

## PROBE – DETEKTOR-ANORDNUNGEN ZUR KERNSTRAHLUNGSMESSUNG FÜR ANALYTISCHE ZWECKE

W. GÖRNER

*Zentralinstitut für Kernforschung Rossendorf, DDR-8051 Dresden (DDR)*

(Eingegangen am 15. März 1980)

The "analytical power" of detection systems is investigated, considering typical arrangements in analytical terms. From  $N$  atoms of interest in a sample  $Z$  counts are drawn:  $Z = R/N$  ( $R$  registration yield). Crude data  $ZM$  contain also background  $U$  generated by interferences:  $ZM = Z + U$ . Identification and separation of  $Z$  is accompanied by errors  $\sim \sigma_M U^{1/2}$  due to imperfect distinguishability and to statistical error ( $\sigma_M$  model inherent factor). With "selectivity" =  $\sigma_M^{-1} (R/R_{\text{interference}})^{1/2}$  the figure of merit is  $G = \text{selectivity efficiency/interference}^{1/2}$ . Sample background dominating, "interference" or both "interference" and "efficiency" have to be cancelled. Present semiconductor spectrometry of low energy  $\gamma$ -quanta and of large rates is not very far from its limits. Further progress will be obtained by enhancement of high energy efficiency and reduction of natural background.

### Einleitung

Die enge Beziehung zwischen Radiochemie und Kernstrahlungsspektrometrie wird nicht zuletzt bei der Gestaltung vorteilhafter Meßanordnungen in der nuklearen Analytik deutlich, wobei sich folgende Fragen stellen:

(1) Nach welchen Grundsätzen kann man sich die Auswirkung der zahlreichen meßtechnischen Details auf die eigentliche Zielstellung, den Nachweis von Spuren, klarmachen?

(2) Leistet die Kernstrahlungsmessung in Bezug auf Ausbeute an den gesuchten Spurenelementen und Abtrennung störender Interferenzen zum Analysenverfahren einen Beitrag, der demjenigen eines chemischen Trennungsganges mit seinem hohen manuellen Aufwand adäquat ist?

Wenige, typische Beispiele sollen für die Vielfalt der Meßanordnungen stehen. Ihre Verschiedenheit besteht – abgesehen von der jeweiligen technischen Realisierung – in der unterschiedlichen Betonung von Effektivität und Selektivität der Messung sowie Bequemlichkeit und Anwendungsbreite in der Handhabung. Mit diesen bekannten Kriterien werden anschließend die zur Aktivierungsanalyse häufig benutzten Detektionssysteme beurteilt.

### Einige Beispiele

80 Jahre kernphysikalischer Forschung haben eine große Zahl von Detektortypen hervorgebracht, die von der einfachen Photoemulsion bis zur monströsen Wasserstoff-Blasenkammer reichen. Von ihrer, den unterschiedlichsten Meßaufgaben angepaßten Mannigfaltigkeit wird heute in der Aktivierungsanalyse nur ein Bruchteil regelmäßig verwendet. Das sind vor allem Halbleiter-Ionisationsdetektoren und Szintillationsdetektoren.

Zur sogenannten "inneren" Messung wird die meist chemisch aufbereitete Probenfraktion mit einem flüssigen Szintillator auf Dioxan- oder Toluolbasis gemischt. Vorwiegend werden reine  $\beta$ -Strahler so erfaßt. Die Flüssigszintillationsmessung wird darüberhinaus in der Aktivierungsanalyse noch nicht besonders oft eingesetzt.

NaI(Tl)-Einkristalle verbinden die bisher höchste Meßeffectivität für  $\gamma$ -Strahlen mit einer guten Energieauflösung. So können sehr schwache Aktivitäten gemessen werden. Andererseits lassen sich die Spektren einfacher Aktivitätsgemische ohne zu eng benachbarte  $\gamma$ -Energien gut auswerten. Das ermöglicht manchmal einen Verzicht auf chemische Probenvorbereitung. Der NaI-Detektor gehört zur Standardausrüstung des aktivierungsanalytischen Labors.

Für die heutige Vorrangstellung des Ge-Halbleiterdetektors war dessen geringere Photoeffectivität kein Hinderungsgrund, weil sein ausgezeichnetes Energie-Auflösungsvermögen und seine hohe Betriebsstabilität auch bei hohen Impulsraten die beste Voraussetzung für Übersichtsanalysen bieten. Lediglich beim Nachweis kleinster, qualitativ bekannter Aktivitäten mit hoher  $\gamma$ -Energie sind ihm große NaI-Kristalle immer noch überlegen.

Die nächste Anordnung (Abb. 1) ist einer spezielleren Aufgabe gewidmet. Die schnelle  $\gamma\gamma\gamma$ -Koinzidenzschaltung zwischen drei NaI-Detektoren dient der zerstörungsfreien Bestimmung von Ir in Gestein bzw. Schlacke. Eine dreifache  $\gamma$ -Kaskade beim Zerfall des  $^{192}\text{Ir}$  ermöglicht eine scharfe Auswahlbedingung, deren Zeitauflösung von 40 ns Zufallskoinzidenzen weitgehend unterdrückt. Sie reduziert zwar die Meßeffectivität bedeutend ( $\epsilon_1 \rightarrow \epsilon_1 \epsilon_2 \epsilon_3 \ll \epsilon_1$ ), verringert aber den von der bestrahlten Gesteinsprobe hervorgerufenen Untergrund im Meßspektrum erheblich, so daß Ir-Analysen im Bereich weniger ppb möglich werden.<sup>1</sup> Die Anwendbarkeit der Schaltung ist an das Vorhandensein einer dreifachen Kaskade im Zerfallsschema des zu messenden Nuklids gebunden.

Die 7fach- $\beta\gamma$ -Koinzidenzanordnung (Abb. 1) gestattet die gleichzeitige Messung von 7 chemisch aufgearbeiteten Proben mit einem einzigen großen NaI-Kristall. Im Vergleich zur einfachen  $\gamma$ -Messung mit gleicher Gesamtmeßdauer der Probenserie ergibt sich z.B. für die 1099 keV-Linie des  $^{59}\text{Fe}$  eine um den Faktor 1,3 erhöhte Zeitausbeute und ein um den Faktor 2000 verringerter Nulleffekt. So konnte die

	Schema	Ausbeute	Selektivität	Bequemlichkeit	Anwendungsbreite
Flüssigszintillation		XX			X
NaJ		X(X)	X	X	XX
Ge-HLD			XX	XX	XX
3 fach-SKO			XX	XX	
7 fach-Plast-NaJ-LKO		X	XX (Nulleff)		X

Abb. 1. Charakterisierung einiger Meßanordnungen

Nachweisgrenze der Fe-Bestimmung in Reinstsilizium um den Faktor 60 gesenkt werden. Die Anordnung, welche so konstruiert sein muß, daß ein Übersprechen von Probe zu Probe nicht sehr wahrscheinlich ist, kann zur Messung beliebiger  $\beta\gamma$ -Emitter vorwiegend im Bereich niedriger Aktivität eingesetzt werden.<sup>2</sup>

### Registriererausbeute und Untergrund

Um die "Analyseleistung" solcher Systeme vergleichen zu können, werden aus ihrem Antwortverhalten Maßzahlen abgeleitet. Weil alle Teilschritte – von der Probenvorbereitung, Aktivierung, chemischen Trennung, Strahlungsmessung bis zur Meßdatenauswertung – die Leistungsfähigkeit der angewandten Prozedur mitbestimmen, werden die benötigten Parameter zunächst auf das Gesamtverfahren bezogen und dann auf die Strahlungsmessung eingeeengt.

Die aktivierungsanalytische Bearbeitung einer Probe, welche N Atome eines gesuchten Elements enthält, führt letzten Endes zur Registrierung von Z Zählern, das heißt gespeicherten Meßimpulsen, die der Analytiker bei der Auswertung tatsächlich gelten läßt. (So werden meist nur die in den Photopeaks eines  $\gamma$ -Spektrums gesammelten Impulse in der doppelten Bedeutung des Wortes "gezählt", die übrigen – oft der Großteil – jedoch verworfen.) Im Prinzip sind Z und N einander proportional:

$$Z = R N \quad (1)$$

Die Registrierausbeute  $R$  ( $\ll 1$ ) wird durch mitbestrahlte Elementstandards (Komparatormethode) oder unter Mitverwendung von Bestrahlungsdosisstandards (Monitormethode) ermittelt und kann auch als Eich- oder Empfindlichkeitsfaktor verstanden werden. Sie hat wesentlichen Einfluß auf den relativen statistischen Fehler des Ergebnisses und damit auch auf das Nachweislimit  $L_N$  bzw. die minimale nachweisbare Elementmenge  $N_N$ , welche vom Analysenverfahren noch beinahe sicher erkannt wird (Vermeidung des Fehlers 2. Art). Würden nur Zähler erfaßt, die zweifelsfrei vom gesuchten Element hervorgerufen sind, entspräche sie demjenigen Erwartungswert von  $Z$ , bei dem ein Experiment gemäß der Poissonstatistik nur mit geringer Wahrscheinlichkeit 0 Zähler liefert. Das ist je nach geforderter statistischer Sicherheit bei  $E(Z) = \bar{Z} = 3 \dots 9$  Zähler der Fall. Es gilt etwa  $N_N = 6/R$ . Diese Beziehung kann jedoch nicht verwendet werden, weil zum Meßresultat  $ZM$  ein Untergrund  $U$  beiträgt, der von Fremdelementen  $j$  in der Probe und dem von der Umgebungsstrahlung hervorgerufenen Nulleffekt  $Z_0$  herrührt

$$[ZM = Z + U = Z + \sum_j R_j N_j + Z_0]_i \quad i = 1, 2 \dots n (>1) \quad (2)$$

Das Kriterium, mit dem a posteriori entschieden wird, ob der erhaltene Wert  $Z = ZM - U$  signifikant  $>0$  ist, lautet  $Z > L_E =$  Entscheidungslimit. (Negative  $Z$  entsprechen negativen Elementgehalten und sind "verboten".) Die minimale nachweisbare Atomanzahl (Elementmenge) beträgt dann vereinfacht nach CURRIE<sup>3</sup>

$$N_N = (3 \dots 9 + 2 L_E)/R \quad (3)$$

$L_E$  wächst mit der statistischen Streuung des Untergrunds  $\sigma(U) = U^{1/2}$ . Hinzu kommt aber, daß gesuchte Komponente und Untergrund voneinander abgetrennt werden müssen. Das ist nur auf der Grundlage von Merkmalen wie Energiespektrum, Abkling- und Koinzidenzverhalten, Messung mit und ohne Probe möglich. Solche Merkmale müssen für Komponente und Untergrund unterscheidbar sein. So reicht eine einzige Messung entsprechend Gl. (2) zum Identitätsnachweis des gesuchten Elements nicht aus, und selbst im einfachsten Fall der integralen Zählung müssen zwei Messungen gemacht werden. Das unterscheidende Moment ist dann, daß einmal mit und einmal ohne Probe gemessen wird.

Die Auswertung eines Satzes von  $n$  Gl. (2), welcher ein Energiespektrum, eine Abklingkurve oder eine anderweitige Serie von Meßdaten umfaßt, geht umso leichter vonstatten und liefert umso genauere Resultate, je auffallender die gesuchte Komponente aus dem Merkmalsspektrum hervorsticht. Umgekehrt erschweren Ähnlichkeiten zum Untergrund ihren Nachweis, man denke nur an stark überlappende

Photopeaks. Der Tatsache, daß die gleiche Untergrundimpulszahl in Abhängigkeit von ihrem Verteilungsspektrum unterschiedliche Ergebnisstreungen hervorruft, wird man durch Einführung einer Modellstreuung  $\sigma_M$  in  $L_E$  gerecht

$$L_E = 1,65 \dots 3 \sigma_M U^{1/2} \quad (4)$$

$\sigma_M$  wird aus dem Gleichungssystem (2) unter Berücksichtigung des Auswerteverfahrens erhalten (siehe unten).

Neben den Spektrenformen können auch quantitative Überlegungen zur Nuklididentifikation beitragen. Sind ein interferierendes, im Spektrum nicht unterscheidbares Element (Störreaktion!) und dessen Registrierausbeute  $R_j$  bekannt und kann a priori eine maximale Atomanzahl ( $N_{\max}$ )<sub>j</sub> abgeschätzt werden, sind zwei Fälle zu unterscheiden:

$$(a) ZM > R_j(N_{\max})_j = \Delta(ZM) \rightarrow ZM > Z > ZM - \Delta(ZM)$$

Die durch die Ununterscheidbarkeit von Komponente und Untergrund bewirkte Unsicherheit des Resultats fällt umso weniger ins Gewicht, je kleiner  $R_j$  ist.

$$(b) ZM \leq R_j(N_{\max})_j \rightarrow ZM > Z > 0$$

Die gemessenen Impulse können sowohl allesamt oder aber auch gar nicht vom gesuchten Element stammen.

Um den qualitativen und den quantitativen Aspekt der Abtrennbarkeit gleichermaßen zu berücksichtigen, wird die aus den Gln. (3) und (4) für einen einkomponentigen Untergrund erhaltene minimale nachweisbare Menge folgendermaßen geschrieben

$$N_N = \frac{c_0}{R} + c_1 \frac{\sigma_M(R_j N_j)^{1/2}}{R} = \frac{c_0}{R} + c_1 \cdot \frac{(\text{Interferenz})^{1/2}}{\text{Selektivität} \cdot (\text{Registrierausbeute})^{1/2}} \quad (5)$$

Unter Interferenz wird die von vornherein vorhandene Fremdelementmenge oder auch die Umgebungsstrahlung verstanden. Die

$$\text{Selektivität} = \sigma_M^{-1} \left( \frac{R}{R_j} \right)^{1/2} \quad (6)$$

ist ein von der Probenzusammensetzung und der Umgebungsstrahlung unabhängiges Maß der Trenneigenschaften des Analysenganges. Als Beispiel sei die Verringerung des Nulleffekts durch eine Abschirmung des Detektors angegeben. Sie verkleinert die Registrierausbeute  $R_j$  für die Umgebungsstrahlung und erhöht damit die Selektivität.

W. GÖRNER: PROBE – DETEKTOR-ANORDNUNGEN

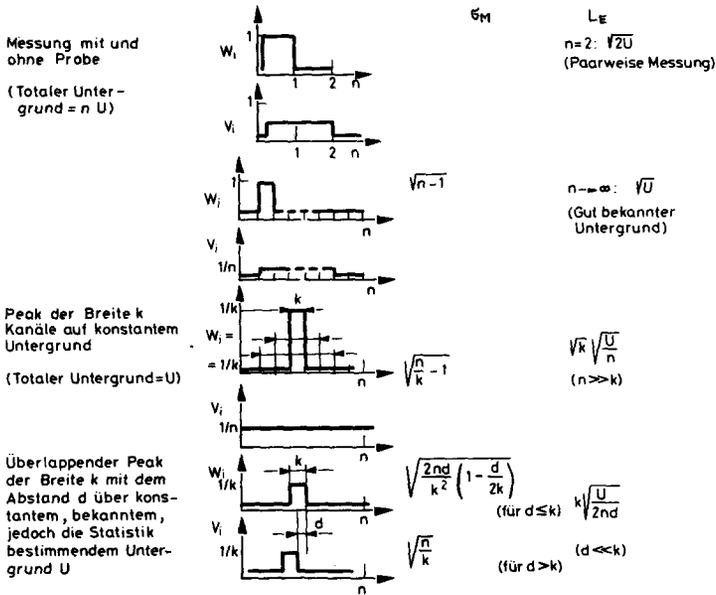


Abb. 2. Beispiele zu Gl. (7)

tivität der Messung. Gl. (5) ist auf einen komplexen Untergrund verallgemeinerbar. Dann sind Interferenz und Selektivität aus unabhängigen Komponenten zusammengesetzte Größen.

Gütefaktoren

Sie dienen dem Vergleich unterschiedlicher Analysenwege, werden aber meist nur für Meßanordnungen in der Form  $G = \epsilon_0 U_0^{-1/2}$  angegeben.  $\epsilon_0$  ist die Meßeffektivität bei geringstem Probe-Detektor-Abstand.  $U_0$  ist der Nulleffekt. Eine einheitliche Darstellung von Gütefaktoren für unterschiedliche Meßsituationen läßt sich aus Gl. (5) gewinnen. Vorher wird noch etwas zur Berechnung von  $\sigma_M$  gesagt.

Es ergibt sich für einen einkomponentigen Untergrund und etwa gleichverteilten Meßeffect  $ZM$

$$v_i Z + w_i R_j N_j = ZM_i \quad i = 1, 2, \dots, n \quad (2a)$$

mit

$$\Sigma = \sum_{i=1}^{i=n} \text{ und } \Sigma v_i = \Sigma w_i = 1$$

bei Anwendung der Methode der kleinsten Fehlerquadratsumme

$$\sigma_M = \left[ n \sum w_i^2 \left( 1 - \frac{(\sum w_i v_i)^2}{\sum w_i^2 \sum v_i^2} \right) \right]^{-1/2} \quad (7)$$

Bei der Auswertung von Gl. (7) fallen die bekannten Beziehungen für "paarweise Messung" und "gut bekannten Untergrund" an. Bei den folgenden Beispielen werden Comptonuntergrund und Peaks durch Kastenfunktionen stilisiert, um zu einfachen Beziehungen für  $\sigma_M$  zu kommen. Bemerkenswert ist die Proportionalität der minimalen nachweisbaren Menge zur Peakbreite, wenn mit überlappenden Fremdpeaks gerechnet werden muß.

Gütefaktoren  $G$  werden gebildet, indem  $N_N$  invertiert wird, wobei  $c_0$  in Gl. (5) vernachlässigt wird. Zum Vergleich unterschiedlicher Meßanordnungen werden sogenannte Vorteilsfaktoren  $V = G_2/G_1$  berechnet. Ist  $V > 1$ , dann ist die Anordnung 2 besser. Faktoren wie  $c_1$ , die für alle möglichen Meßanordnungen gleichgroß sind, können weggelassen werden. Beschränkt man sich mit der Anwendung des Gütefaktors auf die Messung, genauer die Meßanordnung, ist in Gl. (5) als Interferenz die Störaktivität bzw. der Quantenfluß der Umgebungsstrahlung durch den Detektor, und für Registrierausbeuten die entsprechenden Meßeffektivitäten einzusetzen.

*Fall 1*

Der Untergrund ist gleich dem Nulleffekt.

$$G = \frac{\text{Selektivität} \cdot (\text{Meßeffektivität})^{1/2}}{(\text{Interferenz})^{1/2}} = \frac{1}{\sigma_M} \cdot \frac{\epsilon_0}{U_0^{1/2}} \quad (8.1)$$

(1a) Peak auf konstantem Untergrund (Halbwertsbreite = HWB)

$$G = \frac{\epsilon_0}{(\text{HWB} \cdot U_0)^{1/2}} \quad (8.1a)$$

(1b) Peak-Peak-Überlappung

$$G = \frac{1}{\text{HWB}} \cdot \frac{\epsilon_0}{U_0^{1/2}} \quad (8.1b)$$

*Fall 2*

Der Untergrund wird von der Probe bestimmt. Es läßt sich aber bei allen zu vergleichenden Detektoren die maximale Effektivität  $\epsilon_0$  ausnutzen. Weil die Interferenz (störender Elementgehalt  $j$  in der Probe) nicht von der Probe-Detektor-Abschirmungs-Anordnung abhängt, gilt:

$$G = \text{Selektivität} \cdot (\text{Meßeffektivität})^{1/2} \quad (8.2)$$

$$(2a) \quad G = \left( \frac{\epsilon_0/\epsilon_j}{\text{HWB}} \right)^{1/2} \epsilon_0^{1/2} = [(1 - p_j) \epsilon_{j(\text{total})} \text{HWB}]^{-1/2} \epsilon_0 \quad (8.2a)$$

$$(2b) \quad G = \frac{(\epsilon_0/\epsilon_j)^{1/2}}{\text{HWB}} \epsilon_0^{1/2} \approx \frac{\epsilon_0^{1/2}}{\text{HWB}} \quad (8.2b)$$

*Fall 3*

Die Probenaktivität ist so hoch, daß bei keinem infrage kommenden Detektionssystem die Maximaleffektivität  $\epsilon_0$  ausgenutzt werden kann.

$$G = \text{Selektivität}$$

$$(3a) \quad G = \left[ \frac{\epsilon_0}{(1 - p_j) \epsilon_{j(\text{total})} \text{HWB}} \right]^{1/2} \quad (8.3a)$$

$$(3b) \quad G = \frac{1}{\text{HWB}} \quad (8.3b)$$

( $p_j$  ist das Peak-Total-Verhältnis bei der Energie  $E_j$ ).

Die genannten Gütefaktoren setzen eine vollständige qualitative Kenntnis des Untergrunds voraus. Da diese bei "Proben, wie sie wirklich sind"<sup>4</sup> nicht immer gegeben ist, vermitteln sie ein Bild, welches die Selektivität bzw. gutes Auflösungsvermögen unterschätzt. So ist zum Beispiel die statistische Unsicherheit der Energiebestimmung und damit des Nuklidnachweises im Bereich schwacher Aktivitäten nicht einbezogen (siehe auch Lit.<sup>5</sup>).

Daneben ist auch die bei der Auswertung oft gemachte Annahme eines linearen Untergrundverlaufes nicht immer vollständig erfüllt. Abb. 3 zeigt Spektren eines

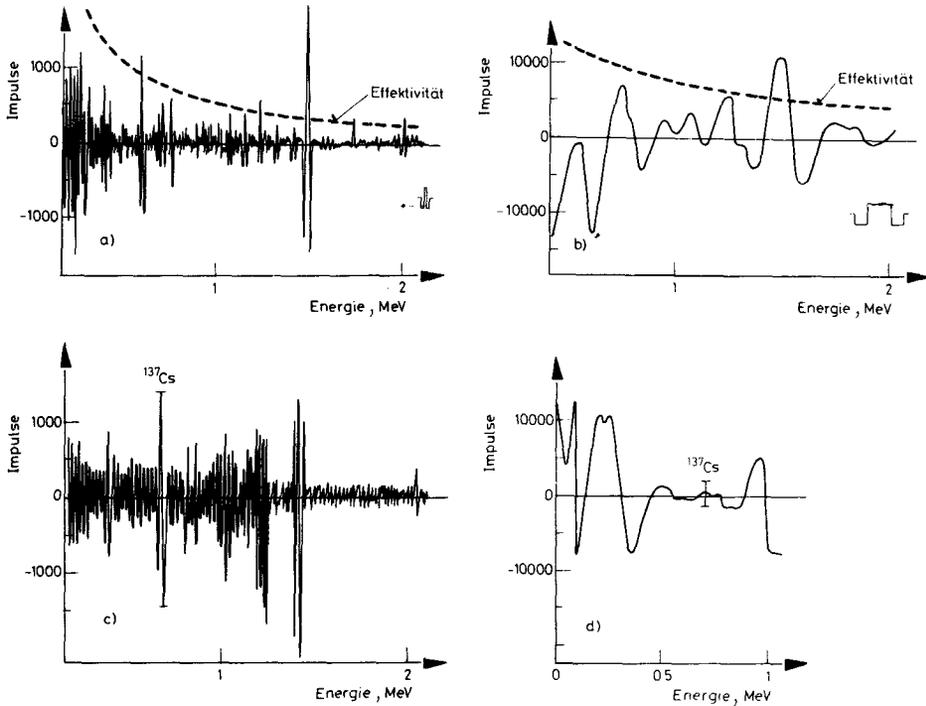


Abb. 3. Gemäß der "Handauswertung" gefaltete  $\gamma$ -Spektren. (a)  $\gamma$ -Nulleffekt eines  $55 \text{ cm}^3$  Ge(Li) Detektors hinter 8 cm Blei nach  $10^5 \text{ s}$  Meßzeit gefaltet über 32 keV, (b)  $\gamma$ -Nulleffekt eines  $5'' \times 4''$  NaI(Tl) Detektors hinter 8 cm Blei nach  $10^5 \text{ s}$  Meßzeit gefaltet über 256 keV, (c) Schwache  $^{137}\text{Cs}$ -Komponente über  $^{60}\text{Co}$  Untergrund gemessen mit Detektor (a); (d) Dasselbe mit Detektor (b). Höhe der " $^{137}\text{Cs}$ -Welle" aus einer zweiten Messung ermittelt und schematisch eingetragen

$55 \text{ cm}^3$ -Ge(Li)-Detektors bzw. eines  $5'' \times 4''$ -NaI(Tl)-Detektors, die nach Faltung mit den in Abb. 3a bzw. 3b gezeichneten Kanal für Kanal durch das Spektrum hindurchlaufenden Rechteckwellen erhalten wurden, welche gemeinhin der "Handauswertung" zugrundeliegen. Es handelt sich um Messungen an Detektoren mit nicht allzu guter Auflösung. Die Totalbreite der Rechteckwelle (des Auswertebereiches), die wegen der verwendeten, spektrometergestützten Auswertung nicht energieabhängig gewählt werden konnte, betrug daher die doppelte Peakfußbreite (bei ca. 1400 keV) von 32 keV bzw. 256 keV. Gestrichelt ist noch der Photoeffektivitätsverlauf in einem willkürlichen für (a) und (b) jedoch adäquaten Maßstab eingetragen. Es wird sofort deutlich, daß beim Ge-Detektor die Kurve, abgesehen von schmalen Peakbereichen nur im Rahmen der Statistik von der Nulllinie abweicht (wobei allerdings bei a) die zahlreichen kleinen Nulleffektpeaks in der Zeichnung ein erhöhtes

“Rauschen” vortäuschen) während beim NaI-Detektor die systematische Nullabweichung gegenüber der Statistik dominiert.

Die Gütefaktoren sind daher insbesondere beim NaI-Detektor nur insofern als Maß für die analytische Leistungsfähigkeit brauchbar, als die jeweilige Nullabweichung bekannt ist. Aber selbst wenn man letzteres voraussetzt, muß man einräumen, daß – je größer die systematische Nullabweichung ist – umso höhere mögliche Schwankungen infolge Drift, zeitabhängigen Nulleffekts oder nicht detektierbarer Fremdnuklide erwartet werden müssen. Trotz dieser Einschränkungen ist festzustellen, daß die Gütefaktoren sinnvoll zur Charakterisierung von Detektionssystemen beitragen.

### Ge-Detektor und NaI(Tl)-Detektor

Diese beiden  $\gamma$ -Detektortypen dominieren in der Aktivierungsanalyse und fordern daher zu einem genaueren Vergleich heraus. Dieser erstreckt sich auf die Photoeffektivität, das Auflösungsvermögen und den Nulleffekt.

#### Meßeffectivität

Die Meßeffectivität hängt in erster Linie von der Materialverteilung innerhalb der Anordnung ab. So enthält der Detektor auch inaktive Bauteile, die als Absorber im Strahlengang liegen und den Strahlungsnachweis nach niedrigen Energien hin begrenzen. Deswegen durchläuft die innere Photoeffektivität  $I_{ph}$  von Ge- $\gamma$ -Detektoren zwischen 50 und 150 keV (je nach Eintrittsfensterdicke und Tiefe der aktiven Zone) ein Maximum und fällt oberhalb von 180 keV näherungsweise mit  $E_\gamma^{-q}$  ab. Der Betrag des Exponenten  $q$  nimmt mit wachsendem Detektorvolumen ab:<sup>6,7</sup>  
 $q = 0,6 \lg V_{aktiv} (\text{cm}^3) + 2,2$ . Bei Volumenvergrößerung steigt  $I_{ph}$  für  $E_\gamma > 200 \text{ keV}$  überproportional an. Bei 10facher Volumenvergrößerung erhöht sich  $I_{ph}$  (1 MeV) um den Faktor 40. Daneben ist der Abfall von  $I_{ph}$  nach hohen Energien umso kleiner, je kompakter das aktive Volumen verteilt ist. So beobachteten wir bei zwei Detektoren gleichen Volumens (15 cm<sup>3</sup>), aber unterschiedlicher Drifttiefe (9,4 bzw. 8,5 mm)  $q = 1,26$  bzw.  $q = 1,38$ . Das entspricht immerhin einem Effectivitätsunterschied bei 1 MeV von 20%. Ein Vergleich mit dem vom Photoeffekt zu erwartenden Beitrag zeigt, daß oberhalb 300 keV die vollständige Absorption eines Quantes fast immer durch Mehrfachwechselwirkungen zustande kommt, an deren Anfang eine Compton-Wechselwirkung steht.

Bezogen auf einen NaI-Detektor gleicher Abmessungen, hat der Ge-Detektor seiner höheren Dichte wegen eine größere Totaleffectivität, besitzt jedoch ein kleineres Peak-Total-Verhältnis. Man darf sich daher durch seine kleine Photoeffectivität bei hohen Energien nicht darüber hinwegtäuschen lassen, daß er bei Kaskaden-

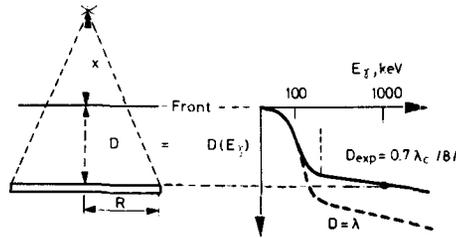


Abb. 4. Detektormodell

strahlern (und guter Geometrie) stärker zur Summenkoinzidenz (nicht Summenpeakbildung!) neigt als der NaI-Detektor. Um die Absoluteffektivität zu erhalten, werden die gewöhnlich zylindrischen Detektoren durch das Modell einer Kreisfläche in der energieabhängigen Distanz  $D(E_\gamma)$  von der Stirnfläche ersetzt, in der man sich die Fähigkeit des Detektors zum Strahlungsnachweis konzentriert denken kann. (z.B. Lit.<sup>9</sup>). Diese wird dann von der Quelle unter dem relativen Raumwinkel

$$\omega = \frac{1}{2} (1 - \{1 + [R/(x + D)]^2\}^{-1/2})$$

“gesehen”.  $D$  wird als mittlere freie Weglänge der Quanten im Detektor angenommen und wächst mit der Energie. Weichen Quellen erscheint der Detektor also näher als harten Quellen (Abb. 4).

Die Abweichungen des abstandsabhängigen Effektivitätsverlaufes vom Geometriefaktor  $\omega$ , welche durch Strahlendurchtritt in Nähe der Detektorkanten hervorgerufen sind, werden in einem Korrekturterm  $F(\omega)$  berücksichtigt. Es ergibt sich

$$\epsilon_{ph} = I_{ph} \omega F(\omega)$$

$F(\omega)$  weicht selten mehr als 10% von 1 ab, wie eigene Messungen<sup>8</sup> an Ge-Detektoren unterschiedlicher Größe sowie Auswertung experimenteller Daten anderer Autoren<sup>10</sup> an einem 3" x 3"- und einem 8" x 4"-NaI-Kristall ergaben. Bei groben Abschätzungen braucht  $F(\omega)$  daher nicht berücksichtigt werden.

Das Verhältnis der Photoeffektivität des Ge-Detektors zu dem des 3" x 3"-NaI-Detektors bei kleinen Abständen fällt gewöhnlich etwas günstiger aus als das Verhältnis in der Standardgeometrie nach HEATH. (25 cm Abstand vom Detektor.)

Dies liegt neben dem “Sättigungsverhalten” des Raumwinkels bei kleinen Abständen vor allem daran, daß eine <sup>60</sup>Co-Quelle den Ge-Detektor “näher sieht” als den NaI-Detektor. So erhält man für einen 50 cm<sup>3</sup>-Detektor (ca. 2 cm Radius)

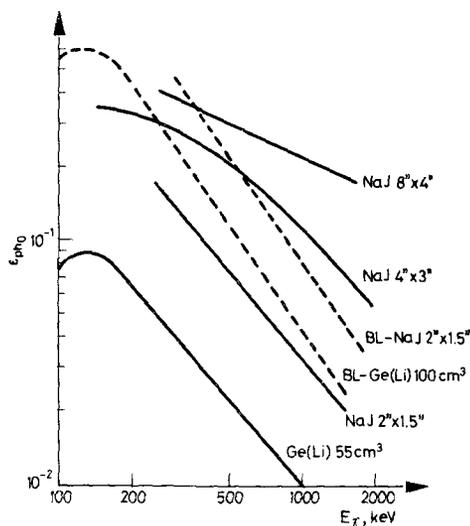


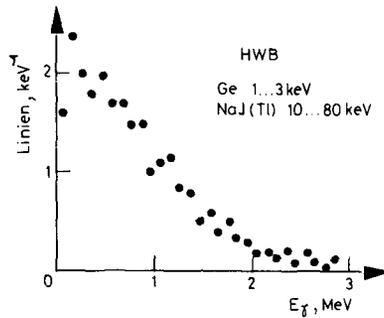
Abb. 5. Photoeffektivitäten

eine relative Verbesserung um den Faktor 1,8, wenn der Abstand des Kristalls von der Kappe 5 mm beträgt. Bei 10 mm Kristallabstand verringert sich der Vorteil auf 1,25. Es ist daher auf diesen Umstand zu achten, der nicht in der von den Detektor-Herstellern gemeinhin angegebenen "relativen Effektivität" zum Ausdruck kommt.

Bei großen NaI-Detektoren ist zu sehen, daß  $\epsilon_0$  selbst für hohe Energien nicht mehr proportional zum Detektorvolumen wächst. Dagegen bietet ein Kristall mit Bohrloch zur Aufnahme der Probe Vorteile. Die Photoeffektivität im Bohrloch ist bei  $E_\gamma < 200 \text{ keV}$  5–10mal und bei  $E_\gamma > 1 \text{ MeV}$  1,5–3mal größer als diejenige kleinsten Abstandes zu einem kompakten Detektor gleicher Ausdehnung. DE BRUIN u.a. stellen daher völlig zu Recht fest, daß sich eine erhöhte Kapitalanlage am Detektor besonders lohnt.<sup>11</sup> Denn auch raffinierter Komfort bei der Datenverarbeitung kann die Informationsverluste nicht kompensieren, die beim Meßvorgang durch unvollständige Energieübertragung vom Quant auf den Detektor hingenommen wurden (Abb. 5).

### Auflösungsvermögen

Neben dem Einfluß der Halbwertsbreite auf die Gütefaktoren, deren Definition eigentlich die qualitative Kenntnis des zu messenden Aktivitätsgemisches voraussetzt, besteht der hohe Wert guten Auflösungsvermögens vor allem darin, die Komponenten eines unbekanntem Strahlungsgemisches besser sichtbar zu machen. Beim

Abb. 6. Liniendichte von Gammastrahlern nach Lit.<sup>1,2</sup>

Ge-Detektor kommen 2,5 ... 0,5 Gammaenergien von allen in<sup>1,2</sup> angeführten, durch Neutronenbestrahlung entstehenden Nukliden auf eine Halbwertsbreite, so daß – von den bekannten Überlappungen abgesehen – Verwechslung und Störungen durch Fremdpeaks seltener sind. Der qualitative Nachweis ist beim NaI-Detektor mit 25 ... 15 Gammaenergien dagegen wesentlich problematischer (Abb. 6).

### Nulleffekt

Der Nulleffekt besteht aus zwei Komponenten. Der im allgemeinen dominierende Anteil wird durch die Strahlung natürlicher und künstlicher Radiokerne hervorgerufen, welche die den Detektor umgebenden Materialien enthalten. (<sup>40</sup>K, Th- und U-Zerfallsreihen, <sup>60</sup>Co). Ein Großteil dieser Strahlung wird durch eine Bleiburg von ca. 10 cm Wanddicke abgeschirmt. Da jedes Material wegen der in ihm enthaltenen radioaktiven Bestandteile gleichzeitig Absorber und Strahler ist, muß bei hohen Ansprüchen an die Nulleffektreduzierung neben der Wanddicke auch die Radiokontamination des Abschirmmaterials beachtet werden, welche bei großer Wanddicke die erreichbare Strahlungsverminderung innerhalb der Burg bestimmt. "Abschirmen" bedeutet daher, zwischen eine vorhandene Umgebung und die Detektoren Material gleich welcher Art, aber ausreichender Stärke zu bringen, welches eine geringere Eigenstrahlung aufweist als diese Umgebung. Daher sollte die Beschreibung von Niedrig-Niveau-Meßboxen auch deren K-, Th- und U-Gehalte erwähnen. Zur Erzielung extrem niedrigen Nulleffekts werden unterschiedliche Abschirmmaterialien kombiniert (z.B. von außen nach innen 100 cm ultrabasisches Gestein, 5 cm Blei, 5 cm Kupfer, 3 cm Wolfram<sup>13</sup>).

Die zweite Komponente des Nulleffekts entstammt der energiereichen, durchdringenden Höhenstrahlung. Diese kann nur durch mächtige Gesteinsschichten (> ... ≥ 20 m Wasseräquivalent) wirksam reduziert werden, was die Einrichtung unterirdischer Labors nötig macht. Eine Alternative sind bis zu einem gewissen

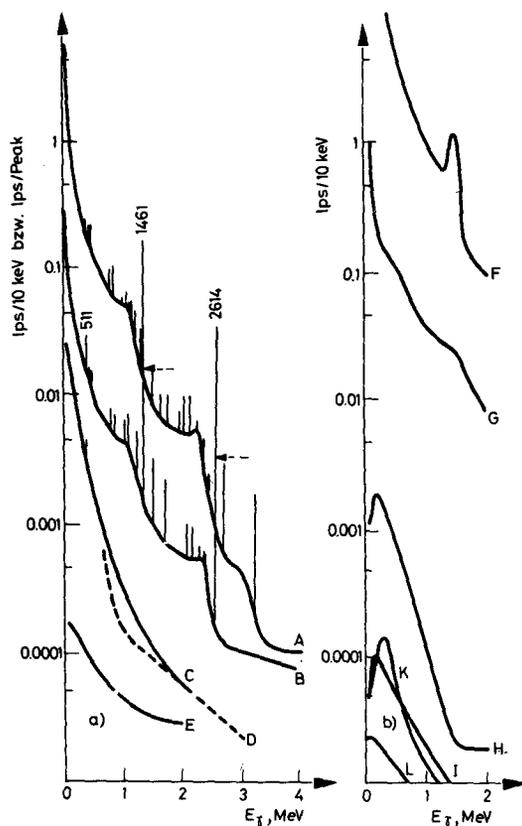


Abb. 7. (a) Nulleffektspektren Ge(Li). (A) – 50 cm<sup>3</sup> Ge:  $\gamma$  im Labor, (B) – 8 cm Bleiburg, (C) –  $\gamma\gamma$  Bleiburg mit 5"  $\times$  4" NaI, (D) – 70 cm<sup>3</sup> mit Anti-KO,<sup>15</sup> (E) –  $\beta\gamma$  50 cm<sup>3</sup> Ge 8 cm Bleiburg,  $\beta$ : 32  $\times$  2 Plast  
(b) Nulleffektspektren NaI(Tl). (F) – 4"  $\times$  3" NaI  $\gamma$  im Labor, (G) – 8 cm Bleiburg, (H) –  $\beta\gamma$  im Labor,  $\beta$ : 29  $\times$  0,28 Plast, (I) –  $\beta\gamma$  8 cm Bleiburg, (K) – 6,5"  $\times$  4,5" NaI mit 3,5"  $\times$  2,5" BL,  $\beta\gamma$  mit GM-Zähler und Anti-KO,<sup>17</sup> (L) – 4"  $\times$  3" NaI  $\beta\gamma$  8 cm Bleiburg,  $\beta$ : ohne  $\beta$ -Detektor auf dem SEV

Grade Antikoinzidenzschirme aus Gaszählern<sup>14</sup> oder Plastdetektoren. Mit letzteren konnte auch der Anteil der Höhenstrahlung am Nulleffekt um den Faktor 5 reduziert werden.<sup>15</sup> Soll der Nulleffekt gegenüber einer normalen Bleiburg um  $\geq 2$  Größenordnungen gesenkt werden, müssen mehrere der genannten Maßnahmen ergriffen werden (Abb. 7a und 7b).

Ein anderer Weg ist die Messung von Zerfallskaskaden: Die  $\beta\gamma$ -Koinzidenzmessung zeichnet sich durch eine Reduktion des Nulleffekts um mehr als 3 Größenordnungen

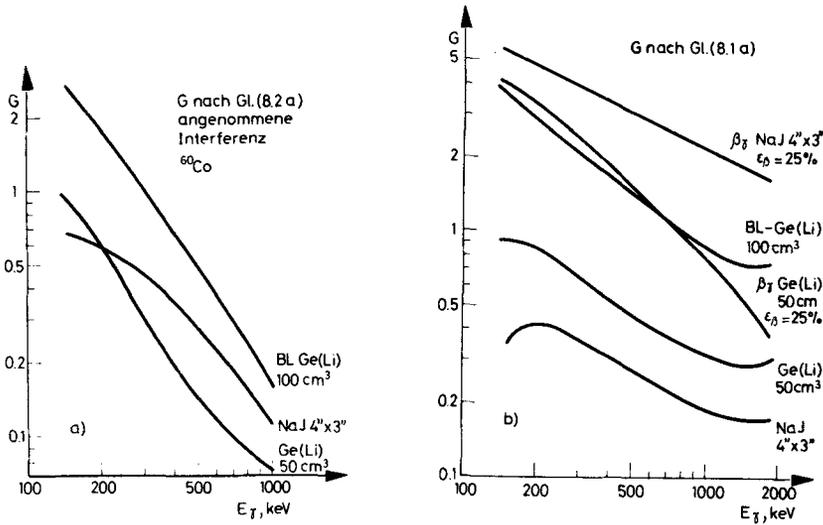


Abb. 8. (a) Gütefaktoren (2a), (b) Gütefaktoren (1a)

gen aus, während die Meßeffektivität nur um weniger als 1 Größenordnung sinkt. Der Nulleffekt wächst mit der Dicke eines Plastdetektors nur wenig. Deshalb erscheinen LS $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenzmessungen wegen der hohen  $\beta$ -Effektivität und guter Anwendungsbreite vorteilhaft. Nachteilig ist, daß sich die  $\beta\gamma$ -Messung für zerstörungsfreie Analysen nicht eignet.  $\gamma\gamma$ -Messungen können dagegen ohne chemische Probenvorbereitung auskommen. Die Nulleffektreduktion ist jedoch geringer als bei der  $\beta\gamma$ -Messung und Effektivitätsverluste besonders bei hohen Energien größer. Die Anwendbarkeit ist an  $\gamma$ -Kaskaden im Zerfallsschema gebunden. Zum Vergleich der angegebenen Standardmeßplätze mit Ge- oder NaJ-Detektoren wurden Gütefaktoren (1a) und (2a) berechnet. (Abb. 8.) Hierfür wurden die abgebildeten Photoeffektivitäten und Untergrundspektren zugrunde gelegt. Hohe Impulsraten (Fall 3) werden nicht berücksichtigt, da hier der Ge-Detektor ohnehin überlegen ist. Bemerkenswert ist der hohe Gütefaktor für die  $\beta\gamma$ -Szintillationsdetektorkombination. Er wird mit dem meßtechnischen Entwicklungsstand der 50iger und 60iger Jahre erreicht, wenn auch unter Zuhilfenahme chemischer Probenvorbereitung. Daneben wird die Vielseitigkeit großer Ge-Detektoren mit Bohrloch deutlich. Dagegen erbrachte die  $\beta\gamma$ -Koinzidenz mit einem Ge-Detektor (der allerdings nicht allseits von Blei umschlossen war) einen wesentlich geringeren Vorteil als beim NaI-Detektor. Interesse verdient der Umstand, daß schwächste Aktivitäten besser mit dem selektiveren Ge-Detektor und eine qualitativ bekannte Komponente  $E_\gamma$  über  $^{60}\text{Co}$ -Untergrund – ein höheres Aktivitätsangebot – besser mit dem effektiven NaI-Detektor gemessen wird. Dies ist eine Folge des schlechteren Peak-Total-Verhältnisses beim Ge und der Form des

jeweiligen Untergrundspektrums. Während das Nulleffektspektrum mit zunehmender Energie steil abfällt und die Gütefaktoren oberhalb der Comptonkante des  $^{40}\text{K}$  vorerst nicht kleiner werden oder sogar wieder ansteigen, verläuft das Comptonkontinuum des  $^{60}\text{Co}$  bis 1 MeV im wesentlichen horizontal (Abb. 7 und 8).

Bei hohen Aktivitäten kommen die zeitlichen Parameter des gesamten Detektionssystems, also der Detektor-Anordnung und der nachfolgenden Impulsverarbeitungselektronik, ins Spiel. Die maximal verarbeitbare bzw. tatsächlich verarbeitete Impulsrate tritt an die Stelle der Detektoreffektivität. (Dies wird unmittelbar dadurch deutlich, daß man mit einer heißen Quelle um so näher an den Detektor rücken und damit eine um so größere Meßeffectivität erreichen kann, je höher die vom Meßsystem verarbeitbare Impulsrate ist.)

Das Meßsystem – bestehend aus D, VV, HV, Spitzenwertdehner, (SWD), ADC und SP – braucht für jeden Verarbeitungsschritt eine endliche Operationszeit (Totzeit, Busy). Erst nach Ablauf dieser Zeit ist ein Block wieder in der Lage, einen neuen Impuls korrekt zu verarbeiten, sofern (im Falle kumulativer Totzeit) inzwischen keine Verlängerung derselben eingetreten ist. Die eigentlich interessante Rate der akzeptierten und bis zum Speicher (SP) "durchgereichten" Impulse, die Zählrate, wird daher von der dominierenden Totzeit innerhalb der Verarbeitungskette ebenso begrenzt, wie von der aus Stabilitätsgründen maximal möglichen Eingangsrate (Tabelle 1).

Man sieht anhand der Tabelle, daß gegenwärtig der Verstärker die begrenzende Komponente ist, wobei die Anstiegszeiten der Halbleiterdetektoren eine obere Impulsrateschranke setzen.

Die maximale Rate, die eine FE mit der kumulativen Totzeit T passieren kann, beträgt  $1/eT$ . Hiermit erhält man im Gegensatz zu den Gl. (8), in denen keine zeitlichen Eigenschaften Berücksichtigung fanden, für die Nachweisgrenze

$$\text{NWG} \sim \frac{\epsilon_j}{\epsilon_{\text{ph}}} \sqrt{\frac{(1 - p_j) t_{\text{eff}j}}{t_{\text{eff}}}} \sqrt{\frac{\text{HWB}/E_{c_j}}{t_{\text{eff}}}} \sqrt{\frac{eT}{t_{\text{eff}}}} \frac{A_j}{S}$$

S – Empfindlichkeit in  $\gamma$ -Quanten/s pro g für das gesuchte Element,

$A_j$  – Aktivität des störenden Elements j,

$$t_{\text{eff}} = \int_{t_1}^{t_2} e^{-\lambda(j)t} a(t; T) dt,$$

$E_{c_j}$  – Energie der Comptonkante von j mit  $E_j > E_{c_j} > E$ .

Unter der Annahme, daß sich das Abklingverhalten von gesuchter und störender Komponente während der Messung nicht sehr unterscheidet ( $t_{\text{eff}} \approx t_{\text{eff}j}$ ) und nach

Tabelle 1  
Operations- bzw. Totzeiten moderner Kernstrahlungs-Meßelektronik

$T/\mu\text{s}$	Detektor, D	Vorverstärker, VV	Hauptverst., HV	SWD-ADC	Speicher, SP
$\gamma$ -Ge	0,05–0,4	$10^{-3}$ – $10^{-2}$	2– 20	5–20	1
X-Si	0,01–0,04	$10^{-3}$ – $10^{-2}$	20–200	5–20	1
Kumulativ				Einfach	

Weglassen aller nicht von der Meßanordnung abhängenden Faktoren ergibt sich

$$G = \frac{\epsilon_{\text{ph}}}{\epsilon_j} \frac{1}{\sqrt{1 - p_j} \sqrt{\text{HWB} \cdot T}} \quad (8.4a)$$

Wird ein und dieselbe Anordnung bei unterschiedlichen zeitlichen Einstellungen (z.B. Gauß-Formungszeiten) benutzt, kann zum inneren Vergleich weiter vereinfacht werden:

$$G = \frac{1}{\sqrt{\text{HWB}(T) \cdot T}} \quad (8.4b)$$

Im Falle des Ge-Detektors steigt die HWB unterhalb von  $\tau_F = 2 \mu\text{s}$  mit kleiner werdender Formungszeit immer stärker an, wobei die mit Detektor-Anstiegszeitschwankungen (20–200 ns) verbundene Fluktuation des ballistischen Defizits Formungszeiten unter  $0,5 \mu\text{s}$  kaum zuläßt. Daher wird die mit der Wahl kürzerer Formungszeiten verbundene Erhöhung des Gütefaktors etwas gedämpft.

Sind Nichtlinearitäten der Impulsformung im VV weitgehend ausgeschlossen, können Eingangsimpulsraten bis zu  $2 \cdot 10^5$  Ips gemessen werden.

Höhere Impulsraten lassen sich von zeitvarianten Filtern wie dem getorten Integrator nach RADEKA<sup>20</sup> verarbeiten. So erreichte WESTPHAL<sup>21</sup> mit einem VV mit getorteter Rückkopplung, einem getorten Integrator und einem schnellen ADC eine Eingangsrate von ca.  $3 \cdot 10^5$  Ips und eine verarbeitete Rate von ca.  $4 \cdot 10^4$  Ips.

Ist nur ein schmales Fenster aus dem Energiespektrum von Interesse, kann das lineare Tor im energiespektrometrischen Trakt, gesteuert von einem schnellen Einkanalanalysator (T – EKA), nur für diejenigen Impulse geöffnet werden, deren Amplituden im Fenster liegen. Hierdurch wird für den größeren Teil der Impulse die Totzeit auf wenig mehr als die Detektoranstiegszeit (50–400 ns) beschränkt, während die Weiterverarbeitung jedes akzeptierten Impulses einige Mikrosekunden erfordert.

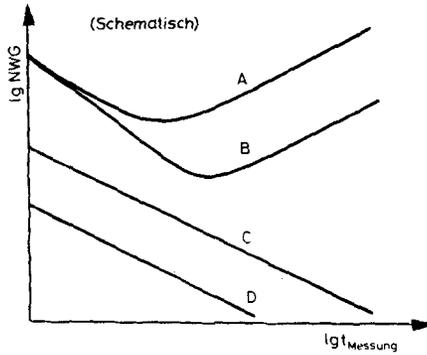


Abb. 9. Zur Nachweisgrenze bei hohen Raten. (A) – kürzerlebiger Untergrund, (B) – dto. mit  $\epsilon$ -Regelkreis, (C) – const. Untergrund,  $HWB_1 \cdot T_1$ , (D) – dto. mit  $HWB(T_2) \cdot T_2 < HWB_1 \cdot T_1$

Bei abklingender Probenaktivität kann die Forderung, in der Zeiteinheit möglichst viele Impulse durch die Meßkette zu bringen, durch einen Regelkreis erfüllt werden, der mittels Verringerung des Probe-Detektor-Abstandes die Impulsrate konstant hält<sup>22</sup> (Abb. 9).

Ohne Berücksichtigung von Totzeitverlusten und mit  $q = \lambda_j/\lambda$  sowie Meßzeit =  $2/\lambda \approx 3 T_{1/2}$  erhält man

$$G = \frac{1}{q-1} \frac{e^{2(q-1)} - 1}{1 - e^{-2}} \sqrt{\frac{1}{2q} (1 - e^{-2q})} \quad (8.4c)$$

Daneben wird auch bei Serien von Proben unterschiedlicher Aktivität immer die optimale Impulsrate eingestellt. Von der Impulsrate abhängige, systematische Meßfehler sind dann bei Proben und Standards gleich groß und können bei der Relativmethode eliminiert werden.

Die Grenzen der Spektrometrie hoher Impulsraten in Gestalt der Detektor-Anstiegszeiten sind nicht mehr sehr weit vom gegenwärtig Möglichen, jedoch noch 2 Größenordnungen vom routinemäßig, ohne besonderen Aufwand betriebenen entfernt. Es lohnen daher die Anstrengungen in Richtung auf eine stabile Messung bei hohen Impulsraten im Hinblick auf die Meßzeitökonomie bzw. die Nachweisgrenze der zerstörungsfreien Aktivierungsanalyse insbesondere kurzlebiger Nuklide und der Aktivitätsanalyse z.B. zur Reinheitskontrolle von Radioisotopen oder zur Kreislaufüberwachung in KKW.

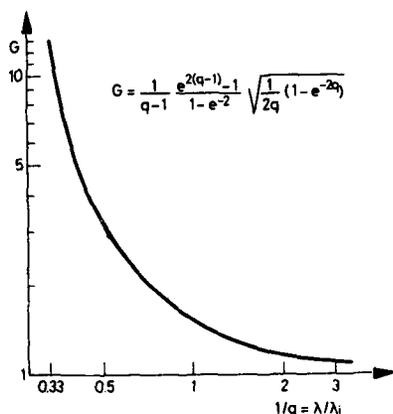


Abb. 10. Gütefaktor des Effektivitätsregelkreises nach Lit.<sup>22</sup> bei einer Meßzeit von etwa  $3T_{1/2}$  mit  $q = \lambda_j/\lambda$

Eine einwandfreie Zählausbeutekorrektur muß dann auch bei hohen und variablen Raten quantitativ zuverlässige Analysen gewährleisten. Diese Frage wäre jedoch eine eigene methodische Betrachtung wert.<sup>23</sup>

### Schlussfolgerungen

Erinnern wir uns der zweiten, anfangs gestellten Frage, so geht der Vergleich der erreichbaren Selektivität zu Gunsten der Radiochemie aus. So wird ein Trennungsgang erst dann als befriedigend angesehen, wenn seine Dekontaminationsfaktoren den vergleichsweise bescheidenen Möglichkeiten der Kernspektrometrie entgegengekommen sind. Umgekehrt kann letztere Mängel und Instabilitäten der Trennung rasch erkennen, die mit chemischen Mitteln nur schwer oder auch gar nicht nachzuweisen sind.

Was die Entwicklungen auf dem Gebiete der Meßtechnik anbelangt, wird die Energieauflösung gegenwärtiger Halbleiterdetektoren nicht mehr wesentlich besser werden. Die Erhöhung des Peak-Total-Verhältnisses bei immer größeren Detektoren bringt eine starke Verbesserung des  $\gamma$ -Nachweises mit sich, wobei dadurch die Höhe des Comptonplateaus nur zögernd reduziert wird. Insofern verdienen Anti-KO-Schirme zur Comptonunterdrückung nach wie vor Beachtung. Da diese eine Steigerung des Gütefaktors von nur 2–3 bringen, steht man immer vor der Frage, ob man vorhandene Mittel dafür oder für den Erwerb eines etwas größeren Ge-Detektors ausgeben sollte. Ein Antikoinzidenzschirm ist jedoch stets auch ein wirksames Mittel zur Verringerung des Nulleffekts.

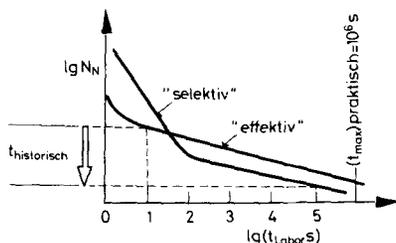


Abb. 11. Trend von Nachweislimit und Meßzeit

Im Bereich niedriger Raten ist man mit der  $\beta\gamma$ -Messung schon soweit vorgedrungen, daß immerhin  $5 \cdot 10^4 - 2 \cdot 10^5$  s lang gemessen werden muß, ehe der konstante Term des Nachweislimits nicht mehr bestimmend ist. Für kurzlebige Nuklide reicht dieser Stand bereits völlig aus. Das für langlebige Nuklide erstrebenswerte Nulleffektniveau liegt um einen Faktor 5 tiefer. Dieser kann eventuell durch Antikoinzidenz oder Messung im unterirdischen Labor erhalten werden. Eine weitere Senkung des Nachweislimits ist nur durch Vergrößerung der Effektivität möglich. Hier bietet sich die LS-Messung mit Ausbeuten an, die den gewohnten chemischen Ausbeuten durchaus vergleichbar sind. In wenig abgeschwächter Form gilt das auch für die  $\gamma$ -Messung bei niedriger Energie ( $<300$  keV) im Bohrloch. Nimmt man noch die gute Energieauflösung des Ge-Detektors und sein hohes Peak-Total-Verhältnis in diesem Energiebereich hinzu, ist der ideale, auf der Grundlage der jetzigen Detektoren mögliche Entwicklungsstand schon beinahe erreicht. Was zu tun übrig bleibt, ist, das Peak-Total-Verhältnis, weniger das Auflösungsvermögen weiter zu erhöhen. Bei Energien  $>1$  MeV erreicht man nur mit sehr großen NaI-Detektoren, NaI-Bohrlochdetektoren oder NaI-Detektorpaaren Photoeffektivitäten von einigen – zig Prozent. Hier könnte die Entwicklung zu größeren Ge-Detektorvolumina, welche sicher nicht abgeschlossen ist, noch für viele Jahre zu einem steten Fortschritt beim Erreichen kleinerer Nachweisgrenzen führen. Im Laufe der Zeit werden immer niedrigere Nachweislimits gewünscht. Bei Analysen mit chemischer Abtrennung führt das zum Messen immer kleinerer Impulsraten, bei zerstörungsfreien Analysen zum Messen immer höherer Impulsraten. Beides verlangt die Erhöhung der Selektivität.

Mit einem selektiveren Verfahren (oft mit niedrigeren Registrierausbeuten verbunden) erreicht man zwar gegebenenfalls ein neues niedrigeres Nachweislimit, jedoch führt dies in der Tendenz zu längeren Meßzeiten (Abb. 11) und reduziert die Produktivität. Deshalb werden auch in Zukunft Mehrdetektoranordnungen zum gleichzeitigen Messen chemisch aufgearbeiteter Proben<sup>2</sup> von Interesse sein, wie sie inzwischen auch für die zerstörungsfreie Analyse angewandt werden.<sup>18,19</sup> Die zur

Zeit routinemäßig erfaßten Impulsraten lassen sich sicher noch um eine Größenordnung steigern, bis eine natürliche Grenze erreicht ist. Eine erhöhte Selektivität der Meßelektronik – diesmal in zeitlicher Hinsicht – wird dafür die Voraussetzung schaffen. Jedoch stößt man auch hier bei der Senkung des Nachweislimits sehr bald an die Schranken des Machbaren. Gerade das ist aber die beste Garantie für den Fortbestand der Ehe von Radiochemie und Kernspektrometrie in der Aktivierungsanalyse.

\*

Herr Dr. sc. S. NIESE hat durch Kritik und Anregung diese und andere Arbeiten stets gefördert. Er, Herr Dr. rer. nat. W. HELBIG und Herr Ing. H. KLEEBERG überließen mir bereitwillig z.T. noch unveröffentlichtes Material und halfen mir auf vielfältige Weise. Ich möchte den genannten Herren hierfür den herzlichsten Dank sagen.

### Literatur

1. R. GIJBELS, A. GOVAERTS, *J. Radioanal. Chem.*, 16 (1973) 7.
2. S. NIESE, W. GÖRNER, H. KLEEBERG, *Nucl. Instr. Methods*, 104 (1974) 217.
3. L. A. CURRIE, *Anal. Chem.*, 40 (1968) 586.
4. W. W. MEINKE, *J. Radioanal. Chem.*, 15 (1973) 419.
5. L. A. CURRIE, *Proc. 1976 Int. Conf. Modern Trends in Activation Analysis*, München, 1976, 10, p. 1277.
6. E. VAÑO, L. GONZALES, R. GAETA, J. A. GONZALES, *Nucl. Instr. Methods*, 123 (1975) 573.
7. V. HNATOWICZ, *Nucl. Instr. Methods*, 142 (1977) 403.
8. W. GÖRNER, P. NIKOLOV, *Isotopenpraxis*, 16 (1980) 127.
9. D. L. SMITH, *Nucl. Instr. Methods*, 94 (1971) 157.
10. R. M. GREEN, R. J. FINN, *Nucl. Instr. Methods*, 34 (1965) 72.
11. M. de BRUIN, P. J. M. KORTHOVEN, J. P. W. HOUTMAN, *Proc. 1976 Int. Conf. Modern Trends in Activation Analysis*, München, 1976, p. 163.
12. Chr. MEIXNER, *Gammaenergien Jülich*, 1971, Jü1811RX.
13. E. L. KOVALCHUK, V. V. KUZMINOV, A. A. POMANSKIJ, G. T. ZATSEPIN, *Proc. Int. Conf. Low Radioactivity, The High Tatras*, 1975, p. 23.
14. A. STENBERG, *Nucl. Instr. Methods*, 94 (1971) 289.
15. G. J. HUNT, M. C. O'RIORDAN, P. D. J. WHETMATH, *Nucl. Instr. Methods*, 156 (1978) 573.
16. J. S. FRUCHTER, *Nucl. Instr. Methods*, 99 (1972) 349.
17. KAZUO YAMAKOSHI, KEN'ICHI NOGAMI, *Nucl. Instr. Methods*, 134 (1976) 519.
18. S. NIESE, H. KLEEBERG, *Isotopenpraxis*, 12 (1976) 120.
19. W. HELBIG, *Isotopenpraxis*, 14 (1978) 108.
20. V. RADEKA, *IEEE Trans Nucl. Sci. NS-19* no. 1 (1972) 412.
21. G. P. WESTPHAL, *Nucl. Instr. Methods*, 136 (1976) 271.
22. W. GÖRNER, G. NOA, D. PETERS, H.-J. GROßER, *Nucl. Instr. Methods*, 131 (1975) 417.
23. J. W. MÜLLER, *Bibliography on Dead Time Effects, Rapport BIPM 75/6*, 1975, Sévres.