

Die Korrektur infolge der γ -Empfindlichkeit des β -Zählrohrs bei der $4\pi\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode

W. KÖHLER

Physik-Department der Technischen Hochschule München, Reaktorstation Garching

(Z. Naturforsch. 20 a, 1170—1174 [1965]; eingegangen am 14. Juni 1965)

Bei der $4\pi\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode wird für den γ -Nachweis in den meisten Arbeiten ein Szintillationskristall verwendet. Die Korrektur für $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen, die bei Isotopen mit zwei oder mehr γ -Quanten pro Zerfall erforderlich ist, wurde von CAMPION und WILLIAMS für eine derartige Meßanordnung ausführlich untersucht. Für den γ -Nachweis können aber auch Proportionalzählrohre verwendet werden. Für die einfache $\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode hat WOLF eine Methode zur Ermittlung der notwendigen Korrekturen angegeben. Die von ihm vorgeschlagene Anwendung auch auf $4\pi\beta\gamma$ -Messungen wurde untersucht. Die hierbei notwendige Extrapolation birgt aber Fehlermöglichkeiten in sich. Die Ermittlung dieser „Zerfallsschemakorrektur“ wurde daher auf zwei verschiedene Weisen experimentell für Co^{60} - und Na^{24} -Präparate durchgeführt. Für ein Co^{60} -Präparat mit $\varepsilon_\beta = 0,84$ ergab sich z. B. eine Korrektur von $+0,10\%$ mit einem maximalen Fehler von $\pm 0,05$. Die Übertragung dieser Korrektur auf andere Präparate und Isotope (z. B. Sc^{46}) wird diskutiert.

1. Problemstellung

In einer ausführlichen Studie haben WILLIAMS und CAMPION¹ die γ -Empfindlichkeit ihrer $4\pi\beta$ -Zählrohrs untersucht und fanden, daß die „Zerfallsschemakorrektur“ für ein Co^{60} -Präparat in ihrer Meßanordnung bei einer Nachweiswahrscheinlichkeit von 66% nur $2,5\%$ beträgt, und zwar ist das Produkt $(n_\beta \cdot n_\gamma / n_K) = R$ mit den üblichen Korrekturen für Nulleffekt und zufällige Koinzidenzen größer als die Zerfallsrate N .

Für den γ -Nachweis haben die Autoren einen großen Szintillationskristall verwendet und nur den Photopeak der energiereichsten γ -Linie registriert.

In diesem Fall ergibt sich auch die einfache Beziehung

$$R \equiv \frac{n_\beta \cdot n_\gamma}{n_K} = N_0 \left\{ 1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \varepsilon_{\beta\gamma_1} \right\} \quad (1)$$

mit ε_β = Nachweiswahrscheinlichkeit des β -Zählers für β -Teilchen und $\varepsilon_{\beta\gamma_1}$ = Nachweiswahrscheinlichkeit des β -Zählers für γ -Quanten der Energie γ_1 .

BRINMAN² hat in seiner Arbeit gezeigt, daß das Verhältnis R/N_0 stark der Impulsdiskriminierung im γ -Kanal abhängig ist und kleiner 1 werden kann. Die von SPERNOL³ bestimmte Korrektur für seine Meßanordnung hat auch das entgegengesetzte Vorzeichen (integrale Diskriminierung bei 20 keV).

Ähnliche Untersuchungen über den γ -Nachweis im β -Zählrohr hat WOLF⁴ für die einfache $\beta\gamma$ -Ko-

inzidenzmethode, d. h. für eine Anordnung mit dem Präparat zwischen den beiden Nachweisgeräten durchgeführt. Durch sorgfältige Extrapolation der β -Absorptionskurven (und – falls 2 oder mehr γ -Quanten pro Zerfall emittiert werden – auch der Koinzidenzzählraten) konnte er diese Korrektur experimentell bestimmen. Bei vielen Isotopen sind diese Korrekturen klein (siehe Abb. 1 für Al^{28} , V^{52} , Au^{198}), so daß der Fehler der Korrektur die Genauigkeit der Zerfallsrate kaum beeinflußt. Etwas

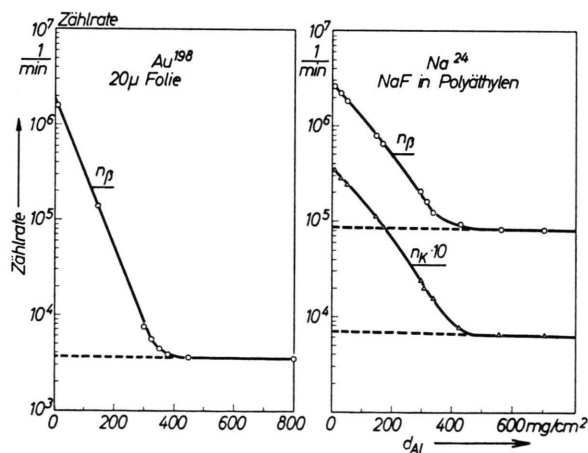


Abb. 1. Verlauf von Absorptionskurven für Au^{198} und Na^{24} . Die Präparate sind etwa 2 cm vom zylinderförmigen β -Zählrohr entfernt (Wandstärke 0,01 mm Al). Die Genauigkeit der Meßwerte ist, falls sie nicht angegeben ist, besser als die Größe der Zeichen (ebenso bei den weiteren Abbildungen).

¹ A. WILLIAMS u. P. J. CAMPION, Intern. J. Appl. Radiation Isotopes 14, 533 [1963].

² G. A. BRINKMAN, Thesis, Amsterdam 1961.

³ A. SPERNOL, E. DEROST u. O. LERCH, EUR 477 e [1964].

⁴ G. WOLF, Nukleonik 2, 255 [1960].



anders verhält es sich bei Isotopen mit $E_\gamma > E_{\beta \max}$ (z. B. Co^{60}), da hier in der Präparatunterlage bzw. im β -Absorber zwischen Präparat und γ -Zählrohr energiereiche COMPTON-Elektronen erzeugt werden, die die Absorptionskurve verfälschen können und so den Fehler bei der Extrapolation vergrößern. Diese Abhängigkeit von der Unterlage zeigt Abb. 2 für zwei wesentlich verschiedene Co^{60} -Präparate.

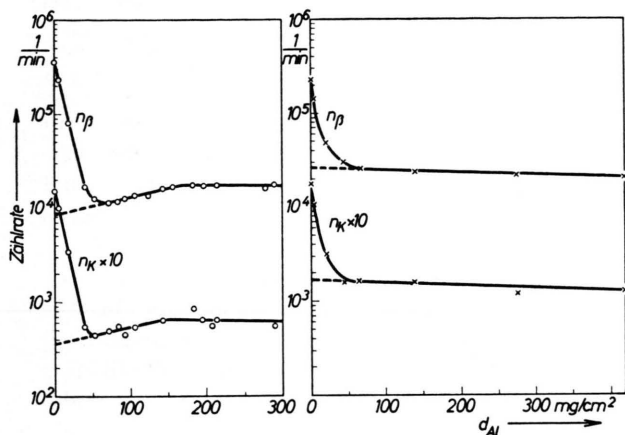


Abb. 2. Absorptionskurven für zwei verschiedene Co^{60} -Präparate, \times Präp. 1 (Co^{60} auf 270 mg/cm^2 dickem Al-Schälchen), \circ Präp. 2 (Co^{60} auf 2,7 mg/cm^2 dicker Al-Folie).

Die von WOLF⁵ für das 4π - β -Zählrohr vorgeschlagene Ermittlung, nämlich mit einem β -Absorber alle von der Strahlungsquelle ausgesandten β -Strahlen zu absorbieren und nur den γ -Untergrund sowie die $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen allein zu messen, führt zu erheblichen Unsicherheiten, da die Verfälschung, welche der β -Absorber seinerseits verursacht (Sekundärelektronenerzeugung), nicht vernachlässigt werden kann (höchstens bei Mn^{54} und Cr^{51}). Wenn das Präparat mit einem genügend starken Absorber bedeckt ist, um alle β -Teilchen zu absorbieren, ist die Wechselwirkung der γ -Strahlung in diesem Absorber von der gleichen Größenordnung wie in der Wand des Zählrohrs.

CAMPION⁶ fand für $\varepsilon_{\beta\gamma}$ bei Co^{60} 1,2%, während unsere Messungen 1,8% ergeben. Die $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen betragen bei Co^{60} mit einem Absorber von 120 $\text{mg}/\text{cm}^2 \sim 1\%$.

Falls man diese Werte auf die Absorberstärke $d=0$ extrapoliert und unter Berücksichtigung eventueller Totzeitverluste⁴ die Meßwerte korrigiert, be-

geht man eine weitere Vernachlässigung. Die von den γ -Quanten erzeugten Elektronen liefern ja nur dann einen eigenen Beitrag zur β -Zählrate n_β , wenn das zugehörige β -Teilchen nicht registriert wird. Für den Grenzfall $\varepsilon_\beta=1$ muß $n_\beta(\gamma)$ verschwinden, es gilt also folgender Zusammenhang:

$$n_\beta(\gamma, \varepsilon_\beta) = n_\beta(\gamma, \varepsilon_\beta=0) \{1 - \varepsilon_\beta\}. \quad (2)$$

Eine Ermittlung von $n_\beta(\gamma)$ bzw. von $\varepsilon_{\beta\gamma}$ ist mit reinen γ -Strahlern (bzw. mit Isotopen, die durch K-Einfang zerfallen, und sehr dünnen Absorbern) möglich. Für das Präparat müßte dann $n_\beta(\gamma, \varepsilon_\beta)$ berechnet werden, die hierbei erreichbare Genauigkeit ist bestenfalls 1%.

Da mit der 4π - β - γ -Koinzidenzmethode jedoch eine höhere Genauigkeit möglich sein sollte, wurden genauere Untersuchungen über die vom Zerfallschema abhängige Korrektur durchgeführt.

2. Bestimmung von $K(\varepsilon)$ für Co^{60}

Außer der Korrektur für zufällige Koinzidenzen und Nulleffekt sind auch bei der 4π - β - γ -Koinzidenzmethode weitere meist sehr kleine Korrekturen notwendig. Man faßt sie üblicherweise in zwei Faktoren zusammen³: Zählratenabhängige und zählraten-unabhängige Korrekturen [K_d und $K(\varepsilon)$].

Falls die Koinzidentzenzeit τ_K kleiner als die Totzeit des β - bzw. γ -Kanals (τ_β bzw. τ_γ) und $n_K \tau \ll 1$ ist, so ergibt sich

$$K_d = 1 + \tau n_K \quad \text{mit} \quad \tau = \begin{cases} \tau_\gamma & \text{falls } \tau_\gamma > \tau_\beta \\ \tau_\beta & \text{falls } \tau_\beta > \tau_\gamma \end{cases}$$

Im Korrekturfaktor $K(\varepsilon)$ werden alle Korrekturen zusammengefaßt, die vom speziellen Isotop und den jeweiligen Nachweisgeräten abhängen (Konversion von γ -Quanten, Verzweungsverhältnis des Zerfalls, γ -Nachweis im β -Zählrohr). Aus diesem Grund sollen die für die folgenden Untersuchungen benutzten Nachweisgeräte kurz beschrieben werden. Eine ausführliche Darstellung der gesamten Meßanordnung erfolgte bereits an anderer Stelle⁷.

Der Aufbau des 4π - β -Zählrohrs und die Anordnung der γ -Zählrohre ist in Abb. 3 dargestellt. Die Zählrohre arbeiten als Methandurchfluß-Proportionalzählrohre bei Normaldruck mit einem Plateau

⁵ G. WOLF, Atomkernenergie 8, 353 [1963].

⁶ P. J. CAMPION, Intern. J. Appl. Radiation Isotopes 4, 232 [1959].

⁷ W. KÖHLER u. K. KNOPF, FRM-Bericht Nr. 63 [1965].

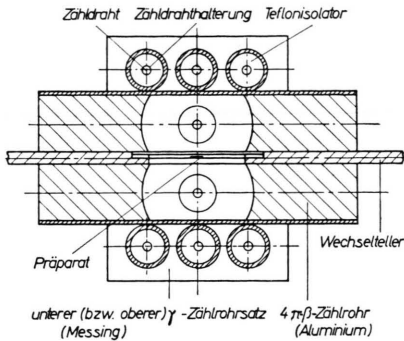


Abb. 3. Schnitt durch die Meßanordnung für 4π - β - γ -Koinzidenzmethode.

von 0,2%/100 V bzw. 0,7%/100 V bei einer Länge von 600 V. Die Wand des β -Zählrohrs ist aus Aluminium, während für die γ -Zählrohre Messing verwendet wurde. Die beiden Hälften des β -Zählrohrs sind durch eine drehbare Scheibe mit einer Aussparung $40 \times 40 \text{ mm}^2$ getrennt, in der sich das Präparat auf einer dünnen Unterlage befindet. Je nach Art der Lösung kann als Unterlage eine dünne Al-Folie ($0,27 \text{ mg/cm}^2$) oder Al-bedampfter Kunststoff oder Glimmer dienen. Bei den bereits erwähnten Absorptionsmessungen wurden stärkere Al-Folien verwendet ($2,7 \text{ mg/cm}^2$; Schutz gegen etwaige Beschädigungen während des Absorberwechsels).

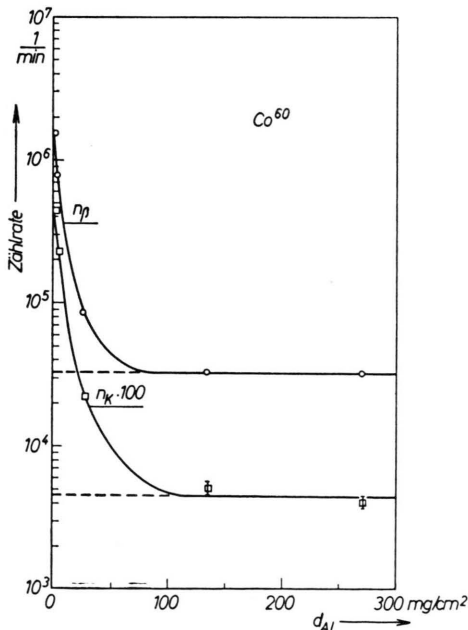


Abb. 4. Änderung der β - und der Koinzidenzzählrate in Abhängigkeit von der Absorberstärke (4π - β - γ -Anordnung) bei Co^{60} auf $2,7 \text{ mg/cm}^2$ Al-Unterlage.

Die gemessenen Änderungen der β -Zählrate und der Koinzidenzzählrate sind in Abb. 4 wiedergegeben. Aus technischen Gründen konnten die Werte nicht bei noch höheren Absorberstärken bestimmt werden. Die letzten Meßpunkte liegen aber bereits oberhalb der maximalen β -Reichweite.

Die Verwendung der 4π -Geometrie beim β -Nachweis und die Gln. (1) und (2) legen eine Extrapolation $\epsilon_\beta \rightarrow 1$ nahe (ideales 4π -Zählrohr). Bei β - γ -Koinzidenzmessungen ergibt sich ϵ_β zu:

$$\epsilon_\beta = n_K / [n_\gamma (1 - n_\beta \tau_\beta)] . \quad (3)$$

In Abb. 5 sind zwei derartige Extrapolationen für Co^{60} -Präparate wiedergegeben. (Die ebenfalls angegebenen Meßpunkte für Sc^{46} werden in Abschnitt 3 diskutiert.) Die Meßpunkte für die Präparate liegen oberhalb von $\epsilon_\beta \cong 0,2$ auf einer Geraden mit der richtigen Neigung (45°). Bei einer derartigen Darstellung ist der Verlauf der Extrapolation eine Gerade mit bekannter Neigung, die Fehlermöglichkeiten sind daher sehr klein. Durch eine Multiplikation von (3) mit R sieht man sofort, daß auch die Zählverluste richtig berücksichtigt sind.

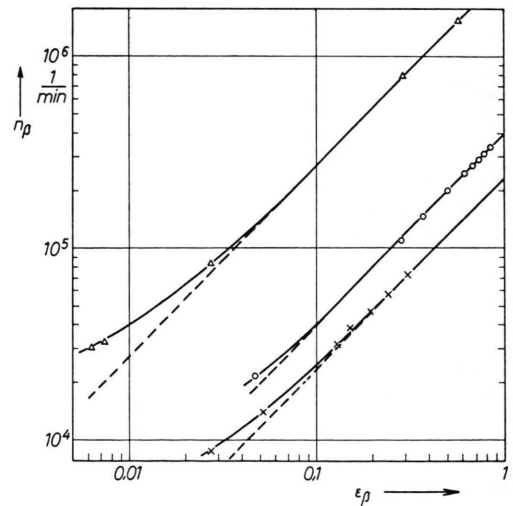


Abb. 5. Extrapolation $\epsilon_\beta \rightarrow 1$ zur Ermittlung von N_0 . Δ Co^{60} auf $2,7 \text{ mg/cm}^2$ Al-Unterlage; \circ Co^{60} auf $1,1 \text{ mg/cm}^2$ Al-Unterlage; \times Sc^{46} ; Ti-Folie $11,2 \text{ mg/cm}^2$.

Nach diesen Messungen muß für diese Präparate $K(\epsilon)$ unter 0,3% liegen. Wir haben daher noch eine andere Extrapolation zur genaueren Bestimmung von $K(\epsilon)$ durchgeführt.

Für verschiedene Präparate wurde R also $n_\beta \cdot n_\gamma / n_K$ (korrigiert auf Nulleffekt und zufällige Koinzidenzen) gegen ϵ_β aufgetragen und durch Extrapolation

$\varepsilon_\beta \rightarrow 1$ der Wert von N_0 bestimmt. Für eine einheitliche Darstellung der verschiedenen Meßreihen ist in Abb. 6 $R/N_0 = 1/K(\varepsilon)$ gegen ε_β aufgetragen ($K_d - 1$ ist kleiner als 10^{-4}).

Für das Co^{60} -Präparat ergibt sich

$$K(\varepsilon_\beta = 0,84) = 1,0010 \pm 0,0005.$$

In Abb. 6 ist für einen Vergleich die von SPERNOL³ ermittelte Korrektur eingetragen. Diese Kurve ver-

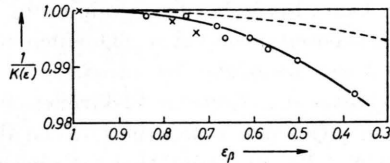


Abb. 6. Extrapolation von $R/N_0 = 1/K(\varepsilon)$ für $\varepsilon_\beta \rightarrow 1$;
○ Co^{60} , × Na^{24} . — — — — Korrektur nach ³.

läuft wesentlich flacher, die Korrektur ist aber für $\varepsilon_\beta > 0,75$ gleich. Der Unterschied bei kleinen ε_β -Werten ist unwesentlich, der Verlauf in diesem Gebiet hängt stark vom Aufbau des Zählrohrs, Anordnung der Absorber etc. ab.

Der Verlauf der Extrapolation ist bei dieser Darstellung stark gekrümmt. Durch eine falsche Anpassung wären Fehler möglich. Es wurde daher noch eine Extrapolation der gleichen Meßwerte in Analogie zu der Darstellung von CAMPION und WILLIAMS, also R gegen $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta$ durchgeführt (Abb. 7). Die Meßpunkte liegen gut auf einer Geraden. Für das Co^{60} -Präparat ergibt sich nach dieser Methode

$$K(\varepsilon_\beta = 0,84) = 1,0012 \pm 0,0005.$$

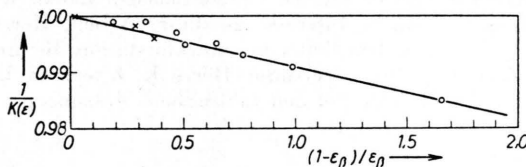


Abb. 7. Extrapolation von $R/N_0 = 1/K(\varepsilon)$ für $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta \rightarrow 0$,
○ Co^{60} , × Na^{24} .

3. Übertragung auf andere Präparate und Isotope

Eine Verwendung der $K(\varepsilon)$ -Werte von Abb. 6 oder Abb. 7 für andere Co^{60} -Präparate ist durchaus möglich, da der Verlauf in Abb. 7 folgende Darstel-

lung in dem angegebenen Bereich nahelegt.

$$\frac{n_\beta \cdot n_\gamma}{n_K} = N_0 \left\{ 1 - \left(\frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \right) \varepsilon_{\beta\gamma} \right\}, \quad (4)$$

wobei $\varepsilon_{\beta\gamma}$ die γ -Nachweiswahrscheinlichkeit des Al-Zählrohrs ist. Für die mittlere γ -Energie von Co^{60} (1,25 MeV) ergab sich $\varepsilon_{\beta\gamma} = 5,7 \cdot 10^{-3}$, was relativ gut mit dem Literaturwert⁸ für die Zählrohrempfindlichkeit eines Al-Zählrohrs übereinstimmt

$$\varepsilon_\gamma = 7 \cdot 10^{-3}.$$

In Abb. 5 sind bereits einige Meßpunkte für Sc^{46} -Präparate eingetragen. Diese Präparate waren im Reaktor bestrahlte Titanfolien (0,003'' dick bzw. 11,2 mg/cm²), wie sie zur Bestimmung der integralen Flußdichte verwendet werden⁹. Nach einer Wartezeit von etwa 50 Tagen ist im wesentlichen nur Sc^{46} enthalten. Das Zerfallsschema von Sc^{46} ist dem von Co^{60} sehr ähnlich. Mit diesen Präparaten konnte nur ein ε_β von maximal 0,32 erreicht werden, eine Extrapolation nach Abb. 6 oder Abb. 7 ist daher nicht möglich.

Auch die Bestimmung von N_0 nach Abb. 5 ist nicht eindeutig, da die Meßpunkte bei den ε_β -Werten enden, wo bei Co^{60} die Punkte beginnen auf einer Geraden zu liegen. Die maximale Unsicherheit bei der Extrapolation beträgt $\sim 2\%$.

Zur Abschätzung des maximalen Fehlers wurde $K(\varepsilon)$ von Co^{60} für gleiches ε_β ermittelt (die gleichen ε_β -Werte werden aber in beiden Fällen auf verschiedene Weise erzeugt). Es ergibt sich nach

$$\text{Abb. 6: } K(\varepsilon_\beta = 0,32) = 1,017 \pm 0,005,$$

$$\text{Abb. 7: } K(\varepsilon_\beta = 0,32) = 1,016 \pm 0,005.$$

Bei den Meßwerten der Titanfolien wurde daher ein Korrekturfaktor 1,016 angebracht.

Vergleichsmessungen mit der einfachen $\beta\gamma$ -Koinzidenzmethode zeigten Abweichungen von $6^{0/00}$ (± 7). Für die Zerfallsrate kann daher eine Genauigkeit von 1% angenommen werden. Der Vorteil der $4\pi\beta\gamma$ -Methode auch für diese relativ dicken Präparate liegt darin, daß bei gleichem ε_γ wie bei der einfachen Koinzidenzmeßanordnung⁴ ein wesentlich höheres ε_β (0,32 gegenüber 0,04) erreicht wird und so wesentlich kürzere Meßzeiten für gleiche statistische Schwankung¹⁰ erforderlich sind.

Ein weiteres Isotop mit harter γ -Strahlung und der Möglichkeit von $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen ist Na^{24} . In

⁸ H. MAIER-LEIBNITZ, Z. Naturforsch. 1, 244 [1946].

⁹ W. KÖHLER, Nukleonik 6, 405 [1964].

¹⁰ A. GANDY, Preparation et etallonnage des sources radioactives de reference, IAEA-Review Serie No. 14, Wien 1961.

Abb. 7 sind einige Meßpunkte eingetragen. Der Wert von $K(\varepsilon)$ liegt in der gleichen Größenordnung wie beim Co^{60} . Infolge der härteren β -Strahlung sind auch größere ε_β -Werte (also näher 1) möglich.

4. Diskussion der Ergebnisse

Die ermittelten Korrekturen $K(\varepsilon)$ sind bei Co^{60} , Na^{24} für ε_β -Werte größer 0,75 kleiner als 2‰, eine Ermittlung der Zerfallsraten ist daher mit einer Genauigkeit von 0,5% oder besser möglich. Bei Sc^{46}

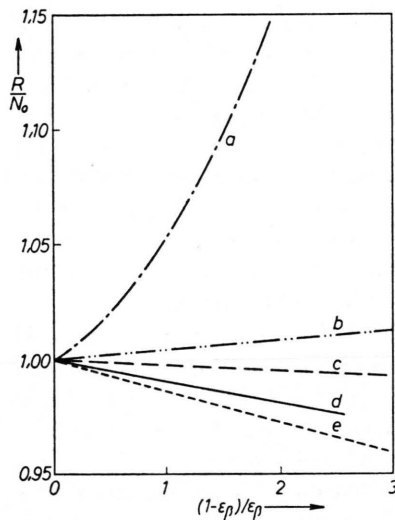


Abb. 8. Das Verhältnis der Zählrate $n_\beta \cdot n_\gamma / n_K = R$ zur Zerfallsrate N_0 für Co^{60} in verschiedenen Meßanordnungen.

- (a) ———— Meßwerte von BRINKMAN² (γ -Diskriminierung bei ~ 600 keV);
- (b) Meßwerte von CAMPION u. WILLIAMS¹ (nur 1,33 MeV Energie wird gezählt);
- (c) ———— Meßwerte von SPERNOL, DEROST u. LERCH³
- (d) ———— diese Arbeit (Messing-Proportionalzählrohr);
- (e) - - - - - Meßwerte von BRINKMAN² (γ -Diskriminierung bei ~ 100 keV).

ist die Korrektur von gleicher Größenordnung. Die Messungen zeigten, daß eine Übernahme einer Korrektur bzw. einer Korrekturformel [z. B. Gl. (1) nach¹ oder Extrapolation der Restzählrate bei dicken Absorbern nach⁵] zu erheblichen Fehlern führen kann. In Abb. 8 sind die Meßwerte anderer Autoren und die dieser Arbeit zusammengestellt. Aus dem Vergleich der beiden Meßkurven von BRINKMAN² sieht man, daß je nach Diskriminierung im γ -Kanal das Verhältnis R/N_0 größer oder kleiner 1 sein kann. Bei hoher Diskriminierung werden Impulse von bereits gestreuten γ -Quanten nicht gezählt und somit Koinzidenzen zwischen im β -Zählrohr nachgewiesenen COMPTON-Elektronen und den zugehörigen γ -Quanten unterdrückt, R ist demnach größer als N_0 . Bei niedriger Diskriminierung werden dagegen $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen zugelassen, R ist kleiner als N_0 . Unsere Meßwerte für Messingzählrohre liegen zwischen den Kurven von BRINKMAN. In einem Messing-Proportionalzählrohr werden die niederenergetischen (gestreuten) γ -Quanten nicht so gut nachgewiesen wie im Szintillationszähler (relativ zu den ungestreuten, hochenergetischen γ -Quanten). Bei der Abweichung von R/N_0 vom Wert 1 spielt aber auch die Geometrie der Anordnung eine wesentliche Rolle. Die Werte von WILLIAMS und CAMPION¹ liegen unter den Werten von BRINKMAN, obwohl WILLIAMS und CAMPION nur den Photopeak des hochenergetischen Co^{60} -Überganges verwenden. Ebenso liegen die Werte von SPERNOL³ für alle Werte von $(1 - \varepsilon_\beta)/\varepsilon_\beta$ näher bei 1, obwohl SPERNOL bei etwa 20 keV diskriminierte.

Herrn Professor Dr. H. MAIER-LEIBNITZ danke ich für das freundliche Interesse an dieser Arbeit, Herrn Dr. L. KOESTER, dem Leiter der Reaktorstation, für die Ermöglichung dieser Versuche. Herrn K. KNOPF danke ich für die Mithilfe bei den zahlreichen Messungen.