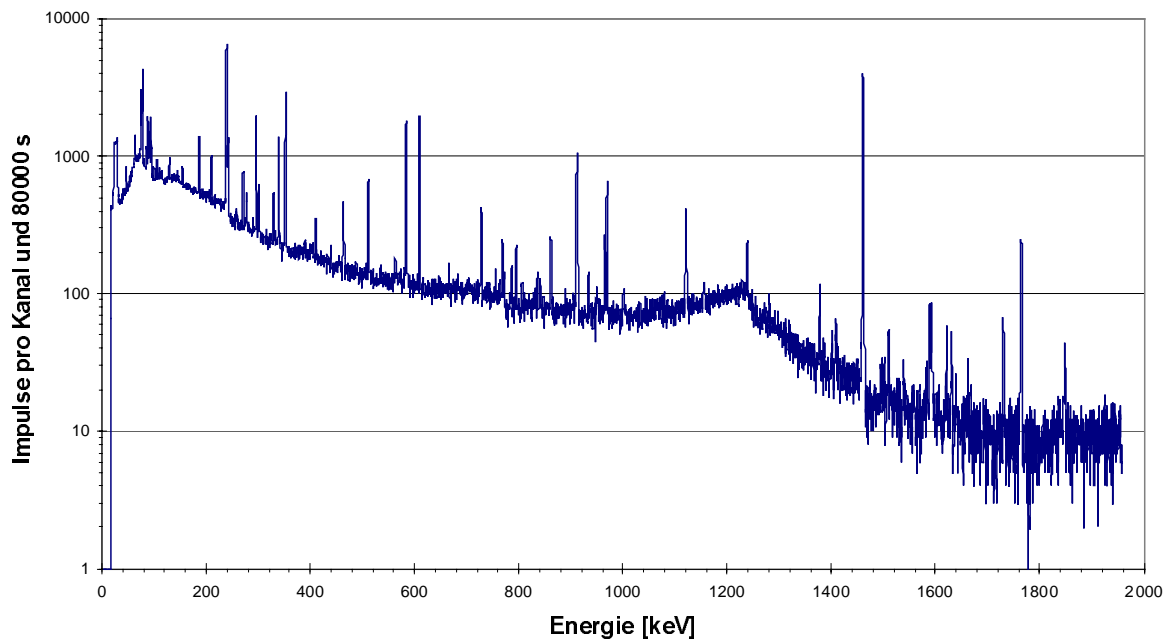
Ge-Spektrum von KB-D23/99 291.15 m



Ge-Spektrum von TB-D01/00 389.3-389.4 m

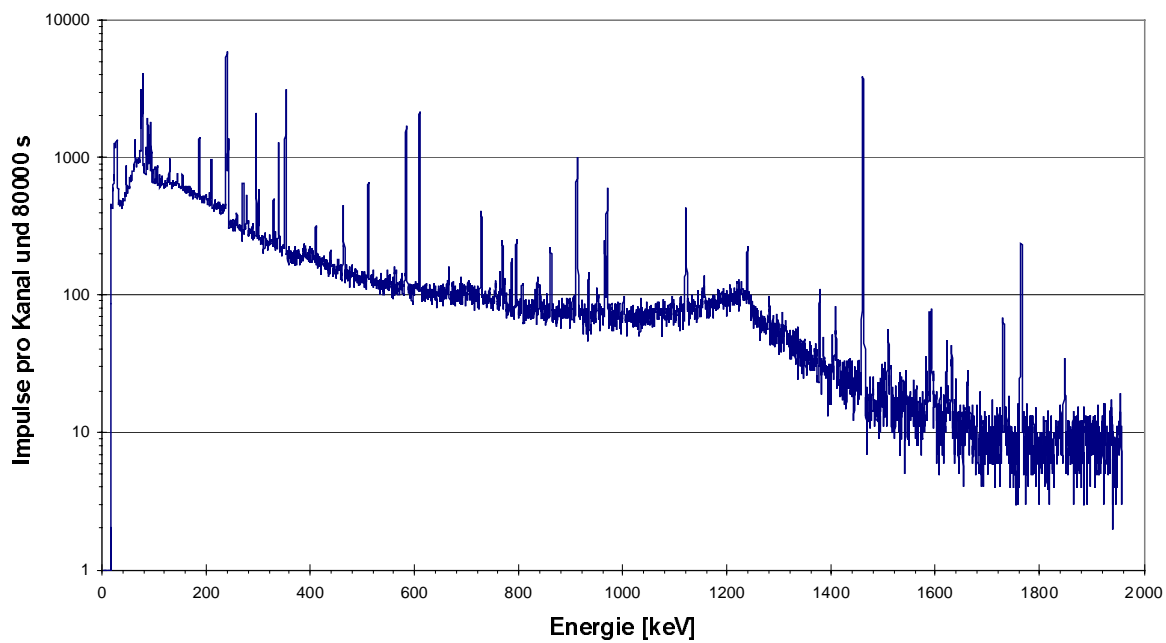


Ge-Spektrum von TB-D01/00 518-518.15 m

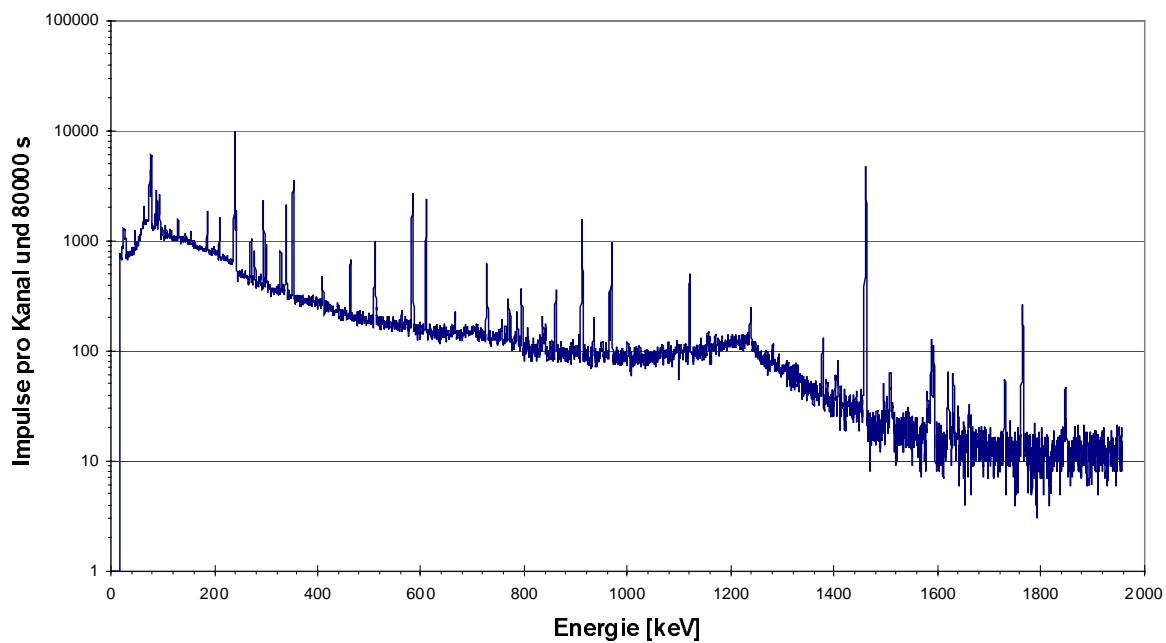




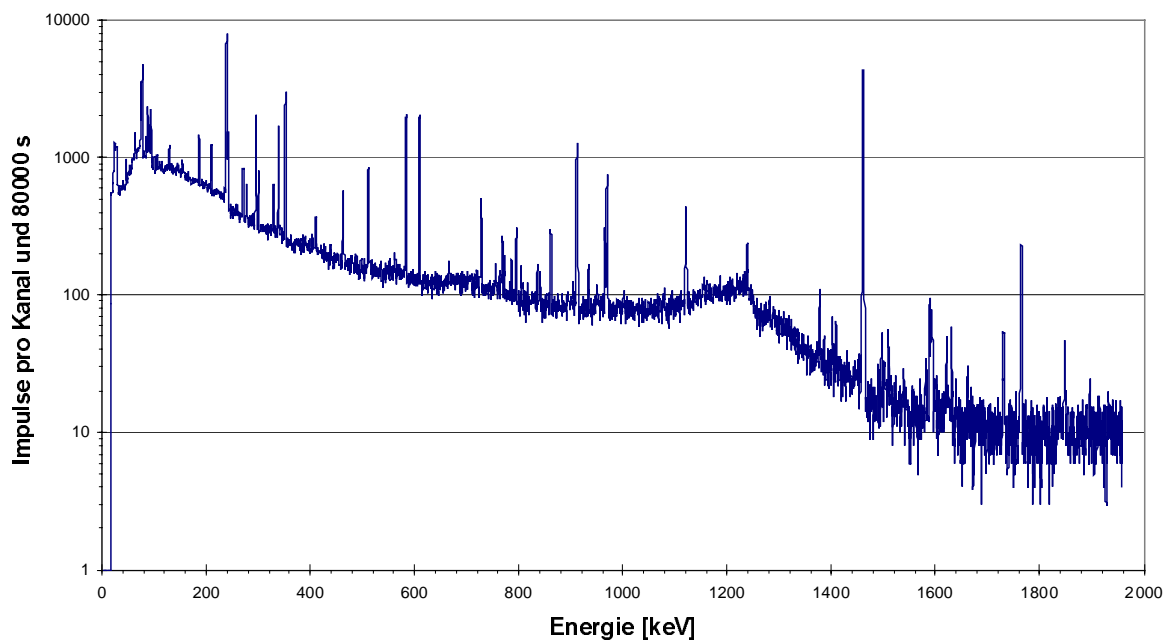
Ge-Spektrum von TB-D01/00 544 m



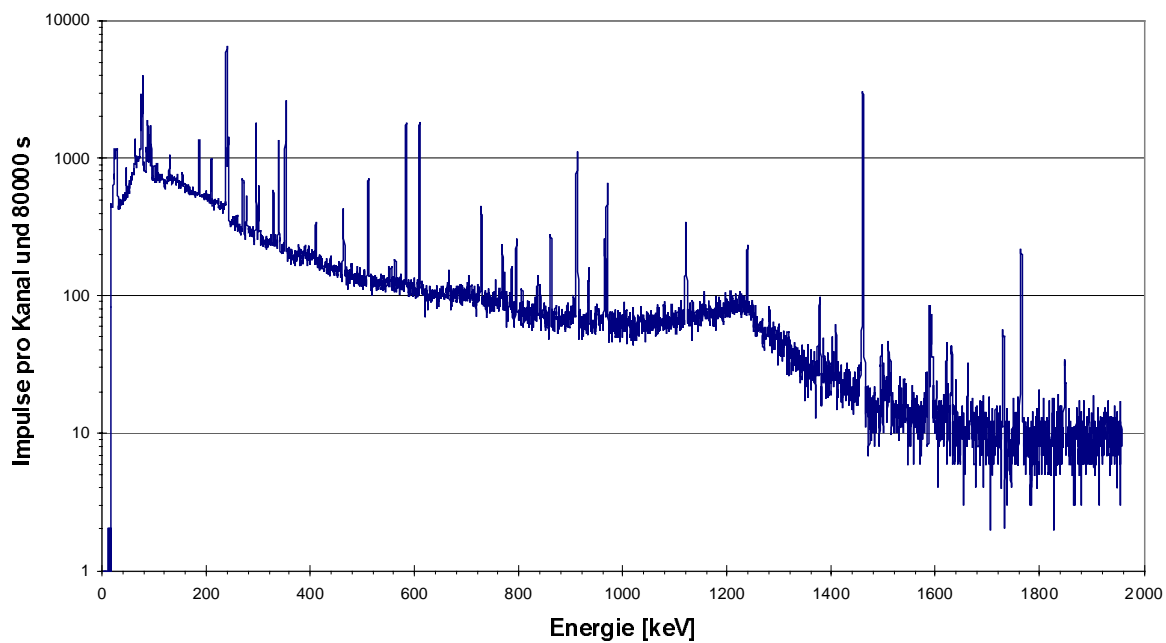
Ge-Spektrum von TB-D02/00 601.9-602 m



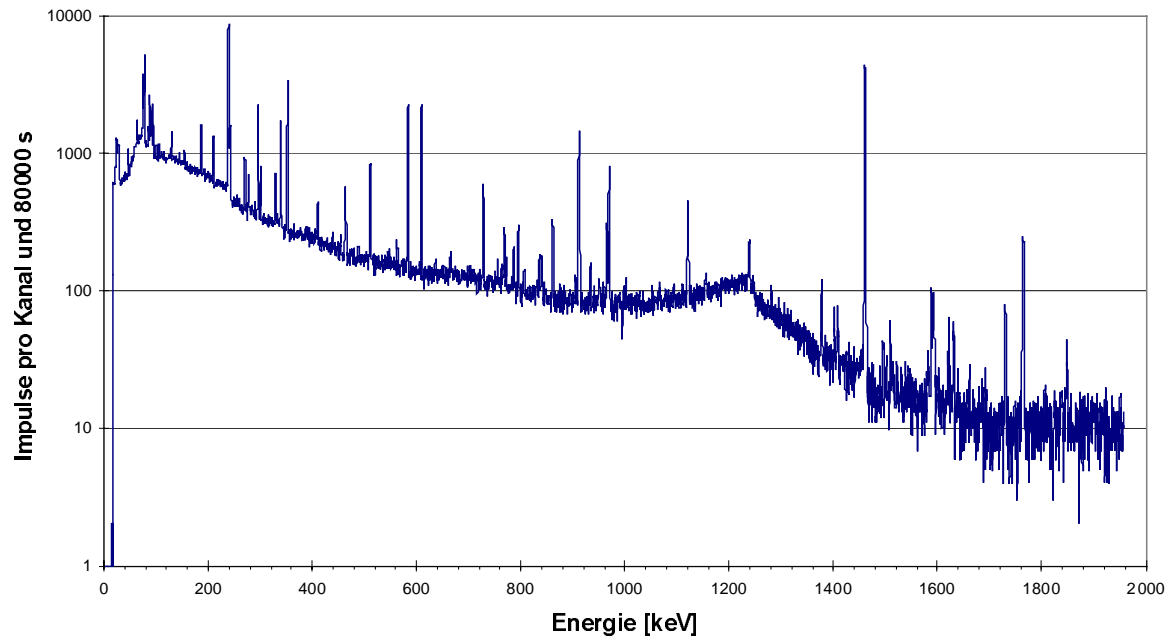
Ge-Spektrum von TB-D02/00 306.15 m



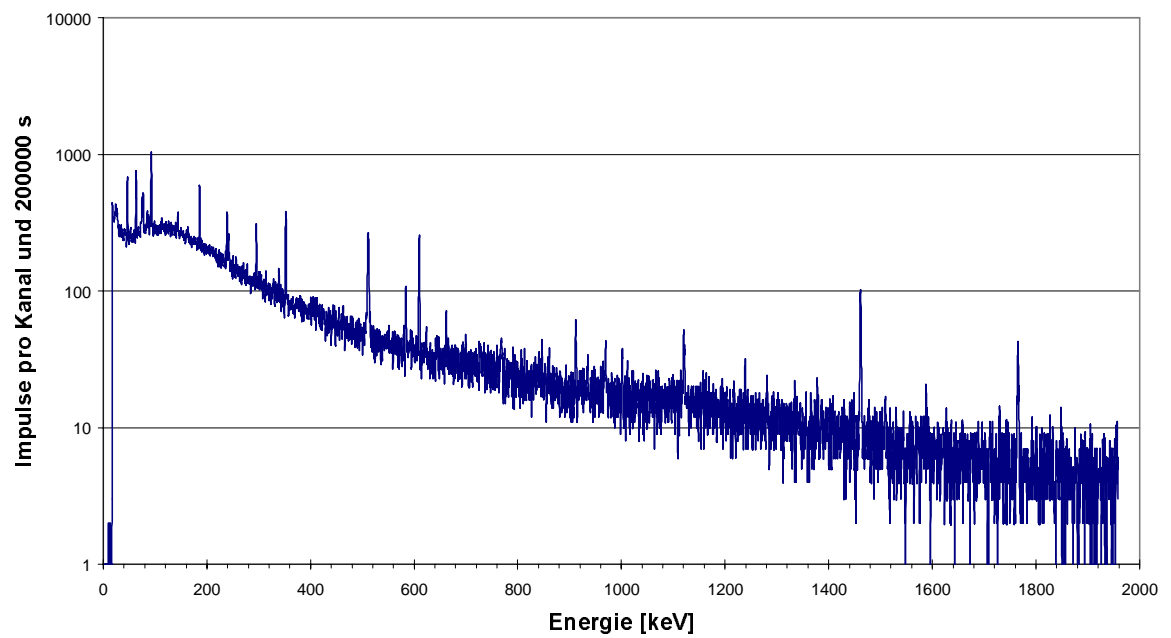
Ge-Spektrum von TB-D02/00 630.9-631 m

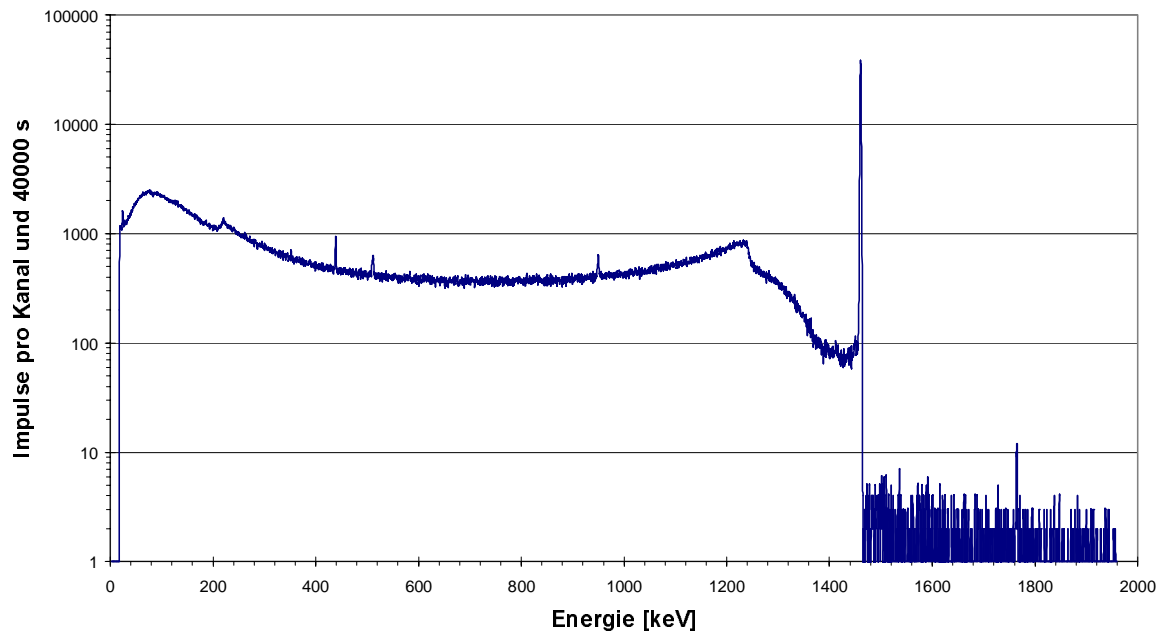


Ge-Spektrum von TB-D02/00 376.85-377 m

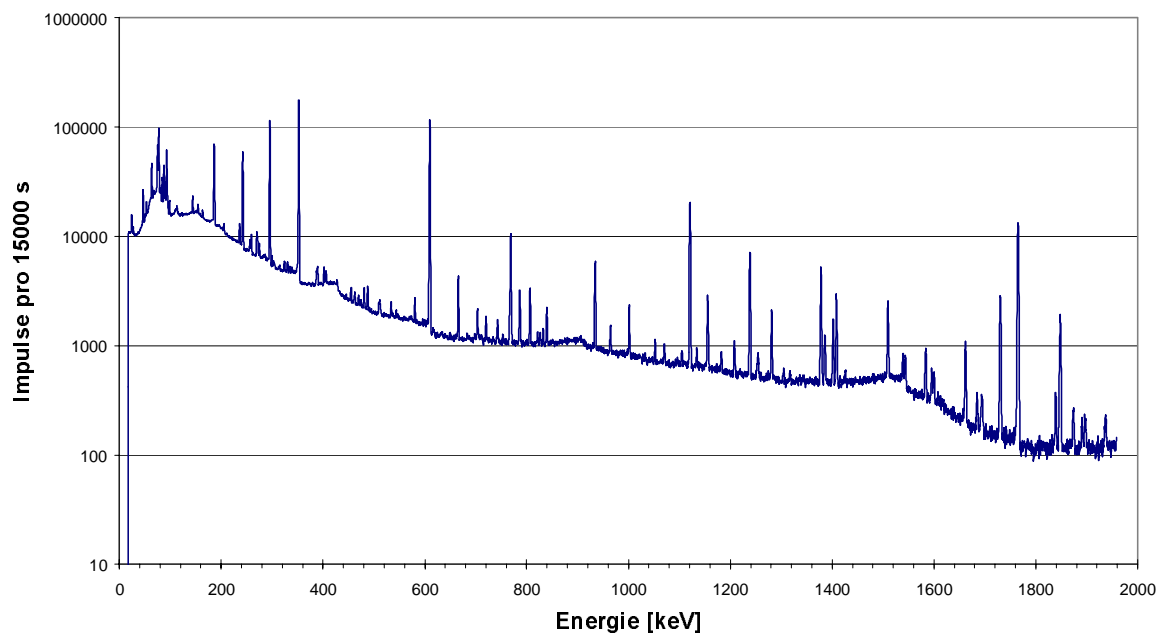


Background-Strahlung bei dem Ge-Spektrometer

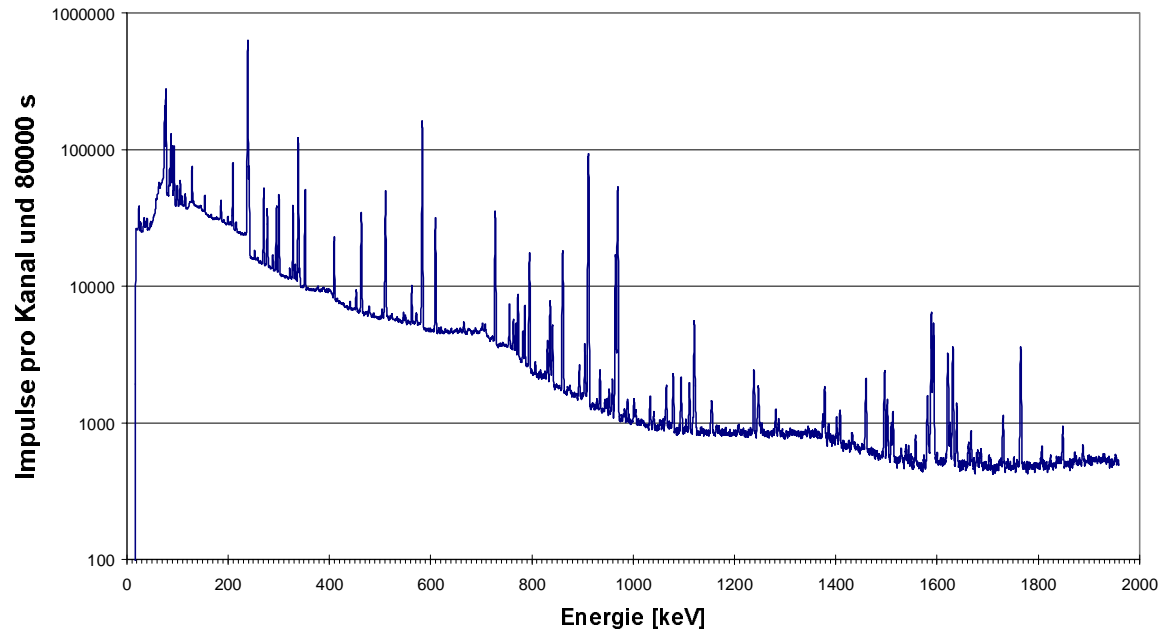


Ge-Spektrum von K-Standard (K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> rein)

Ge-Spektrum von Uran Standard (1000ppm)



Ge-Spektrum von Th-Standard (1000ppm Th, 40ppm U)



## Anhang C: Nuklidtabelle

AUSGABE VON TABELLE NATUERL. NUK vom 23.01.2001 14:33:50

1. Isotop : K-40						Halbwertszeit : 1260000000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	1460.830	10.67	5.62E-01		1	
2. Isotop : TL-208						Halbwertszeit : 10000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	277.350	6.40	9.37E-01	3.37E-01	3	
2	510.800	22.80	1.32	3.33E-01	3	
3	583.191	85.10	7.05E-01	3.37E-01	1	
4	860.370	12.52	9.58E-01	3.37E-01	3	
3. Isotop : PB-210						Halbwertszeit : 22.2000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	46.539	4.06	1.97		1	
4. Isotop : PB-214						Halbwertszeit : 10000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	53.226	1.12	3.57		4	
2	74.815	6.20	4.84		4	
3	77.108	10.40	3.85E-01		4	
4	87.200	3.70			4	
5	89.800	1.03			4	
6	241.979	7.41	2.83		5	
7	258.800	5.50E-01	5.09		4	
8	274.700	4.30E-01	13.95		4	
9	295.207	18.70	2.14		1	
10	351.925	35.80	1.96		5	
11	785.910	1.05	3.81		5	
12	839.100	6.00E-01	3.33		4	
5. Isotop : BI-214						Halbwertszeit : 10000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	609.318	45.00	8.89E-01		1	
2	768.364	4.83	1.24		3	
3	1120.280	14.90	1.34		3	
4	1764.510	16.07	2.55		3	
6. Isotop : RA-226						Halbwertszeit : 1600.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	186.210	3.29	9.12E-01		1	
7. Isotop : RA-226E						Halbwertszeit : 10000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	186.200	3.29		1.72E+00	1	
8. Isotop : AC-228						Halbwertszeit : 10000.0000 Jahre
Nr.	Energie in keV	Gamma absolut in %	Fehler in %	Zusatz-Faktor	Kennzahl	
1	209.400	4.36	30.47		3	
2	270.300	3.61	20.01		3	
3	338.400	11.51	20.07		3	
4	463.000	4.45	10.00		3	
5	794.800	4.64	9.58		3	
6	911.070	27.80			1	
7	968.900	16.74	9.98		2	

Die Tabelle enthält 8 Isotope und 31 Linien.