

Die approbierte Originalversion dieser Diplom-/Masterarbeit ist an der Hauptbibliothek der Technischen Universität Wien aufgestellt (<http://www.ub.tuwien.ac.at>).

The approved original version of this diploma or master thesis is available at the main library of the Vienna University of Technology (<http://www.ub.tuwien.ac.at/englweb/>).

Unterschrift Betreuer



**TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
WIEN**
Vienna University of Technology

Diplomarbeit

Zur Erlangung des akademischen Grades

Diplom-Ingenieur

Aufbau und Validierung eines Messplatzes zur Tritiumanalytik

ausgeführt am

Atominstitut
der Technischen Universität Wien

unter der Anleitung von HR Univ. Prof. Dipl.-Ing. Dr. Franz Josef Maringer

durch

Fabian Rechberger, BSc.
Beheimgasse 53/15
1170 Wien

Datum

Unterschrift Verfasser

Erklärung zur Verfassung der Arbeit

Fabian Rechberger
Beheimgasse 53
1170 Wien

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst habe, dass ich die verwendeten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben habe und dass ich die Stellen der Arbeit - einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen -, die anderen Werken oder dem Internet im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, auf jeden Fall unter Angabe der Quelle als Entlehnung kenntlich gemacht habe.

Wien, am

Fabian Rechberger

Zusammenfassung

Das Ziel dieser Arbeit war es einerseits einen Flüssigszintillationsmessplatz für radioökologische Problemstellungen aufzubauen, um low-level Tritiummessungen durchführen zu können und andererseits die Schaffung der messtechnischen und methodischen Basis für die Verwendung des Messplatzes durch eine akkreditierte Prüfstelle.

Einen wesentlichen Teil bildet dabei die Literaturrecherche und die Auswertung des aktuellen Wissensstandes der LSC-Technologie, sowie das Testen von potentiellen Messgeräten. Es wurden dabei drei verschiedene Messgeräte und unterschiedliche Konfigurationen bezüglich Cocktail, Probenmenge und Messdauer getestet. Die verwendeten Messgeräte sind für ein Probenvolumen von 20 ml konfiguriert und somit stellte sich unter anderem die Frage, welche Cocktail-Probenmenge-Zusammensetzung die beste ist. Die untersuchten Messgeräte wurden im Low-Level Counting Laboratory (LLCL) Arsenal aufgebaut.

Es wurden insgesamt vier Messgeräte verwendet wobei eines, der Triathler, für Low-Level Tritiummessungen nur bedingt geeignet ist und bei einem anderen, während den Arbeiten, die PMT (photomultiplier tubes) ausgefallen sind, sodass es ersetzt werden musste. Das vom Atominstitut der TU-Wien (ATI) zur Verfügung gestellte Messgerät wurde zur stichprobenartigen Verifizierung der Messergebnisse herangezogen, um Fehler im Messgerät bei der Signalverarbeitung eliminieren zu können.

Gemessen wurden unterschiedliche Proben wie das Tankwasser des Versuchsreaktors an der TU-Wien, oder Proben aus ausgewählten Wasserwerken in Österreich zur Trinkwasserversorgung. Weiters wurde ein Versuch unternommen die Luft in einigen Räumen am ATI mit Hilfe von Trockeneis zu verflüssigen, um so die Aktivitätskonzentration zu ermitteln. Die Messergebnisse wurden über einen Ringvergleich der IAEA validiert.

Die Messproben der ausgewählten Wasserwerke, bezüglich der radioökologischen Untersuchungen auf 3H , erfüllten die Anforderungen der Trinkwasserverordnung. Es konnte in keinem der ausgewählten Wasserwerke eine erhöhte Tritiumaktivitätskonzentration festgestellt werden.

Vor allem in Zukunft könnte der Tritiumanalytik mittels Flüssigszintillation wieder große Bedeutung zukommen, da Tritium als Brennstoff in Kernfusionsreaktoren eingesetzt wird. Sollte der Durchbruch in dieser Technologie gelingen ist eine permanente Überwachung der Umgebung solcher Kraftwerke unumgänglich, um eine Kontamination der Umwelt rechtzeitig zu erkennen.

Abstract

The ambition of this work was to set up a Liquid-Scintillation Measuring System for radio-ecological purposes. The main goal of this framework was to be able to measure Tritium in the low-level region and to form the measuring and methodical basics for an accredited testing laboratory. Several measurement devices and configurations were tested in order to find the ideal cocktail-mixture, sample quantity and measuring time.

Four measurement-systems were tested of which one, the Triathler, was inapplicable for low-level measurements. One device had to be replaced because the PMT (photomultiplier tubes) stopped working during the measuring process. The results of the latest device were verified by the measurement device by the Institute of Atomic and Subatomic Physics (ATI) of the Vienna University of Technology.

Liquid samples from the testing-reactor tank of the University, drinking water supply stations as well as some samples of the Danube have also been measured. Furthermore, efforts have been made to liquefy the air in some rooms of the ATI with dry ice to determine the activity concentration of Tritium in these rooms. All the results were validated via a world wide proficiency test by the IAEA.

The results of the radio-ecological measurements in the investigated water supply stations fulfilled the requirements of the Austrian Drinking Water Regulations. In none of the elected stations Tritium could be detected.

In the future Liquid-Scintillation technology could become more important because Tritium is assembled as fuel in nuclear fusion reactors. If the breakthrough is reached in this technology it will become inevitable to install permanent monitoring systems to secure the environment.

Danksagung

Ich möchte mich an erster Stelle bei dir, Franz-Josef, bedanken, dass du mir das selbständige Schreiben einer Diplomarbeit ermöglicht hast und mich auf meinem Weg unterstützt hast. Ganz besonders möchte ich mich bei meinen Arbeitskollegen Andreas, Claudia, Michael und Michi bedanken, die mich zu jeder Zeit unterstützt, beraten und in schwierigen Zeiten aufgebaut haben.

Ein besonderer Dank gilt Georg Steinhauser, Johannes Sterba und Viktoria Schauer vom Atominstitut der TU Wien, die mir Messgeräte zur Verfügung gestellt haben und mich bei meinen Vorhaben mit guten Ratschlägen unterstützten.

Für den technischen Support bei den Messgeräten möchte ich mich bei Herrn Roedl bedanken. Letztendlich konnten sämtliche kleinere und größere Schwierigkeiten aus dem Weg geräumt werden.

Mein Studium und somit das Schreiben dieser Arbeit erst ermöglicht haben mir meine Eltern Johanna und Johann. Danke, dass ihr immer an mich geglaubt habt!

Marlis, Lexi, Andreas und David- vielen Dank für Alles! Ohne euch hätte ich es nicht geschafft!

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	10
2	Tritium	12
2.1	Physikalische Eigenschaften	12
2.1.1	Tritiumproduktion	13
2.1.2	Abfallmanagement und Lagerung	15
2.2	Einfluss von Tritium auf die Gesundheit	16
3	Grundlagen	18
3.1	Kernphysikalische Grundlagen	18
3.2	Radioaktivität	19
3.2.1	Radioaktiver Zerfall	19
3.2.2	Natürliche Zerfallsreihen	20
3.2.3	Mutter-Tochter Systeme	20
3.2.4	Strahlenschutz und Dosimetrie	22
3.3	Messunsicherheiten, Erkennungs- und Nachweisgrenzen	24
3.3.1	Messungen und Unsicherheiten	24
3.3.2	Messergebnisse und Nachweisbarkeit	25
3.4	Radioaktive Zerfallsarten	26
3.4.1	Alpha-Zerfall	27
3.4.2	Beta-Zerfall	27
3.4.3	Elektroneneinfang	29
3.4.4	Gamma-Emission und Isomerübergänge	29
3.4.5	Innere Konversion	29
3.4.6	Spontanspaltung	29
3.4.7	Protonenzerfall	30
3.4.8	Verzögerte Zerfälle	30
3.5	Kernfusion	30
3.5.1	Iter	33
3.5.2	Sicherheit	35
3.5.3	Ausblick	35

4	Evaluierung der Literatur und Aufbau eines LSC Messplatzes	36
4.1	Szintillationstechnologie	38
4.2	Szintillationscocktails	41
4.3	Anreicherung	44
4.4	Quenching	44
4.5	Messmethoden	45
4.6	Probenaufbereitung	47
4.7	Verarbeitung	48
4.8	Messort und Messgeräte	49
4.8.1	Triathler	50
4.8.2	Tricarb	50
4.8.2.1	Pulsanalysator	52
4.8.2.2	Spektrenanalysator	53
4.8.2.3	Transformed Spectral Index (tSIE)	54
5	Messergebnisse, Validierung und Diskussion	56
5.1	Messung	56
5.2	Berechnung der Messergebnisse	58
5.2.1	Efficiency	59
5.2.2	Aufnahme einer Quenchkurve	59
5.2.3	Ergebnisberechnung	62
5.2.4	Unsicherheit	63
5.3	Ergebnisse ATI	63
5.4	Trinkwasser	65
5.5	IAEA Ringvergleich	66
6	Konklusion und Ausblick	67
	Anhang	72
	A IRPA 2014	73
	B Protokolleinstellungen Tricarb 2100	74

Abbildungsverzeichnis

1	1
2	^3H -Zerfallsschema	13
3	Laufendes Gleichgewicht	21
4	Säkulares Gleichgewicht	22
5	Fehlendes Gleichgewicht	22
6	Spektrum eines β^- -Zerfalls	28
7	Schema eines Kernfusionskraftwerks	33
8	Schema des Tokamak Fusionsreaktors ITER	34
9	Kollisionsprozess in einer Probe	39
10	PMT (photomultiplier tube)	40
11	Signalverarbeitung eines LSC-Messgerätes	41
12	DIPN Strukturformel	43
13	<i>Ultima Gold XR</i> Cocktail	43
14	Quencheffekt	45
15	Pipetten	47
16	Vials	47
17	Messraum	49
18	Tricarb 2100	51
19	Probenkassette	58
20	Aufgenommene Quenchkurve	60
21	Quenchkurve	61
22	Polynominterpolation der Messwerte	62
23	ATI Grundriss	64
24	Quantulus	68
25	Hidex 300 SL	69
26	Startbildschirm	75
27	Protokolleinstellungen 1	76
28	Protokolleinstellungen 2	77
29	Protokolleinstellungen 3	77
30	Exemplarischer Ausdruck	78

Tabellenverzeichnis

1	Physikalische Daten von 3H	13
2	Tritiumproduktionsraten	14
3	Tritiumemissionswerte	14
4	Physikalische Fundamentalgrößen	19
5	Natürliche Zerfallsreihen	20
6	Radionuklidübersicht für LSC	37
7	Flammpunkte einiger Flüssigkeiten in der Luft	42
8	Auswertemethoden des Tricarb	46
9	Cocktailkonzentrationen	48
10	TR-LSC Leistung	52
11	System Normalisierung	57
12	Messparameter	58
13	Parameter der Quenchkurve	60
14	Leerwertmessung	65
15	Ergebnisse der Trinkwasserproben	65
16	IAEA Ringvergleich	66

Kapitel 1

Einleitung

Tritium ist ein radioaktives Wasserstoffisotop mit zwei Neutronen und einer Halbwertszeit von 12,33 Jahren [2]. Es wird auf natürliche Weise in der Atmosphäre durch Spallation infolge der kosmischen Strahlung gebildet. Weiters ist es ein Nebenprodukt in Kernkraftwerken und Fusionsanlagen.

Da Tritium ein β -Strahler ist kann es zu gesundheitlichen Beeinträchtigungen kommen, vor allem wenn es inkorporiert wird. In den Fünfzigerjahren kam es in der Atmosphäre zu einer stark erhöhten Tritiumbelastung aufgrund von Kernwaffentests, die jedoch dank des "Nuclear Test Ban Treaty" (Vertrag zum Verbot von Kernwaffentests unter Wasser, im Weltall und in der Atmosphäre) wieder auf das natürliche Niveau abgesunken ist.

Die Messung von Tritium mittels Flüssigszintillation kann vor allem in den nächsten Jahrzehnten wieder interessant werden, da intensiv an der Kernfusion geforscht wird und ein Durchbruch im Laufe der nächsten 20 Jahre erwartet wird. Sofern Kernfusion zivil nutzbar wird, muss man sich also auch über die radioaktive Belastung von Mensch und Natur diesbezüglich Gedanken machen. Aufgrund der Tatsache, dass die Trinkwasserversorgung größtenteils über das Grundwasser abläuft sollte dieses im Umkreis diverser kerntechnischer Anlagen überwacht werden, um das Ökosystem und letztendlich den Menschen zu schützen.

Tritium ist vor allem aufgrund seiner großen Ähnlichkeit mit Wasserstoff ein sehr interessantes Isotop. Aufgrund dieser Tatsache besitzt Tritium nahezu uneingeschränkte Mobilität in der Umwelt. Tritium kann vor allem dann für den Menschen gefährlich werden, wenn es in größeren Konzentrationen in die Grundwasserversorgung gelangt und inkorporiert wird. Von tritiumhaltigen Niederschlag geht relativ wenig Gefahr aus, da es der Körper kaum über die Haut aufnimmt (vergleiche Kapitel 2.2). Tritium wird, wie bereits erwähnt, künstlich in Nuklearanlagen hergestellt und kann somit bei Stör- oder Unfällen in die Umwelt gelangen. Auf die weiteren physikalischen Eigenschaften von Tritium wird in Kapitel 2.1 ausführlicher eingegangen. Um eine Verunreinigung von Ökosystemen oder Trinkwasserreservoirs zu verhindern ist es wichtig die Umgebung der Anlagen zu überwachen. Eine besondere Bedeutung hat Tritium in der Kernfusionstechnik, da es hier als Brennstoff eingesetzt wird.

Das Grundwissen für Radioaktivitätsmessungen, sowie der Umgang mit radioaktiver Strahlung, wird in Kapitel 3 zusammengefasst und soll dem Leser die Basis der Nuklearphysik näher bringen. Darauf aufbauend beschäftigt sich diese Arbeit mit den unterschiedlichen Messverfahren für Tritium, wobei das Hauptaugenmerk der Flüssigszintillation gilt. Diese kostengünstige und effiziente Methode wurde ausgewählt, um diverse Flüssigproben auf Tritium zu untersuchen.

Kapitel 4 behandelt die technischen Details zur Flüssigszintillation, sowie die Einsatzgebiete dieser Messmethode. Weiters werden mehrere Messgeräte und Konfigurationen vorgestellt. Das schlussendlich ausgewählte Messgerät wurde in einem von externer Strahlung abgeschirmten speziellen Messraum aufgebaut (siehe Kapitel 4). Darauf aufbauend beschäftigt sich diese Arbeit mit der Probenaufbereitung und -Handhabung, sowie mit der Auswertung der Messergebnisse und deren Interpretation.

Aufgrund der kritischen Situation bezüglich Energiequellen, Umweltverschmutzung und Ressourcen besteht seit einigen Jahrzehnten gesteigertes Interesse an alternativen Energiequellen. Man weiß heute, dass die fossilen Energieträger nur begrenzt verfügbar sind und somit alternative und effizientere Energiesysteme entwickelt werden müssen. Seit geraumer Zeit wird intensiv an der Kernfusion geforscht und man verspricht sich in den nächsten 20 Jahren einen entscheidenden Durchbruch in Richtung kommerzieller Nutzung. Sollte dieser Fall eintreten, wird Tritium als Brennstoff eingesetzt und die Tritiumüberwachung somit ein wesentlicher Bestandteil dieser Technologie werden.

Die Messungen und Untersuchungen zu dieser Arbeit wurden im Low-Level Counting Laboratory Arsenal durchgeführt.

Kapitel 2

Tritium

Im folgenden Kapitel werden die physikalischen Eigenschaften von Tritium, die Entstehung beziehungsweise die Produktion, sowie der Einfluss des einzigen radioaktiven Wasserstoffisotops auf die Gesundheit behandelt.

2.1 Physikalische Eigenschaften

Tritium (3H beziehungsweise T), das 1934 entdeckt wurde, ist ein radioaktives Wasserstoffisotop mit einem Proton (Wasserstoff) und zwei Neutronen. Mit einer Halbwertszeit von 12,3 Jahren zerfällt es über einen β^- -Zerfall (siehe Kapitel 3.4) zu Helium (3He), wobei das Elektron eine Maximalenergie von 18,6 keV hat und durchschnittlich mit 5,7 keV emittiert wird (Abb. 2)[20]. Für die Tritiumvorkommen gibt es drei Hauptgründe. 3H wird auf natürliche Weise in der oberen Atmosphäre durch kosmische Strahlung, welche einerseits Spallation von Nukliden auslöst und andererseits Teilcheneinfangreaktionen mit Stick- und Sauerstoff verursacht, produziert. Eine nicht unerhebliche Menge an Tritium entstand in den Fünfzigerjahren aufgrund von Nuklearwaffentests in der Atmosphäre. Weiters wird 3H laufend in Nuklearanlagen (Kernkraftwerke, Anreicherungsanlagen, etc.) produziert.

Nach der Ratifizierung des sogenannten "Nuclear Test Ban Treaty (NTBT-Vertrag zum Verbot von Kernwaffentests unter Wasser, im Weltall und in der Atmosphäre)" 1963, sank der Tritiumgehalt wieder kontinuierlich ab, da somit keines nachproduziert wurde und das vorhandene 3H aufgrund seiner eher kurzen Halbwertszeit relativ rasch zerfällt [6]. Aufgrund der Tatsache, dass seit dem NTBT bereits vier bis fünf Halbwertszeiten verstrichen sind, ist der aktuelle Tritiumgehalt quasi wieder auf dem natürlichen Level [36].

Neben dem stabilen Wasserstoff 1H , das 99,9 % des in der Natur vorkommenden Wasserstoffisotope ausmacht, existiert noch das ebenfalls stabile Deuterium (2H beziehungsweise D), das lediglich 0,02 % ausmacht. Das radioaktive Wasserstoffisotop Tritium kommt natürlich nur mit 10^{-16} % vor, der Rest wird künstlich hergestellt [10].

Die physikalischen Eigenschaften von Tritium sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

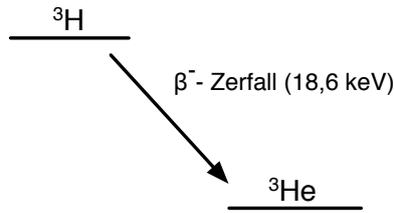


Abb. 1: ${}^3\text{H}$ -Zerfallsschema

Tabelle 1: Physikalische Daten von ${}^3\text{H}$ [37]

Zerfallsart	β^- (zu 100%)
Maximalenergie	18,6 keV
Durchschnittliche Emissionsenergie	5,7 keV
Reichweite in Luft	6 mm
Reichweite in Wasser	0,006 mm
Halbwertszeit	12,3 Jahre
Biologische Halbwertszeit	10-12 Tage
Spezifische Aktivität	357 TBq/g maximal

2.1.1 Tritiumproduktion

Tritium wird permanent in der Nuklearindustrie, beispielsweise im Regelbetrieb von Kernkraftwerken, bei der Wiederaufbereitung von Brennelementen und in der Isotopenproduktion hergestellt. Generell gibt es für die jährliche Emission von flüssigem und gasförmigem Tritium Grenzwerte, welche nicht überschritten werden dürfen. Dadurch ist eine ständige Überwachung der Umwelt unumgänglich [15].

Die jährliche Tritiumproduktion beträgt zwischen 0,15 und 0,20 kg, wobei die Tritiumproduktionsraten bei unterschiedlichen Reaktortypen variieren (siehe Tabelle 2). Ein Siedewasserreaktor produziert deutlich mehr Tritium, welches mit dem Abwasser in geringen Mengen in die Umwelt abgeleitet wird, als ein Druckwasserreaktor. Gasgekühlte Reaktoren, die vor allem in Großbritannien in Betrieb sind, produzieren in etwa das 10-fache eines Siedewasserreaktors. Schwerwasserreaktoren setzen als Kühlmittel D_2O (Schweres Wasser) ein, aus welchem Tritium aus Neutroneneinfang entsteht. In einem Schwerwasserreaktor wird pro Jahr zirka 1g Tritium im Kühlwasser produziert. Dies entspricht etwa dem 100-fachen eines Siedewasserreaktors. Sicherheitsdatenblätter über den geplanten Kernfusionsreaktor ITER (Südfrankreich) prophezeien eine Tritiummenge von zirka 5 g pro Jahr, das an die Umwelt abgegeben wird.

Diese freigelassenen Mengen an Tritium werden kaum Einfluss auf die Ökologie haben, da sie im Vergleich zur weltweiten Tritiumproduktion (natürlich und künstlich) eher gering sind. Problematisch könnten allerdings die Abfallhandhabung und etwaige Unfälle sein. Im Falle eines Unfalls würden die Werte für freigesetztes T drastisch steigen. Dabei würde das Tritium in

Form von HTO , das dieselbe Struktur wie H_2O hat, in erster Linie inhaliert werden und sich in weiterer Folge (im Falle von Niederschlag einer kontaminierten Wolke) in der Umwelt ablagern [12]. Darum ist es wichtig den Tritiumausstoß in der Nähe von Kernkraftwerken zu überwachen. Tritium wird in Kernreaktoren über Neutronenaktivierung von 2H , 3He , 6Li und ^{10}B produziert und lagert sich zum Beispiel im Kühlwasser, den Regelstäben oder den Brennelementen ab. Tabelle 2 gibt einen Überblick über die Tritiumproduktionsraten und Tabelle 3 über die Emissionen an die Umwelt, der am meisten verwendeten Reaktortypen.

Das Tritium im Brennstoff wird nicht an die Umwelt abgegeben und kann nur in Wiederaufbereitungsanlagen entweichen. Es darf davon ausgegangen werden, dass ein Großteil des künstlich hergestellten Tritiums aus Kernreaktoren zum Beispiel im Kühlwasser, verbrauchten Filterpatronen, radioaktivem Abfall, Reaktorgasen, dauerhaft bestrahlten Stahlkonstruktionen oder auch in Reaktorkondensaten entsteht. Um den Tritiumausstoß in Kernreaktoren zu verringern, könnten in den Brennstäben bindende Mittel eingesetzt werden, welche ein Entweichen verhindern würden.

Einige Maßnahmen zur Tritiumreduktion in Kernkraftwerken wären zum Beispiel die Verbesserung der Brennstäbe, um ein Bersten der Hüllrohre zu verhindern. Um das 3H direkt in den Brennstäben zu halten, wäre eine Verbesserung des Hüllmaterials notwendig (Zirkaloy statt rostfreiem Stahl) und auch die permanente Überwachung der Kühlmittelchemie ist notwendig, um auf Verschmutzungen sofort reagieren zu können.

Aus diesen Gründen ist eine permanente und redundante Überwachung des Tritiumgehalts in Kernreaktoren wichtig, um eine Verschmutzung der Umwelt verhindern zu können [15].

Tabelle 2: Tritiumproduktionsraten [$GBq/(GW(e) \cdot a)$] in unterschiedlichen Reaktortypen [15]

Reaktortyp	Brennstoff	Kühlmittel	Moderator	Gesamtmenge (T)
Druckwasserreaktor	$5,18 \cdot 10^5$	$3,70 \cdot 10^4$	k.A	$5,55 \cdot 10^5$
Siedewasserreaktor	$5,18 \cdot 10^5$	niedrig	k.A	$5,18 \cdot 10^5$
Schwerwasserreaktor	$5,18 \cdot 10^5$	$1,85 \cdot 10^6$	$5,18 \cdot 10^7$	$5,42 \cdot 10^7$
Gasgekühlter Reaktor	$5,18 \cdot 10^5$	niedrig	$(0 - 1,85) \cdot 10^5$	$(5,18 - 7,03) \cdot 10^5$
Hochtemperaturreaktor	$5,18 \cdot 10^5$	$1,85 \cdot 10^5$	$(0,18 - 7,40) \cdot 10^4$	$(5,20 - 5,90) \cdot 10^5$
Schneller Brüter	$7,40 \cdot 10^5$	$7,40 \cdot 10^4$	k.A	$8,14 \cdot 10^5$

Tabelle 3: Flüssig- und Gasemissionwerte [$GBq/(GW(e) \cdot a)$] [15]

Reaktortyp	Gasemission	Flüssigemission
Druckwasserreaktor	$3,70 \cdot 10^3$	$2,59 \cdot 10^4$
Siedewasserreaktor	$1,85 \cdot 10^3$	$3,70 \cdot 10^3$
Schwerwasserreaktor	$37,40 \cdot 10^5$	$1,85 \cdot 10^5$
Gasgekühlter Reaktor	$7,40 \cdot 10^3$	$1,11 \cdot 10^4$

Abseits der Überwachung von Nuklearanlagen wird Tritium oft als radioaktiver Tracer in hydrologischen Studien eingesetzt. Auf diese Weise wurden bisher beispielsweise das Alter von Ablagerungen im Eis, die Zirkulationsraten von Wasser in der nördlichen Hemisphäre, Grundwasserbrunnen und deren Aufnahmefähigkeit, oder Oberflächenwasserströme in den Ozeanen und deren Durchmischung untersucht [26].

2.1.2 Abfallmanagement und Lagerung

Besonders bei Tritium ist die Wiederverwertung ein interessantes Thema, da eine sogenannte Detritierung von schwerem Wasser ökonomischer ist, als das Herstellen von neuem schweren Wasser. Detritierung passiert im Groben in drei Schritten:

- Zuerst wird ^3H mittels chemischem Austausch (1) über einen platinbasierten Katalysator oder die Aufspaltung von schwerem Wasser (2) in die weniger toxische Wasserstoffphase übergeführt.



- Weiters wird Tritium mittels Tieftemperatur-Wasserstoffdestillation in der Wasserstoffphase gebunden.
- Der letzte Schritt betrifft die Aufbewahrung des separierten Tritiums in Titanbehältern für die Langzeitlagerung oder in Uranmetallbehältern für eine kurzfristige Lagerung.

Zur Detritierung von schwerem Wasser gibt es, neben den beiden genannten, noch andere, großteils weniger ökonomische Methoden, wie zum Beispiel den katalytischen Dampfphasenaustausch, der in Grenoble (Frankreich) eingesetzt wird. Andere Möglichkeiten sind der katalytische Flüssigphasenaustausch, Elektrolyse kombiniert mit einem katalytischen Austausch, Verdampfung oder die einfache Destillation, die ebenfalls in Wiederaufbereitungsanlagen bereits zum Einsatz kommt.

Bei der Lagerung von Tritium beziehungsweise radioaktivem Abfall im Allgemeinen müssen einige wichtige Punkte berücksichtigt werden:

- Der Abfallbehälter muss thermisch stabil sein, damit keine Schäden aufgrund der Hitze, welche von der radioaktiven Strahlung verursacht wird, auftreten.
- Der Behälter darf nicht korrodieren, um ein Austreten des Abfalls zu verhindern.
- Weiters muss das Behältnis wasserdicht sein, um zum einen chemische Reaktionen und zum anderen, ein etwaiges Austreten der Flüssigkeit zu unterbinden.
- Ebenfalls muss der Abfallbehälter resistent gegen mechanische Schäden sein.

Grundsätzlich werden bei der Handhabung von radioaktiven Materialien zwei Vorgehensweisen unterschieden: zum einen die Abfallentsorgung und zum anderen die Lagerung. Entsorgt werden können nur Materialien mit relativ geringer Aktivität, da ansonsten die Umwelt zu stark gefährdet wird.

Bei der Lagerung von radioaktiven Substanzen besteht weiterhin die Möglichkeit der Wiederaufbereitung. Besonders bei Tritium macht eine langfristige Lagerung aufgrund der kurzen Halbwertszeit relativ wenig Sinn, obwohl es auch diesbezüglich einigen Forschungsaufwand gibt. Die Ideen reichen von Lagerungsstätten nahe der Oberfläche, welche unter permanenter Überwachung stehen bis hin zu Flüssiginjektionen in massive Gesteinsformationen, die bis zu 1000 m unter die Oberfläche reichen [15].

2.2 Einfluss von Tritium auf die Gesundheit

Tritium kommt in der Natur häufig in Form von HTO vor, das aufgrund seiner großen chemischen Ähnlichkeit mit H_2O sehr gut vom menschlichen Körper aufgenommen wird. Wasser stellt die wichtigste Grundversorgung der Menschheit dar. Dadurch ist es wichtig, die Qualität des Grundwassers zur Trinkwasserversorgung sicherzustellen und zu gewährleisten, dass es zu keiner Kontamination kommt [32]. In geringen Mengen stellt Tritium, aufgrund seiner niederen Radiotoxizität, wenig Gefahr dar. Erst bei größeren Mengen kann es zu erheblichen gesundheitlichen Schäden kommen [38].

Über organisch gebundenes Tritium (*OBT-Organic Bound Tritium*) gibt es nur wenig Informationen, wie es mit dem menschlichen Körper wechselwirkt. Wenn *OBT* einmal in den Körper gerät, kann es in eine Vielzahl von biochemischen Verbindungen gelangen und dort Schäden hervorrufen. Organisch gebundenes Tritium wird zudem sehr inhomogen über diverse Organe und Zellstrukturen verteilt, sodass es schwierig ist, genaue und qualifizierte Aussagen über den Metabolismus zu treffen.

Generell ist die Energie eines β -Teilchen aus einem 3H -Zerfall zwar sehr gering, jedoch gibt es die Ionisationsenergie nach einer sehr kurzen Wegstrecke ab. Somit ist die Ionisationsdichte sehr hoch. Das angesprochene β -Teilchen hat auch im Vergleich zu einem Zellkern eine sehr geringe Reichweite.

Im Allgemeinen wird davon ausgegangen, dass β -Teilchen mit sehr niedriger Energie (wie es beim Tritiumzerfall entsteht) eine größere lokale biologische Wirksamkeit haben, jedoch nach einer sehr kurzen Wegstrecke ihre gesamte ionisierende Energie abgegeben haben [11].

Als Grenzwert für T in Trinkwasser (HTO) gilt in Österreich laut Trinkwasserverordnung 100 Bq/l [5].

Tritium kann oral in Form von HTO , das aufgrund seiner chemischen Ähnlichkeit zu H_2O vom Körper nicht unterschieden werden kann, aufgenommen werden und so zu gesundheitlichen Schäden, wie Zellschäden, oder im schlimmsten Fall zu Krebs, führen. Experimente mit Tritium dotierten Gasen, in Form von HT oder T_2 haben gezeigt, dass T in sehr geringen Mengen jedoch auch über die Haut aufgenommen werden kann. Im Labor durchgeführte Versuche konnten zeigen, dass organisch gebundenes Tritium sehr schnell über die Haut aufgenommen

wird, jedoch etwas langsamer (zirka 14 Tage) wieder abgebaut wird. Im Vergleich dazu wird bei Inkorporation von mit Tritium kontaminierten Substanzen ein Großteil innerhalb von 10 Tagen ausgeschieden. *HTO* wird über die Haut kaum aufgenommen, jedoch auch nur sehr langsam abgebaut. Die Interaktion von Tritium mit dem Körper über die Haut kann nur bei sehr hohen Dosen zu Gefahren führen. Solch hohe Tritium Mengen könnten in Anreicherungs-, Kernfusions- und kerntechnischen Anlagen entstehen [18].

Kapitel 3

Grundlagen

Dieses Kapitel behandelt die Grundlagen der Kernphysik, Radioaktivität und deren Zerfallsarten, sowie die Basis des Strahlenschutzes und der Dosimetrie. Des Weiteren wird noch auf Begriffe zu Messungen und deren Unsicherheiten eingegangen.

3.1 Kernphysikalische Grundlagen

Ein Atom besteht aus der Atomhülle, in welcher sich die Elektronen befinden und dem Atomkern, der aus Neutronen und Protonen besteht. Die Anzahl der Protonen (Z) bestimmt die Ordnungszahl, beziehungsweise Kernladungszahl des Atoms. Bei leichteren Nukliden ist die Anzahl der Protonen und Neutronen nahezu gleich groß. Je schwerer die Kerne werden, desto höher wird die Neutronen zu Protonen ($\frac{N}{Z}$) Rate. Die Massenzahl (A) eines Atoms setzt sich aus Protonen und Neutronen ($A = Z + N$) zusammen, wobei dies auch als Atommasse gesehen werden kann, da die Masse des Elektrons im Vergleich zu einem Proton, beziehungsweise Neutron, die annähernd die selbe Masse haben, vernachlässigbar ist (siehe Tabelle 4 [7]).

Die in dieser Arbeit verwendete Notation für ein Nuklid P ist ${}^A_Z P$. Die Protonen und Neutronen werden durch die starke Wechselwirkung (eine der Fundamentalkräfte) zusammengehalten, welche jedoch mit steigendem Abstand der Nukleonen stark abfällt. Protonen stoßen sich zusätzlich elektrostatisch ab (zwei positive Ladungen), wodurch die Wirkung der starken Wechselwirkung weiter reduziert wird.

Für leichte Nuklide ist die Stabilität am Größten, wenn die Neutronen- und Protonenzahl ungefähr gleich ist. Je schwerer ein Kern jedoch wird, desto mehr Neutronen sind für seine Stabilität notwendig, da sich die Protonen, wie bereits erwähnt, abstoßen [35].

In der Kernphysik werden Nuklide mit gleicher Anzahl von Protonen (unterschiedlicher Anzahl von Neutronen) Isotope genannt. Diese sind chemisch weitgehend ident, können jedoch große physikalische Unterschiede aufweisen. Zum Beispiel sind die Wasserstoffisotope ${}^1_0 H$ und ${}^2_1 H$ stabil und ${}^3_1 H$ zerfällt über einen β^- -Zerfall zu ${}^3_2 He$. Nuklide mit gleicher Massenzahl nennt man Isobare und solche mit gleicher Anzahl an Neutronen heißen Isotone [21].

Tabelle 4: Physikalische Fundamentalgrößen [7]

Größe	Symbol	Wert
Elementarladung	e	$1,60217653 \cdot 10^{-19} [As]$
Neutronenmasse	m_n	$1,67492728 \cdot 10^{-27} [kg]$
Protonenmasse	m_p	$1,67262171 \cdot 10^{-27} [kg]$
Elektronenmasse	m_e	$9,1093826 \cdot 10^{-31} [kg]$
Massenverhältnis	$\frac{m_p}{m_e}$	1836,15267261
Elektronvolt	eV	$1,60217653 \cdot 10^{-19} [J]$

3.2 Radioaktivität

”Radioaktivität ist die spontane Eigenemission von Strahlung aus dem Atomkern, worunter sowohl die Emission von Teilchen als auch die von γ -Strahlung zu verstehen ist.” Dieser Grundsatz über die Radioaktivität, sowie die in diesem Abschnitt beschriebenen Grundlagen entstammen der Einführung in die Kernphysik von Bethge [3].

3.2.1 Radioaktiver Zerfall

Die Einheit der Radioaktivität ist Becquerel (Bq), benannt nach dem Kernphysiker Antoine Henri Becquerel. Das Bq ist definiert als $\frac{\text{Zerfälle}}{\text{Sekunde}} [\frac{1}{s}]$, also die mittlere Anzahl der Atomkerne, welche pro Sekunde zerfallen [35]. Mathematisch formuliert nimmt die Zahl der Kerne mit der Zeit ab, wobei die Abnahme proportional (λ ist die die Proportionalitäts-, beziehungsweise Zerfallskonstante) zu den vorhandenen Kernen N ist. In differentieller Form sieht dies wie folgt aus:

$$-\Delta N = N \lambda \Delta t \quad (3)$$

Durch Integration von (3) erhält man (4), wobei N_0 die Anzahl der Kerne zum Zeitpunkt 0 sind und $N(t)$ jene zum Zeitpunkt t .

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

Ausschlaggebend für Berechnungen bezüglich Kernzerfälle ist die sogenannte Halbwertszeit (HWZ) ($t_{1/2}$), die jene Zeit beschreibt nach der die Hälfte aller Kerne zerfallen ist ($N(t_{1/2}) = \frac{N_0}{2}$). Setzt man nun für $N(t) = N(t_{1/2})$ ein erhält man aus (4):

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad \text{beziehungsweise:} \quad \lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \quad (5)$$

Zweiteres ist oftmals praktikabler, da die Halbwertszeiten sämtlicher Nuklide sehr genau bestimmt sind und somit λ nicht experimentell ermittelt werden muss. Wie schon erwähnt, wird die Zahl der pro Sekunde (beziehungsweise Zeiteinheit t) zerfallenen Kerne, Aktivität genannt:

$$A(t) = \lambda N(t) = -\frac{dN}{dt} = \lambda N_0 e^{-\lambda t} = A_0 e^{-\lambda t} \quad (6)$$

Hieraus ist sehr klar ersichtlich, dass sich auch die Aktivität zu einem Zeitpunkt t sehr einfach über das Zerfallsgesetz berechnen lässt.

3.2.2 Natürliche Zerfallsreihen

Es gibt in der Natur vier Zerfallsreihen aus welchen sämtliche natürliche Radionuklide entstanden sind. Es sind dies genau vier, da bei natürlichen Zerfällen die Massenzahl entweder unverändert bleibt (zum Beispiel β -Zerfall) oder gleich um vier reduziert wird, was bei einem α -Zerfall passiert (vergleiche 3.4). Somit kann es maximal vier verschiedene natürliche Zerfallsreihen geben, da ein α -Teilchen aus zwei Protonen und zwei Neutronen (vier Teilchen) besteht. Mit Ausnahme der Neptunium-Reihe, die aufgrund der kurzen Halbwertszeit des Mutternuklids (^{237}Np) nicht mehr vollständig vorhanden ist, können alle Zerfallsreihen in der Natur beobachtet werden. Tabelle 5 stellt die vier Zerfallsreihen dar, wobei die Halbwertszeit in Jahren (a) angegeben wird.

Tabelle 5: Natürliche Zerfallsreihen [3]

Bezeichnung	Mutternuklid	Halbwertszeit	Endprodukt (stabil)
Thorium-Reihe ($4n$)	^{232}Th	$1,405 \cdot 10^{10} a$	^{208}Pb
Neptunium-Reihe ($4n+1$)	^{237}Th	$2,14 \cdot 10^6 a$	^{209}Bi
Uran-Radium-Reihe ($4n+2$)	^{238}U	$4,468 \cdot 10^9 a$	^{206}Pb
Uran-Actinium-Reihe ($4n+3$)	^{235}U	$7,038 \cdot 10^8 a$	^{207}Pb

3.2.3 Mutter-Tochter Systeme

Wenn ein Mutternuklid in ein oder mehrere Tochter- beziehungsweise Enkelnuclide zerfällt, kann es zur Ausbildung von radioaktiven Gleichgewichten kommen. Für die zeitliche Änderung einer Substanzmenge gilt:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad \frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (7)$$

Die Lösung für dieses System von Differentialgleichungen ergibt für das Tochternuklid, sofern die Teilchenzahl des Mutternuklids mit N_{10} gegeben ist und von dem Tochternuklid (N_2) zum Zeitpunkt $t = 0$ nichts vorhanden ist:

$$N_2(t) = N_{10} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (8)$$

Für das Folgeprodukt von N_3 gilt zum Zeitpunkt $t = 0$, sofern $N_3 = 0$:

$$N_3(t) = N_{10} \left[1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (\lambda_2 e^{-\lambda_1 t} - \lambda_1 e^{-\lambda_2 t}) \right] \quad (9)$$

Aus der Annahme, dass keine Substanz verloren geht folgt:

$$N_1(t) + N_2(t) + N_3(t) = N_{10} \quad (10)$$

Aus diesen Beziehungen ergeben sich nun drei Fälle für Mutter-Tochter-Systeme:

- Ein laufendes Gleichgewicht entsteht wenn das entstandene Tochternuklid eine kürzere Halbwertszeit als die Mutter hat. Sowohl die Aktivität der Tochter, als auch die Gesamtaktivität durchläuft ein Maximum, wie zum Beispiel bei dem β^- -Zerfall von ^{211}Pb zu ^{211}Bi (siehe Abb. 3).

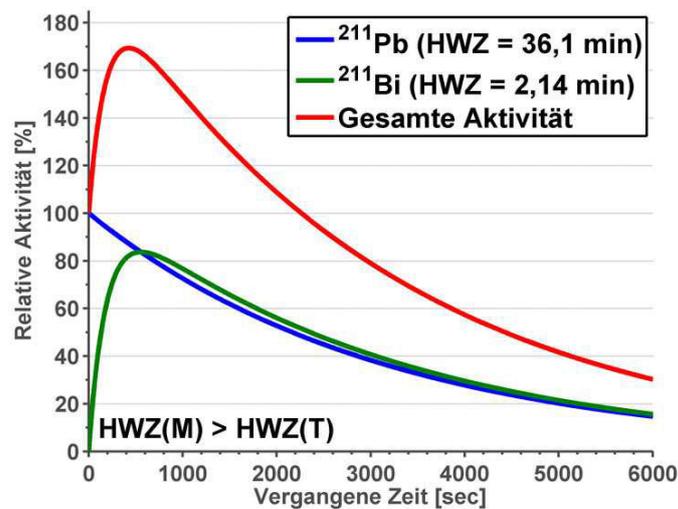


Abb. 2: Laufendes Gleichgewicht [40]

- Bei einer sehr viel größeren Halbwertszeit der Mutter im Vergleich zu jener der Tochter werden die Aktivitäten der beiden Substanzen praktisch gleich. Es stellt sich ein sogenanntes „säkulares Gleichgewicht“ ein, wie im Falle vom β^- -Zerfall von ^{137}Cs zu $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (siehe Abb. 4).

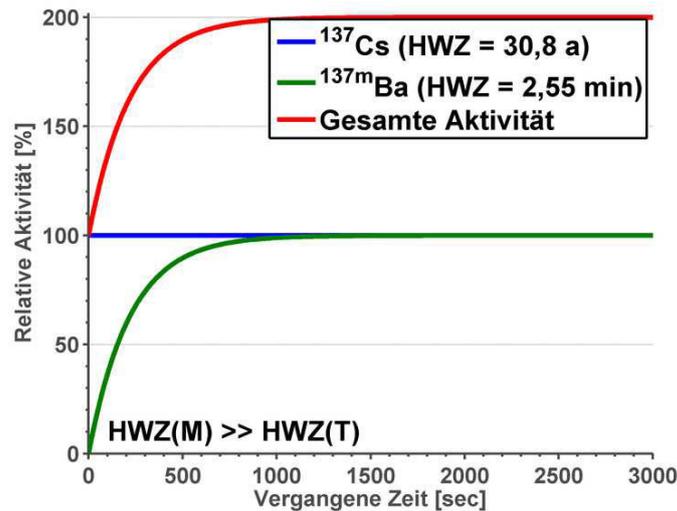


Abb. 3: Säkulares Gleichgewicht [40]

- Zu keiner Gleichgewichtseinstellung kommt es hingegen, wenn die Halbwertszeit des Tochternuclids größer ist als jene der Mutter. Im Vergleich zu ^{211}Pb (Abb. 3) entsteht beim β^- -Zerfall von ^{214}Pb zu ^{214}Bi kein Gleichgewicht (siehe Abb. 5).

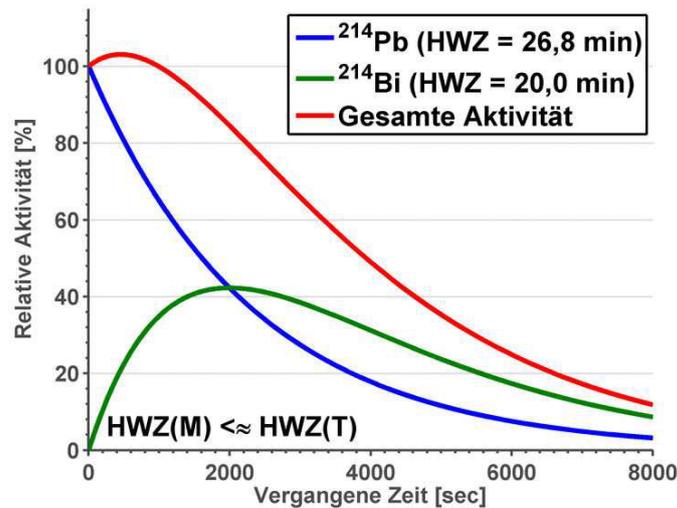


Abb. 4: Fehlendes Gleichgewicht [40]

3.2.4 Strahlenschutz und Dosimetrie

An dieser Stelle werden einige grundlegende Begriffe des Strahlenschutzes erklärt, die teilweise im Laufe dieser Arbeit verwendet werden und als Grundlagen dienen sollen. Die Begriffserklärungen wurden der ÖNORM A 6601 entnommen [1].

Die Dosis (D) ist allgemein die Menge an Strahlung die einem Körper zugeführt wird. Je nach Anwendung unterscheidet man Energiedosis, Äquivalentdosis, Ionendosis und Kerma.

Die Dosisleistung ist die Ableitung der Dosis nach der Zeit ($\frac{dD}{dt}$).

Leitet man die mittlere Energie ($\bar{\epsilon}$) in einer Volumeneinheit, welche durch ionisierende Strahlung abgegeben wird, nach der Masse der Volumeneinheit ab erhält man die Energiedosis mit der Einheit $J \cdot kg^{-1}$. Über $\rho = m \cdot V$ erhält man:

$$D = \frac{d\bar{\epsilon}}{dm} = \frac{1}{\rho} \frac{d\bar{\epsilon}}{dV} \quad (11)$$

Ein wichtiger Begriff ist das *Kerma* („kinetic energy released per unit mass“-kinetische Energie, die pro Masseneinheit freigesetzt wird) mit der Einheit $J \cdot kg^{-1}$. Das Kerma beschreibt jene kinetische Energie, die von geladenen Teilchen pro Masseneinheit abgegeben wird:

$$K = \frac{dE_{kin}}{dm} = \frac{1}{\rho} \frac{dE_{kin}}{dV} \quad (12)$$

Mit der Ionendosis $C \cdot kg^{-1}$ wird die elektrische Ladung pro Masseneinheit in einem Volumen bezeichnet, welche durch Photonenstrahlung gebildet wird. Dabei wird die Luft ionisiert.

$$J = \frac{dQ}{dm} = \frac{1}{\rho} \frac{dQ}{dV} \quad (13)$$

Ein weiterer sehr wichtiger Begriff im Strahlenschutz ist der *LET* (Linearer Energie Transfer). Gemeint ist damit der mittlere Energieverlust eines geladenen Teilchens pro Weglänge. Die Einheit ist $J \cdot m^{-1}$.

$$L_{\Delta} = \frac{dE_{\Delta}}{dx} \quad (14)$$

Die Äquivalentdosis (H) in $J \cdot kg^{-1} = 1 Sv$ ist ein Produkt aus der Energiedosis (D) und einem Qualitätsfaktor. Hier wird also bereits die Strahlung hinsichtlich ihrer biologischen Wirksamkeit bewertet. Zum Beispiel hat α -Strahlung eine höhere Wirksamkeit als γ -Strahlung.

$$H = Q \cdot D \quad (15)$$

Die Äquivalentdosisleistung ist die Äquivalentdosis abgeleitet nach der Zeit. Die Ortsdosis ist die Äquivalentdosis an einem bestimmten Ort, wobei hier auch der Begriff Umgebungsäquivalentdosis verwendet wird. Die Personendosis ist die Äquivalentdosis an einer repräsentativen Stelle eines strahlenexponierten Körpers.

Um die allgemeinen Dosisgrößen für Einzelpersonen zu modifizieren, bedarf es Wichtungsfaktoren, welche die Einheit 1 haben und die Einflüsse der Strahlenart und -energie (w_R) und das angegriffene Gewebe (w_T), berücksichtigen. Mit Hilfe dieser Wichtungsfaktoren kann man nun die Organ-Äquivalentdosis ableiten.

$$H_T = \sum_R w_R D_{T,R} \quad (16)$$

Hier wird der Strahlungswichtungsfaktor mit der Organ-Energiedosis ($D_{T,R}$) multipliziert und über alle auftretenden Strahlungsarten summiert. Wenn man die Organ-Äquivalentdosis zusätz-

lich mit dem Gewebewichtungsfaktor multipliziert erhält man die Effektive Dosis in $J \cdot kg^{-1}$.

$$E = \sum_R w_T H_T \quad (17)$$

3.3 Messunsicherheiten, Erkennungs- und Nachweisgrenzen

Der radioaktive Zerfall ist ein zufälliges Ereignis, somit ist die Anzahl der Zerfälle pro Zeit (Bq) variabel. Die Messwerte befinden sich im Regelfall aber in einem gewissen Konfidenzintervall und können somit mit einer geringen Restunsicherheit sehr gut dargestellt werden. In der Strahlenphysik ist es üblich die Messunsicherheit mit 2σ anzugeben [26].

Um aussagekräftige und verwertbare Ergebnisse zu bekommen, ist es wichtig Messunsicherheiten sowie Erkennungs- und Nachweisgrenzen zu beachten. Der Anwendungsbereich der ÖNORM S5250-1 umfasst den Bereich der Messtechnik, welche Ereignisse detektiert, die den radioaktiven Zerfall betreffen. Dieser Abschnitt soll einen kurzen Überblick über die verwendeten Methoden zur Auswertung der Messergebnisse und deren Unsicherheiten geben [33].

3.3.1 Messungen und Unsicherheiten

Jedem Messereignis liegen gewisse statistische und systematische Unsicherheiten zugrunde, welche die Gesamtunsicherheit ergeben. Statistische Unsicherheiten ergeben sich aus prinzipiellen physikalischen Einflussgrößen, die aus den Messungen entstehen. Sämtliche Unsicherheiten werden in einem Unsicherheitsbudget zusammengefasst, wodurch die Gesamtunsicherheit berechnet werden kann.

Bei mehreren Messergebnissen der gleichen Probe ist es ratsam einen Mittelwert ($\langle x \rangle$) zu bilden, wobei x der jeweilige Messwert ist. Bei vielen Messergebnissen wird eine Standardabweichung ($\sigma = \sqrt{Var(x)}$) angegeben, die sich aus der Varianz ($Var(x) = E[(x - E(x))^2]$) ergibt. „Die Varianz ist der Erwartungswert der quadratischen Abweichungen der Messergebnisse vom Erwartungswert der zu bestimmenden Größe.“

Bei Messergebnissen wird oft ein Vertrauensbereich angegeben (Δx), der ein Vielfaches der Standardabweichung ist (meist 2σ). Wobei 1σ bedeutet, dass 68% und 2σ , dass 95,5% aller Messwerte innerhalb des Vertrauensbereiches sind [33].

Als Beispiel: Die Nettozählrate $x = 6000$ somit ist $2 \cdot \sigma = 2 \cdot \sqrt{6000} = 155$. Damit würde der wahre Wert zu 95,5% in dem Bereich von $6000cpm \pm 155cpm$ liegen. Bei den verwendeten Messgeräten konnte die gewünschte Genauigkeit der Unsicherheit eingestellt werden. Dies kann folgendermaßen überlegt werden:

$$\%2\sigma = \frac{2 \cdot \sigma \cdot 100}{x} = \frac{2 \cdot \sqrt{x} \cdot 100}{\sqrt{x} \cdot \sqrt{x}} = \frac{200}{\sqrt{x}} = \frac{200}{\sqrt{cpm \cdot t}} \quad (18)$$

Man sieht hier eindeutig, dass die Messzeit (t) mit $\frac{1}{\sqrt{t}}$ in die Unsicherheit eingeht. Man kann also die Unsicherheit verringern, in dem man die Messzeit verlängert. Wenn die Unsicherheit auf beispielsweise 2 % eingestellt ist, jedoch die Aktivitätskonzentration in der Probe so niedrig

ist, dass im Vergleich zum Hintergrund nur sehr wenige Ereignisse detektiert werden, kann es zu enormen Messzeiten kommen. Hinzu kommt, dass es statistisch gesehen besser ist eine Probe mehrmals kürzer zu messen, als einmal länger. In diesem Fall werden Fehler in der Datenauswertung (eventuelle Ausreisser) sichtbar und können eliminiert werden [26].

Wenn mehrere Unsicherheiten zu berücksichtigen sind, muss das Prinzip der Fehlerfortpflanzung angewendet werden, wobei das Maß dafür die Standardabweichungen sind. Bei einer Summe oder Differenz zweier Größen ($y = x^{(1)} \pm x^{(2)}$) ergibt sich eine Standardabweichung von:

$$s_y = \sqrt{s_{x^{(1)}}^2 + s_{x^{(2)}}^2} \quad (19)$$

Muss ein Ergebnis hingegen über ein Produkt ($y = x^{(1)} \cdot x^{(2)}$) oder den Quotienten ($y = \frac{x^{(1)}}{x^{(2)}}$) berechnet werden, ergibt sich die Standardabweichung zu [33]:

$$s_y = y \cdot \sqrt{\left(\frac{s_{x^{(1)}}}{x^{(1)}}\right)^2 + \left(\frac{s_{x^{(2)}}}{x^{(2)}}\right)^2} \quad (20)$$

3.3.2 Messergebnisse und Nachweisbarkeit

Um feststellen zu können, ob Messergebnisse sinnvoll beziehungsweise verwendbar sind, ist es hilfreich die Erkennungsgrenze (21) (entscheidet über das ausreichende Vorhandensein eines Messnuklids) und die Nachweisgrenze (23) (inwieweit ist das Messverfahren geeignet) zu berechnen.

Die erkennbare Nettozählrate einer Messung setzt sich wie folgt zusammen:

$$R_{n,EG} = \frac{1}{2 \cdot t_0} \cdot \left(1 + \sqrt{1 + \frac{4 \cdot R_0 \cdot t_0}{k_{1-\alpha}^2} \cdot \left(1 + \frac{t_0}{t_b} \right)} \right) \quad (21)$$

Wobei R die Zählrate und t die Messzeit ist. Der Index 0 steht für den Leerwert und b für die Gesamtzählrate. Der vorangestellte k -Faktor ist der Irrtumswahrscheinlichkeit zuzuordnen. Laut ÖNORM S 5250-1 gilt unter den Voraussetzungen, dass $R_0 + t_0 > 50$ somit $R_0 + t_0 \gg k_{1-\alpha}^2$ und $t_0 = t_b$:

$$R_{n,EG} = 2,33 \cdot \sqrt{\frac{R_0}{t_0}} \quad (22)$$

Die Nachweisgrenze (NWG) (23) entscheidet, ob ein Messverfahren für eine Messung geeignet ist. Ist die NWG größer als der erhaltene Messwert, muss entweder die Messzeit erhöht werden, welche mit $\sqrt{\frac{1}{t}}$ eingeht, oder ein anderes Messverfahren gewählt werden. Andernfalls kann der erhaltene Messwert verarbeitet werden [33].

$$E(R_{n,NG}) = (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta}) \cdot \sqrt{E(R_0 \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_b}\right))} + \frac{1}{4} \cdot (k_{1-\alpha} + k_{1-\beta})^2 \cdot \left(\frac{1}{t_0} + \frac{1}{t_b}\right) \quad (23)$$

Unter den selben Voraussetzungen wie in (22) gilt für die Nachweisgrenze:

$$E(R_{n,NG}) = 4,65 \cdot \sqrt{\frac{E(R_0)}{t_0}} \quad (24)$$

Somit ist die Nachweisgrenze zirka das Zweifache der Erkennungsgrenze.

Einige Faktoren können diese Nachweisgrenze beeinflussen [26]:

- Die Elektronik zur Unterdrückung der Hintergrundpulse (vgl. 4.8.2.1).
- Zusätzlicher Schutz vor externer Strahlung (zum Beispiel eine Bleiburg).
- Abschirmung des Detektors mit einem zusätzlichen Schild (vgl. 4.8.2).
- Optimierung der Zählregion. Bei Tritium ist die optimale Fenstereinstellung 0-18,6 keV.
- Abkühlen des Messraumes und der Messkammer.
- Verwendung von PMT (photomultiplier tubes), die wenig Störgeräusche produzieren und somit auch für low-level Messungen geeignet sind.
- Die optimale Auswahl des Cocktails für das zu messende Radioisotop.
- Der Messraum sollte im Idealfall weitestgehend von jeglicher Strahlung (zum Beispiel Höhenstrahlung) isoliert sein.
- Die richtige Wahl der Probenfläschchen.

Das Detektorlimit für Messungen wird über die Signal- zu Hintergrundrate abgeleitet. Im konkreten Fall der Flüssigszintillation wird es durch eine Funktion zwischen Efficiency und Hintergrund auf Basis von statistischen Überlegungen wie folgt abgeleitet:

$$FOM = \frac{E^2}{B} \quad (25)$$

Die sogenannte *Figure of Merit* (FOM) oder Leistungskennzahl ist der am verbreitetsten genutzte Parameter zur Beurteilung der Zählleistung eines Messgerätes [28].

3.4 Radioaktive Zerfallsarten

Sämtliche in diesem Abschnitt erwähnten radioaktiven Zerfallsarten wurden der Karlsruher Nuklidkarte [21] entnommen.

Der radioaktive Zerfall ist eine spontane Umwandlung des Kerns, wodurch neue Elemente entstehen. Bei diesem Prozess wird ein instabiles Mutternuklid in ein energetisch stabileres Tochter-nuklid umgewandelt. Die Eigenschaften und Auswirkungen unterschiedlicher Mutter-Tochter-Systeme wurden in Kapitel 3.2 bereits erläutert.

3.4.1 Alpha-Zerfall

Bei einem α -Zerfall emittiert ein instabiler Kern einen Heliumkern (${}^4_2\alpha$ -Teilchen) und verringert somit seine Protonen- und Neutronenzahl um jeweils zwei. Das Mutternuklid emittiert ein α -Teilchen und zerfällt in das Tochternuklid. Folglich hat bei diesem Prozess das Tochternuklid zwei Elektronen zu viel, welche jedoch unmittelbar nach der Abgabe des α -Teilchens der Mutter ebenfalls abgegeben werden, um elektrische Neutralität zu erreichen. Bei niederen Energien bekommt das α -Teilchen zwei Elektronen dazu und wird somit zu einem neutralen Helium (He) Atom.

Der α -Zerfall passiert vorwiegend in protonenreichen Nukliden mit hohen Massenzahlen, da die elektrostatische Abstoßung in schweren Nukliden stärker ansteigt, als die anziehende Kernkraft. Zusätzlich muss das α -Teilchen einen Potentialwall von 25 MeV überwinden, der jedoch auch durchtunnelt werden kann (quantenmechanischer Tunneleffekt).

Die α -Strahlung kann, aufgrund der hohen Energien, vor allem infolge von Inkorporation schwere gesundheitliche Schäden auslösen, jedoch reicht bereits ein Blatt Papier oder die Haut aus um sie abzuschirmen. Ein Beispiel für den α -Zerfall:



3.4.2 Beta-Zerfall

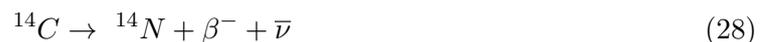
Man unterscheidet grundsätzlich zwei Arten des β -Zerfalls: den β^- - und den β^+ -Zerfall. Beim β^- -Zerfall (27) wird ein Neutron in ein Proton, ein Elektron und ein Antielektronneutrino ($\bar{\nu}$) umgewandelt. Beim β^+ -Zerfall (29) hingegen ein Proton in ein Positron und ein Neutrino.

Der β^- -Zerfall kommt bei Nukliden mit einem Neutronenüberschuss vor. Theoretische Überlegungen lassen die Existenz eines Elektrons im Kern nicht zu und somit „muss“ das Elektron mit dem Antielektronneutrino emittiert werden.

Da die Zerfallsenergie sowohl auf des β -Teilchen, als auch auf das $\bar{\nu}$ aufgeteilt wird, entsteht ein kontinuierliches Spektrum (Abb.6), dessen oberes Energieende bei der Maximalenergie des β -Teilchen liegt. Die durchschnittliche Energie eines β -Teilchen liegt näherungsweise bei einem Drittel der Maximalenergie. Das Antielektronneutrino hat keine Ladung und nahezu keine Masse.



Ein Beispiel hierfür ist der Zerfall von Kohlenstoff(C)-14 in Stickstoff(N)-14, ein Elektron und ein Antielektronneutrino (28).



In Nukliden mit einem Protonenüberschuss kann es zum β^+ -Zerfall kommen (wenn der α -Zerfall energetisch nicht möglich ist) wodurch ein stabilerer Kernzustand erreicht wird. Ähnlich dem β^- -Zerfall entsteht auch beim β^+ -Zerfall ein kontinuierliches Spektrum, welches bei einer charakteristischen Maximalenergie endet. Das Positron ist starken elektrostatischen Wechselwirkungen mit den Elektronen in der Hülle ausgesetzt. Beim Aufeinandertreffen des Elektrons und

des Positrons kommt es zur Annihilation, wobei zwei Photonen (γ -Strahlen) mit einer Energie von 511 keV entstehen.



Obwohl β -Teilchen eine höhere Reichweite haben als α -Teilchen kann man sich mit dünnen Glas-, Metall-, oder Wasserschichten schützen. Die β -Strahlung kann, besonders bei Inkorporation, jedoch auch bei externer Bestrahlung eine Gefahr für die Gesundheit darstellen.

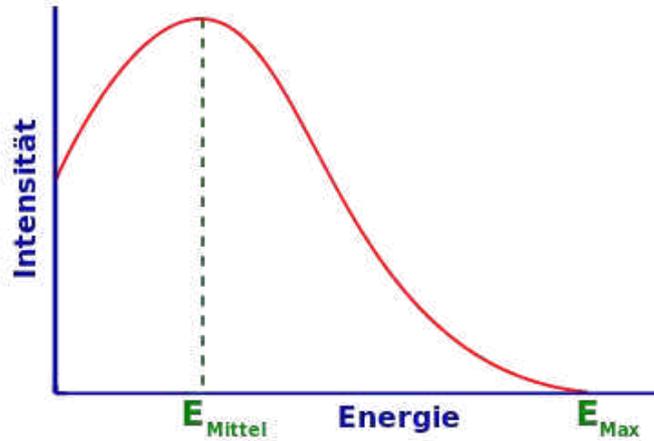


Abb. 5: Spektrum eines β -Zerfalls [41]

Bei Untersuchungen bezüglich des β -Zerfalls ist es nützlich und hilfreich möglichst viele Details über das Spektrum und die durchschnittliche Energie, sowie die Maximalenergie mit der das Teilchen emittiert wird zu wissen. Marinelli et al. (1947) und Loevinger (1957) [22] haben die durchschnittliche Energie (E_{av}) als Funktion der Kernladungszahl Z und die Maximalenergie E_{max} mittels Computersimulationen berechnet. Ein zusammengesetztes β -Spektrum wird aus nachfolgender Beziehung berechnet: $N(E)$ ist dabei die Anzahl der Teilchen mit der Energie E wobei über alle Spektren der betrachteten Isotope summiert wird. P_i ist die Emissionsfrequenz und N_i ist die Zahl der Teilchen des jeweiligen Spektrums.

$$N(E) = \sum_{i=1}^k P_i N_i(E) \quad (30)$$

N_i wird über die Fermi Theorie des β -Zerfalls berechnet, wobei f_c die tabellierte Fermifunktion ist und die Energie in Einheiten von $m_0 c^2$ angegeben wird. Multipliziert wird der Ausdruck mit einem Abschirm- und einem Formfaktor.

$$N_i(E) = f_c(Z, E)(E_i - E)^2(E + 1)(E^2 + 2E)^{-1/2} \quad (31)$$

Die durchschnittliche kinetische Energie E_{av} der betrachteten Radionuklide berechnet sich nun zu:

$$E_{av} = \frac{\int_0^{E_{max}} E N(E) dE}{\int_0^{E_{max}} N(E) dE} \quad (32)$$

Diese Überlegungen werden in der Fachliteratur kaum angesprochen, da ein tatsächliches β -Spektrum aufgrund der Quenchfaktoren oftmals verzerrt ist [22].

3.4.3 Elektroneneinfang

Kerne mit Neutronenunterschuss können über den Elektroneneinfang einen stabileren Zustand erreichen. Bei diesem (dem β^+ -Zerfall sehr ähnlichem Vorgang) wird ein Proton und ein Elektron (aus der K - oder L -Schale der Atomhülle) in ein Neutron und ein Neutrino umgewandelt (33). Das entstandene Tochternuklid ist dabei oft in einem angeregten Zustand, wodurch der entstandene Kern ebenfalls instabil ist. Oft werden die Löcher in den K - oder L -Schalen mit Elektronen aus höheren Schalen gefüllt, wodurch die überschüssige Energie in Form von elektromagnetischer Strahlung abgegeben wird.



3.4.4 Gamma-Emission und Isomerübergänge

Im Gegensatz zu den bisher besprochenen Kernumwandlungen ist Gammastrahlung keine Partikelstrahlung, sondern elektromagnetische Strahlung bei der Photonen emittiert werden. Die γ -Emission ist kein primärer Zerfallsprozess sondern tritt normalerweise begleitend mit α -, oder β -Zerfällen auf, wenn das Tochternuklid zum Beispiel in einem angeregten Zustand vorliegt (34). Weiters besitzt die emittierte γ -Strahlung diskrete Energien (im Vergleich zum β -Spektrum (Abb.6)), wodurch aufgrund der Gammaenergien jedes Element eindeutig charakterisiert werden kann.



Im Gegensatz zur normalen γ -Emission, welche bei Dipol-, oder Quadrupolstrahlung auftritt, werden Isomerübergänge durch Multipolstrahlung höherer Ordnung hervorgerufen (35).



3.4.5 Innere Konversion

Die innere Konversion ist dem Gammazerfall (3.4.4) sehr ähnlich. Der angeregte Kern gibt beim Übergang in den Grundzustand die Energie des entstandenen Photons direkt an ein Hüllenelektron ab. Dieses Elektron kann mit Hilfe der aufgenommenen Energie das Atom verlassen und es bleibt ein ionisiertes Atom zurück (36).



3.4.6 Spontanspaltung

Bei der Spontanspaltung, die bei Actiniden beziehungsweise Transactiniden (Ordnungszahl >90) auftritt, zerfällt ein Kern spontan (ohne äußere Anregung) in meist zwei Tochternuklide und

einige Neutronen. Ein Beispiel für die Spontanspaltung ist der Zerfall von Fermium(Fm)-256 in Xenon(Xe)-140, Palladium(Pd)-112 und 4 Neutronen (37).



3.4.7 Protonenzerfall

Bei Nukliden mit Protonenüberschuss kommt es in erster Linie zu einem β^+ -Zerfall (3.4.2). Da jedoch die Bindungsenergie der Protonen immer weiter sinkt kann es auch zu einem Protonenzerfall kommen. Sobald das Proton emittiert wird, folgt unmittelbar die Aussendung eines Elektrons durch das Tochternuklid um elektrisch neutral zu bleiben. Cobalt(Co)-53m, um ein Beispiel zu nennen, zerfällt mit einer Wahrscheinlichkeit von 98,5% über einen β^+ -Zerfall zu Eisen(Fe)-53 und mit 1,5% über einen Protonenzerfall zu Eisen-52 (38).



3.4.8 Verzögerte Zerfälle

Sogenannte verzögerte Zerfälle sind verzögerte Emissionen von Protonen (39), Neutronen (40) oder α -Teilchen (41). Die Emission von verzögerten Neutronen beziehungsweise Protonen wird häufig knapp oberhalb der magischen Grenzen beobachtet. Besondere Bedeutung hat die Emission verzögerter Neutronen beim Zerfall von Uran(U)-235, da durch diese verzögerten Neutronen ein Kernreaktor mechanisch regelbar wird.

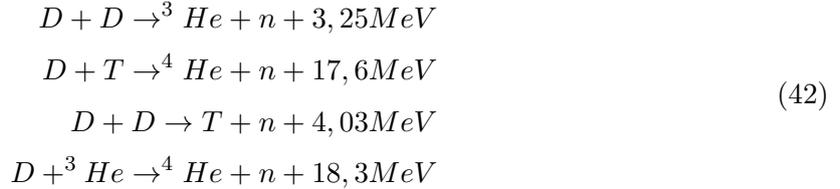


3.5 Kernfusion

Wasserstoffisotope, im Speziellen Deuterium und Tritium könnten in einigen Jahren zu den wichtigsten Energieträgern werden. Sollte der Durchbruch zur Kernfusion gelingen, würden mit großer Wahrscheinlichkeit diese beiden Isotope als Brennstoff fungieren. Die Vorteile der Kernfusion sind eine sehr hohe Sicherheit, wenig radioaktiver Abfall, beinahe grenzenlose Brennstoffvorräte, wenig Emissionen und ein sehr hoher Wirkungsgrad. Die derzeitigen Prognosen sehen

eine kommerzielle Nutzung in zirka 20-40 Jahren [4].

Wie bei der Kernspaltung wird auch bei der Kernfusion Energie frei. Unsere Sonne basiert auf diesem Prinzip. Bei der Fusion kann deutlich mehr Energie freigesetzt werden, als bei der Spaltung somit ist sie theoretisch eine effizientere Energiequelle. In Sternen wird im Regelfall Wasserstoff zu Helium fusioniert. Auf der Erde ist es einfacher realisierbar die schweren Wasserstoffisotope D und T zur Fusion zu bringen. Die folgende kleine Auswahl ((42)[42]) stellt die vielversprechensten Wege zur Energiegewinnung auf der Erde dar.



Die ersten beiden Prinzipien werden am intensivsten verfolgt, da man sich hier eine relativ leichte Umsetzbarkeit erwartet.

D und T liegen bei Raumtemperatur gasförmig vor und müssen bei einigen hundert keV wechselwirken, um eine ausreichende Ausbeute zu erlangen. Um derartig hohe Temperaturen zu erreichen, benötigt man ein Plasma zum Heizen [3].

Aufgrund der hohen Temperaturen liegen die Atome in einem Plasma nahezu vollständig ionisiert vor. Dadurch ist der Einschluss über ein Magnetfeld möglich und notwendig, da es keine Materialien gibt, welche derartigen Temperaturen standhalten. Jedoch gibt es auch hier Schwierigkeiten, da die Magnetfeldlinien nicht ineinander übergehen dürfen, nachdem ansonsten Verunreinigungen oder Instabilitäten in sich übergehen und das Plasma sofort zusammenfallen würde. Somit wird versucht die Feldlinien schraubenförmig um den Torus zu führen, damit sie möglichst homogen die starken und schwachen Magnetfelder durchlaufen [4].

Um eine Fusion zu erreichen gibt es zwei große Forschungsrichtungen. Zum einen den magnetischen Einschluss bei dem ein Plasma über Magnetfelder eingeschlossen wird um eine konstant hohe Temperatur erreichen zu können. Bei dieser Technologie gibt es wiederum zwei Prinzipien, die untersucht werden. Das russische Tokamakprinzip und den Stellarator, wobei man sich vom Tokamak höhere Erfolgchancen verspricht. Zum anderen gibt es die Laserfusion, oder Trägheitseinschluss, bei der mittels Laser zwei Brennstoffkügelchen miteinander verschmolzen werden.

Um die aus der Fusion entstandene Energie zu quantifizieren und um sie nutzen zu können, muss eine Bilanzgleichung aufgestellt werden, die zum Beispiel Transport, Rekombinationsstrahlung, Bremsstrahlung und weitere Verluste mit der freigesetzten Energie vergleicht. Die Fusionsrate (Reaktionen pro Zeit) ist gegeben durch:

$$N_{dt} = q_d q_t v \sigma_{dt} \tag{43}$$

Dabei ist q_d die Dichte des Deuteriumions, q_t die Dichte des Tritiumions, v die Relativgeschwindigkeit der im Plasma stoßenden Ionen und σ_{dt} der Fusionswirkungsquerschnitt.

Mit Hilfe der Reaktivität $\langle v\sigma_{dt} \rangle$ als Wichtungsfaktor bekommt man mit $\frac{q}{2} = q_t = q_d$ die gesamte Leistungsdichte.

$$P_{dt} = q_t q_d \langle v\sigma_{dt} \rangle Q_{dt} = \frac{1}{4} q^2 \langle v\sigma_{dt} \rangle Q_{dt} \quad (44)$$

Dabei ist Q_{dt} die, großteils über 14 MeV-Neutronen, freigesetzte Energie. Ein kleiner Teil der Energie fällt auf die α -Teilchen ab, die zur Heizung des Plasmas verwendet werden. Je höher die Temperatur im Plasma desto größer ist auch die Reaktivität. Die Dichte q nimmt jedoch mit $\sim \frac{1}{T}$ ab.

Gegenüber der Leistungsdichte gibt es allerdings Verluste über hauptsächlich Röntgen- und Bremsstrahlung, die von den Elektronen im Plasma ausgehen. Die Bremsstrahlungsverluste ergeben sich mit der Zahl N_e und der Temperatur der Elektronen T_e zu:

$$P_V = g_b N_e^2 \sqrt{T_e} \quad (45)$$

Das Plasma kann nur zünden wenn die Leistungsdichte größer ist als die Verluste. Wenn weiterhin noch der Wirkungsgrad η berücksichtigt wird erhält man das sogenannte *Lawson-Kriterium* (vgl. 46) oder auch Zündkriterium für einen Fusionsprozess.

Dabei ist $N\tau_b$ ein Maß für die Dauer des Plasmaeinschlusses, wenn nur die Bremsstrahlungsverluste berücksichtigt werden. Bei einer Temperatur von $T = 10 \text{ keV}$ und einem Wirkungsgrad $\eta = 33\%$ würde dies mindestens 10^{20} s m^{-3} betragen [3].

$$N\tau_b = \frac{3kT}{\frac{1}{4} \langle v\sigma_{dt} \rangle Q_{dt} \frac{\eta}{1-\eta} - g_b \sqrt{T}} \quad (46)$$

Ein alternatives Prinzip zum Tokamak wäre der Stellarator, jedoch verspricht man sich vom Tokamak-Prinzip größere Wirkungsgrade und der Magneteinschluss an sich ist bereits leichter zu bewerkstelligen. Der Stellarator ist konzipiert, um auch stationär betrieben werden zu können, jedoch sind die Magnetfelder um einiges komplizierter und technisch aufwendiger. In Abbildung 7 sieht man ein vereinfachtes Schema eines Fusionskraftwerkes.

Im Deuterium-Tritium Plasma entstehen Neutronen die im Lithium-Blanket Tritium produzieren. Das Tritium wird dem Plasma gemeinsam mit Deuterium als Brennstoff zugeführt. Das im Plasma nicht fusionierte T wird dem Abgas entzogen (Tritium Rückgewinnung) und wiederverwendet [4]. Im Weiteren wird hier auf das Tokamak-Prinzip eingegangen, da es am vielversprechendsten ist.

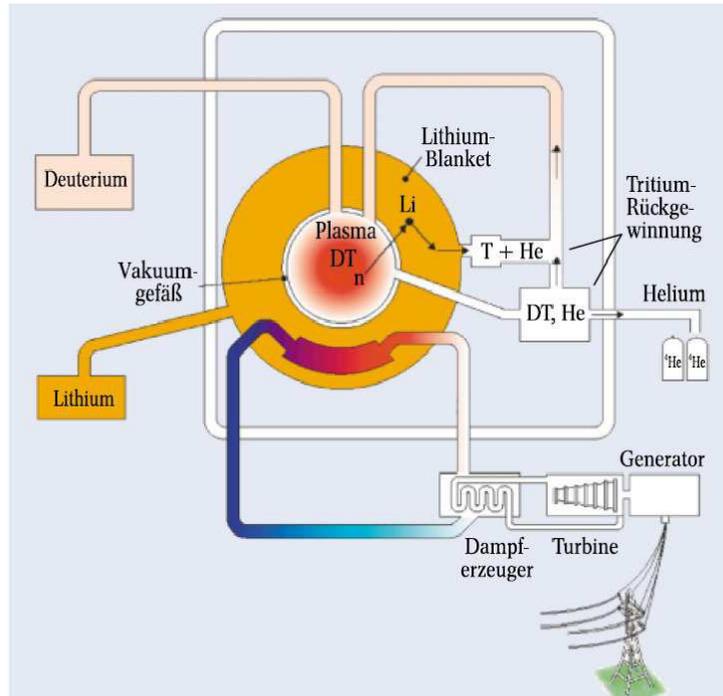


Abb. 6: Schema eines Kernfusionskraftwerks [4]

3.5.1 Iter

Der größte irdische Fusionsreaktor, *ITER* (*International Thermonuclear Experimental Reactor*), wird derzeit in Cadarache (Frankreich) gebaut. Bei diesem Projekt erhofft man sich erstmals einen positiven Wirkungsgrad, das heißt, dass die Anlage im Vollbetrieb mehr Energie produzieren kann als sie verbraucht.

Man setzt bei *ITER* auf die Verschmelzung von Deuterium und Tritium, da bei dieser Reaktion die höchste Energieausbeute bei „niedriger“ Temperatur ($\sim 150.000.000^{\circ}\text{C}$) erreicht werden kann. Durch die Fusion im Tokamak wird ein Heliumkern, ein Neutron und Energie produziert. Der Heliumkern (positiv geladen) wird vom umschließenden Magnetfeld im Reaktor gehalten. Das Neutron interagiert mit der Wand und gibt damit seine Energie in Form von Wärme ab. Diese Wärme kann im Idealfall zur Energiegewinnung genutzt werden, jedoch kühlt mit diesem Prozess auch das Plasma ab. Zirka 80 % der produzierten Energie wird aus dem Plasma transportiert, wodurch auch die Heizung ein großes Thema ist um den Fusionsprozess aufrecht zu erhalten. Der geplante Tokamak (Abb.8) ist ungefähr 30 m hoch und hat einen Durchmesser von ebenfalls zirka 30 m.

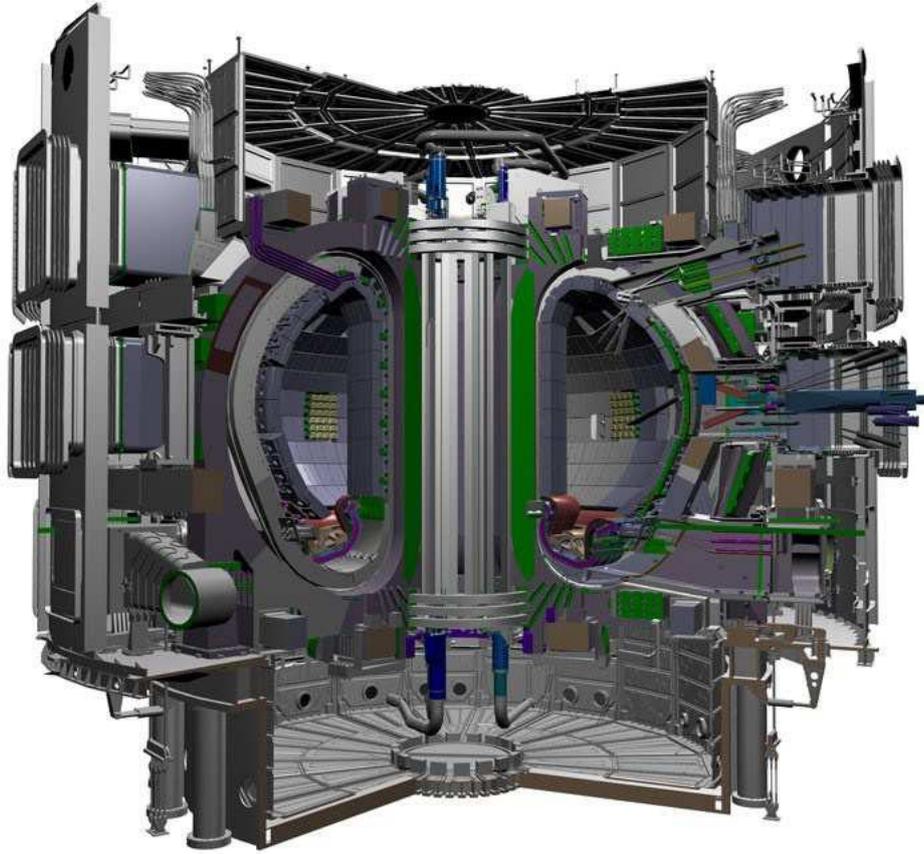


Abb. 7: Schema des Tokamak Fusionsreaktors ITER [17]

Deuterium kann über Destillation von Wasser erzeugt werden und ist somit sehr einfach zu gewinnen. Tritium, das in der Natur nur in sehr geringen Mengen vorkommt (siehe 2.1), kann während dem Fusionsprozess über Kontakt mit Lithium gewonnen werden. Durch die Interaktion der Neutronen mit der lithiumhaltigen Wand entsteht somit T . Es werden dazu zirka 250 kg Brennstoff benötigt wobei die Hälfte davon D und die andere Hälfte T ausmacht. Dabei werden, sofern der Durchbruch gelingt, zirka 1000 Megawatt produziert. Ein Kohlekraftwerk würde dafür zirka 2,7 Millionen Tonnen Kohle pro Jahr brauchen.

Der aktuelle Zeitplan sieht vor dass 2014 der Start für die Lieferung der Komponenten des Tokamaks erfolgt und 2019 die Kommissionierung stattfindet [17]. Ein wichtiger Bestandteil des ITER-Projektes ist, dass sämtliche Komponenten eines zukünftigen konventionellen Kraftwerks bereits enthalten sind. Die Intention dahinter ist es sämtliche Faktoren wie Spulen, Regulierbarkeit, Plasmaheizung, Tritiumtechnologie, Komponenten des Brennstoffkreislaufs und vieles mehr auf Kompatibilität zur konventionellen Energiegewinnung zu testen [4].

3.5.2 Sicherheit

Das Ziel des Projektes ITER ist die Katastrophenfreiheit eines Kraftwerks zu realisieren. Aufgrund der physikalischen Ausgangssituation scheint die Erreichbarkeit dieses ambitionierten Vorhabens durchaus realistisch.

Pro $D-T$ Reaktion entsteht nur ein He -Kern und ein Neutron, nicht wie bei der Kernspaltung, bei der zwischen zwei und drei Neutronen entstehen. Somit ist eine unkontrollierte Kettenreaktion ausgeschlossen.

Der schwierigste Punkt bei der Kernfusion ist die Aufrechterhaltung eines stabilen Plasmas. Sollten die Parameter für diesen Zustand nur gering von den Sollwerten abweichen würde das Plasma sofort zusammenbrechen und sich das Kraftwerk abschalten, wodurch eine erhöhte Energieproduktion oder eine abrupte Leistungsexplosion ausgeschlossen sind.

Weil der Schmelzpunkt der verarbeiteten Metalle (zirka $1000\text{ }^{\circ}C$) nie erreicht wird, ist die Loslösung von radioaktivem Material ebenfalls ausgeschlossen. Die Werkstoffe, die durch Neutronenbeschuss aktiviert werden, sind zwar radioaktiv, haben jedoch deutlich kürzere Halbwertszeiten als jene Isotope die bei einer Kernspaltung entstehen. Ein Großteil des radioaktiven Abfalls ist, laut heutigen Überlegungen, mit vertretbarem technischem Aufwand wiederverwendbar.

3.5.3 Ausblick

Bis heute konnte zumindest beim magnetischen Einschluss noch kein positiver Wirkungsgrad erzielt werden. Bei der Trägheitsfusion gibt es weniger gesicherte Informationen wie nahe man am Durchbruch ist, da diese, vor allem von den USA, primär für thermonukleare Waffen entwickelt wird und somit größtenteils unter Geheimhaltung steht. Viele Experten schätzen den Erfolg der Trägheitsfusion geringer ein als jenen des magnetischen Einschlusses [4].

Die Kernfusion steht noch vor einer Vielzahl ungelöster Probleme und der Durchbruch wird wohl weiterhin einige Zeit auf sich warten lassen, jedoch sind die Aussichten auf längere Zeit durchaus positiv zu bewerten [35].

Kapitel 4

Evaluierung der Literatur und Aufbau eines LSC Messplatzes

Die Flüssigszintillation ist die effektivste und am weitesten verbreitete Methode, um Tritium zu messen. Weitere Methoden zur Tritiumanalytik und Überwachung sind [9]:

- Ionisationskammern zur Messung und Überwachung von gasförmigem 3H , wobei wie in jeder Ionisationskammer der Strom proportional zur Menge des gasförmigen Tritiums ist. Diese Instrumente werden bevorzugt in Laborräumen, Gloveboxen und Belüftungsrohren eingesetzt.
- Szintillationskristalldetektoren messen das gesamte Molprozent von Tritium in einem Gas, unabhängig von der chemischen Zusammensetzung. In der Messkammer befindet sich ein Kristall, welcher dem zerfallenden Tritium ausgesetzt wird, wodurch Lichtimpulse im Kristall produziert werden, welche entweder direkt gemessen werden oder indirekt über einen im Kristall entstehenden Strom. Diese Methode eignet sich für hohe 3H -Konzentrationen.
- Massenspektrometer werden als Analysemethoden eingesetzt, um die individuellen Komponenten eines Gases zu erfassen. Das Messgas wird hierbei mit sehr geringem Druck ($\sim 1-5$ kPa) in die Messkammer eingeleitet und dort ionisiert. Die produzierten Ionen werden nach ihren Massen aufgetrennt und somit proportional zum Partialdruck der Komponenten im Messgas analysiert.
- Die Flüssigszintillation ist, wie schon erwähnt, die gebräuchlichste Methode und auf diese wird im Folgenden noch intensiv eingegangen.

Flüssigszintillation wird zur Umweltüberwachung in einigen wichtigen Bereichen eingesetzt [26]:

- Zum messen von natürlichen Radionukliden wie zum Beispiel *Ra*- und *U*-Isotope, ^{210}Pb , ^{222}Rn , ^{231}Pa oder ^{234}Th . Es sei hier allerdings angemerkt, dass sich *Ge*- und *Si*-Detektoren besser eignen, da eine höhere Messgenauigkeit und vor allem eine höhere Auflösung erreicht werden kann.

- Zur Umweltüberwachung von Radionukliden wie 3H , ^{14}C , ^{35}S , ^{55}Fe , ^{85}Kr , ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{99}Tc , oder ^{241}Pu .
- Beim Rückbau von Atomwaffen zum Durchführen von Wischtests auf möglicherweise kontaminierten Oberflächen.
- Zur Altersbestimmung mittels Radiokarbon (^{14}C) Methode.
- Zur Grundwasserüberwachung insbesondere bezugnehmend auf 3H .

Die nachfolgende Tabelle 6 gibt einen Überblick über einige radioaktive Nuklide, die mittels Flüssigszintillation gemessen werden können, sowie einen Vergleich der maximalen Efficiencies zwischen LSC und Gammaskopmetrie (sofern diese im konkreten Fall möglich ist). Sollte bei γ -Efficiency nv (nicht verfügbar) angeführt sein, ist es dennoch möglich, dass das betroffene Nuklid über etwaige Folgeprodukte mit denen es im Gleichgewicht ist gemessen werden kann. Die Emissionswahrscheinlichkeit (EWS), sowie die Efficiencies (ϵ) sind hier absolute Werte und keine Prozentangaben.

Tabelle 6: Radionuklidübersicht für LSC [28]

Nuklide	HWZ	Strahlung	Maximale Energie (MeV)	EMS	LSC- ϵ	γ - ϵ
3H	12,43 a	β^-	0,018	1,00	0,60	nv
^{14}C	5730 a	β^-	0,156	1,00	0,95	nv
^{40}K	$1,26 \cdot 10^9$ a	β^- γ	1,310 1,460	0,89 0,11	0,96	0,02
^{60}Co	5,27 a	β^- β^- γ γ	0,318 1,48 1,173 1,332	0,99 0,0012 1,00 1,00	0,98	0,2
^{85}Kr	10,8 a	β^- β^- γ	0,670 0,150 0,514	0,996 0,004 0,004	0,96	0,046
^{90}Sr	50,5 d	β^-	0,546	1,00	0,97	nv
^{99}Tc	$2,14 \cdot 10^3$ a	β^-	0,292	1,00	0,98	nv
^{137}Cs	30,2 a	β^- β^- γ	0,514 1,176 0,662	0,935 0,065 0,85	0,99	0,30
^{210}Pb	21 a	β^- β^- γ	0,015 0,061 0,047	0,81 0,19 0,04	0,98	nv
^{210}Bi	5 d	β^-	1,161	1,00	0,99	nv
^{210}Po	$2,14 \cdot 10^3$ a	α	5,300	1,00	1,00	nv
^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$ a	α	4,200	1,00	1,00	nv
^{241}Pu	13,24 a	β^-	0,020	0,99	1,00	nv

In diesem Kapitel werden weiters die Messgeräte sowie die Messorte, die zur Tritiumanalytik eingesetzt wurden vorgestellt. Vier Messgeräte kamen zum Einsatz, wobei sich teilweise große Unterschiede ergaben. Grundsätzlich wurden alle Messgeräte zur Flüssigszintillation und Lumineszenzmessung von unterschiedlichen radioaktiven Isotopen wie ^3H , ^{14}C , ^{40}K und einigen weiteren konstruiert.

4.1 Szintillationstechnologie

Bei der Flüssigszintillation handelt es sich um eine Messmethode zur Bestimmung der Aktivitäten von Radionukliden über die Rate von Photonen, die aus der Probe emittiert werden. Kommerzielle Flüssigszintillation gibt es seit 1953 und sie wurde seither stetig verbessert. Im Folgenden wird nur auf den β -Zerfall eingegangen.

Alphastrahler sind zwar detektierbar jedoch geben diese Teilchen ihre Energien (meist größer als 2 MeV) bereits nach einer sehr geringen Wegstrecke ab, wodurch ein Spektrum entsteht, welches sehr breit (über einen Bereich von 1 MeV) ist. Bei einem α -Zerfall entstehen jedoch grundsätzlich radionuklidspezifische Peaks. Aus diesem Grund können einzelne Radionuklide nicht gemessen werden sondern, sofern Interesse an etwaigen α -Strahlern besteht, nur die gesamten α - und β -Zählraten einer Probe. Es können somit nur sämtliche Zerfallsereignisse einer Messprobe detektiert werden und anschließend über diverse Abschätzungen auf die Aktivität der Probe rückgeschlossen werden.

Das über den radioaktiven Zerfall emittierte β -Teilchen besitzt eine kinetische Energie, welche innerhalb der Probe stetig abgegeben wird. Für Tritium ist diese Wegstrecke aufgrund der geringen Energie des β^- -Teilchens sehr kurz, weswegen sichergestellt werden muss, dass der Energietransfer zwischen Probe und Lösung (vergleiche Kapitel 4.2) effizient geschieht. Die Energie wird dabei entweder über Reibung beziehungsweise Wärme, Ionisierung oder Anregung der Moleküle in der Lösung abgegeben. Sind die Moleküle der Lösung angeregt, so ist die Bestrebung in den Grundzustand zu kommen, was über die Emittierung eines Photons geschieht. Diese Photonen werden über die PMT (photomultiplier tubes) gemessen und damit kann auf die Aktivität der Probe rückgeschlossen werden. Die Szintillationslösung (Cocktail) ist eine Mischung aus Lösungsmittel und Lösung. Die angeregten Lösungsmittelmoleküle können ihre Energie untereinander transferieren aber auch an die Lösung, die als Szintillator fungiert, abgeben. Die durch diesen Energieübertrag angeregte Elektronenwolke des Lösungsmittelmoleküls fällt wieder in den Grundzustand zurück und die überschüssige Energie wird in Form von Photonen abgegeben.

Ein β -Teilchen kollidiert mit mehreren Lösungsmittelmolekülen (S) und regt somit viele Szintillatormoleküle an, die ihrerseits beim Zurückfallen in den Grundzustand Photonen (P) emittieren (siehe Abb. 9). Die Intensität des Lichtes beziehungsweise des Photons ist proportional zur ursprünglichen Energie des β -Teilchens. Für Tritium ist dieser Energiebereich, wie bereits erwähnt, zwischen 0 und 18,6 keV.

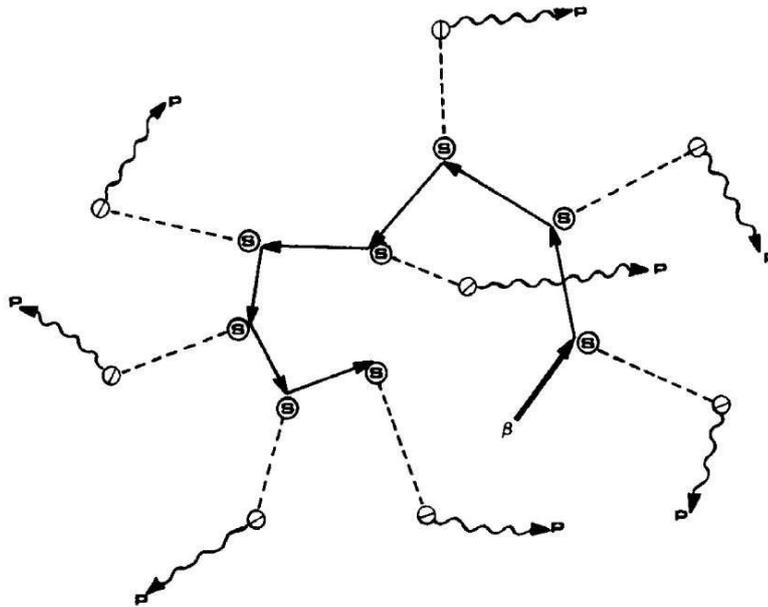


Abb. 8: Kollisionsprozess in einer Probe [25]

Die relative Intensität des Lichtes hängt dabei von vielen Faktoren ab:

- Von der Art des Szintillationscocktails (vergleiche 4.2)
- Vom zu untersuchenden Radionuklid (bei ^{14}C ist die Efficiency beispielsweise deutlich höher als bei ^3H)
- Von der Menge des zu untersuchenden Radionuklides
- Von den gelösten Stoffen, welche die Probe verunreinigen und mit der Energieübertragung interferieren
- Vom Material des Probenfläschchens (Unterschied zwischen Glas und Plastik)
- Von diversen chemischen Prozessen, welche mit dem Energieübertrag interferieren

Um die Photonen detektieren zu können, benutzt man PMT (photomultiplier tubes). Die Innenseite eines PMT ist mit einem photosensitiven Material überzogen, das die eintreffenden Lichtteilchen in elektrische Energie in Form von negativ geladenen Photoelektronen umwandelt. Dabei wird das entstandene Elektron über eine angelegte Beschleunigerspannung kaskadenartig zur Anode hin gesaugt.

An den sogenannten Dynoden werden die Elektronen vervielfacht und somit entsteht eine Lawine von Sekundärelektronen, die letztendlich das Signal übertragen, das proportional zur Intensität des einfallenden Photons ist (siehe Abb. 10). Üblicherweise besteht ein PMT aus 12 Dynoden (oftmals auch Elektroden genannt).

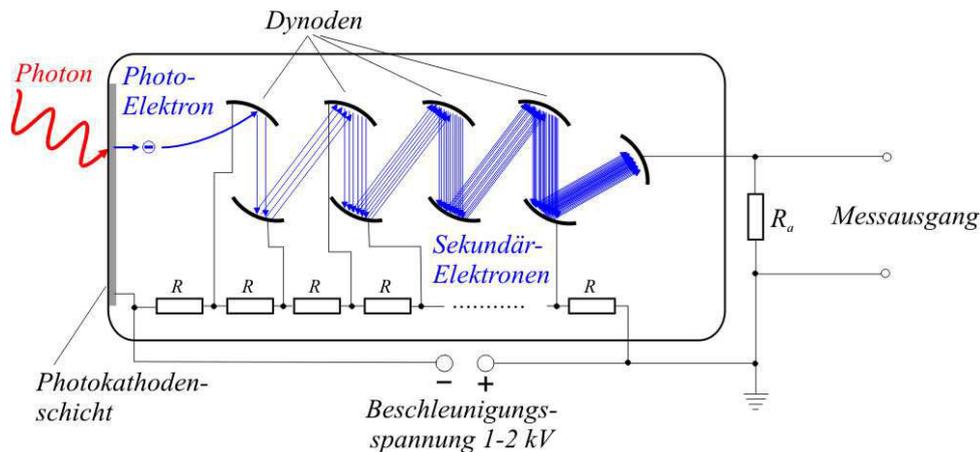


Abb. 9: PMT (photomultiplier tube) [39]

In einer ersten Näherung kann die Umwandlung von der Zerfallsenergie des β -Teilchens in Photonenenergie als linear angenommen werden. Es werden dabei zirka 10 Photonen pro keV produziert. Ein Teilchen mit einer Energie von 100 keV produziert über Dissipation somit näherungsweise 1000 Photonen, die von den PMT linear gemessen werden können.

Das Signal der beiden PMT wird summiert und der produzierte Puls hat eine Amplitude, welche genau diesen 100 keV entspricht. Die Amplitude des analogen Signales wird über einen hochgeschwindigkeits ADC (*analog to digital converter*) in ein digitales Signal umgewandelt. Da auch diese Umwandlung linear funktioniert, werden über den Spektrenanalysator (siehe Kapitel 4.8.2.2) sämtliche Zerfallsereignisse über das gesamte Spektrum des zu messenden Radionuklides aufgezeichnet.

Das verwendete Messgerät speichert die Zerfallsereignisse in 4000 Kanälen, welche 0-2000 keV entsprechen. Ein β -Teilchen mit 6,3 keV wird somit in dem Kanal abgespeichert der den Bereich von 6,0-6,5 keV abdeckt.

In Abbildung 11 ist der Signalweg mittels eines Schaltbildes vereinfacht dargestellt. Man sieht in dieser Grafik zwei PMT, da dies bei modernen Geräten der Standard ist, was bedeutet, dass ein Koinzidenzsignal produziert wird (siehe Kapitel 4.8.2). Nur wenn ein Zerfallsereignis in beiden PMT detektiert wird, kommt es zu einer Signalverarbeitung.

Um jedoch ein Signal zu bekommen muss das β -Teilchen ausreichend Energie haben, um zumindest zwei Photonen zu produzieren. Obwohl die PMT mit einem Reflektor ausgekleidet sind kommt es zu Verlusten. Auch die Photokatode der PMT ist nicht zu 100 % effizient. Die Konversionsrate eines Photons zu einem Photoelektron liegt bei lediglich 30 %. Aufgrund dieser technischen Limitierung können Zerfälle von Tritium nicht zu 100 % gemessen werden, da wegen der niedrigen Energie der β^- -Teilchen (im Mittel bei zirka 6 keV) zu wenig Photonen produziert werden.

Aufgrund dieser Tatsache sieht das β -Spektrum im Niedrigenergiebereich (zwischen 0 und 5 keV) im Experiment anders aus als in Abbildung 6. In diesem Bereich erhält man kaum Ergebnisse, wodurch mitunter die geringere Efficiency von Tritium im Vergleich zu anderen Radionukliden (vgl. Tabelle 6) erklärt werden kann [25].

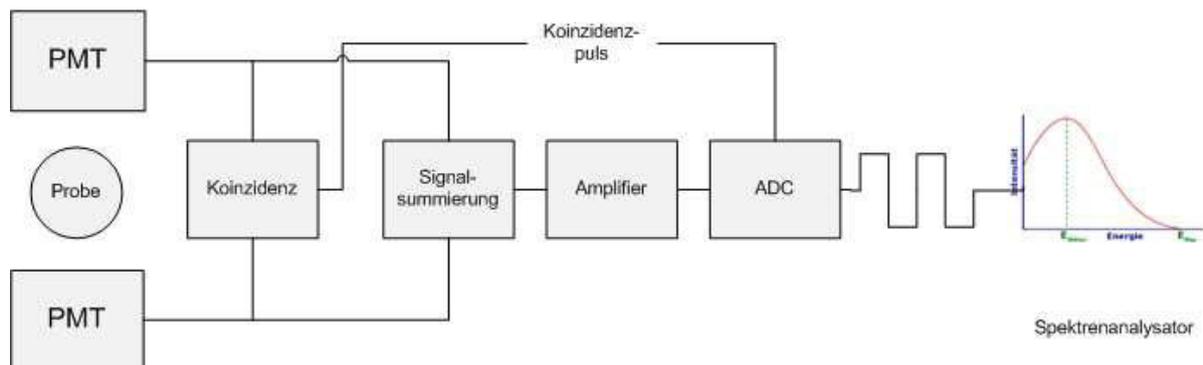


Abb. 10: Signalverarbeitung eines LSC-Messgerätes

4.2 Szintillationscocktails

Die richtige Wahl des Szintillationscocktails ist einer der wichtigsten Schritte, da die Qualität der Messungen davon abhängt, wie gut oder schlecht der Energieübertragungsprozess zwischen β -Teilchen und Photon ist. Es ist vor allen Dingen entscheidend einen Cocktail zu wählen, der für das zu messende Radionuklid geeignet ist. Das Radionuklid muss sich in dem Cocktail lösen können, denn nur wenn es vollständig gelöst ist, kann die bestmögliche Zählausbeute erlangt werden. Nur wenn ein guter „Phasenkontakt“ vorherrscht kann eine hohe Efficiency erreicht werden. Für flüssige Proben (insbesondere Tritiumproben) muss somit ein Cocktail gewählt werden, der sehr hydrophil ist.

Ein weiteres Kriterium ist die Zählausbeute des Cocktails. Je höher diese ist, desto kürzer kann gemessen werden, um die nötige zählstatistische Präzision zu erlangen.

Ein weiterer wichtiger Faktor bei der Wahl des richtigen Cocktails sind die Kosten. Generell kann man davon ausgehen, dass kostenintensivere Cocktails eine bessere Zählausbeute aufweisen. Grundsätzlich können Szintillationscocktails selber hergestellt werden, was jedoch mit einem hohen Personal- und auch Kostenaufwand verbunden ist. Des Weiteren müssen entsprechende Laboreinrichtungen vorhanden sein, da mit teilweise gesundheitsgefährdenden Chemikalien hantiert werden muss.

Kommerziell hergestellte Cocktails sind im Regelfall kostengünstiger und effizienter als selbst hergestellte. Durch die Qualitätssicherung bei nicht selbst hergestellten Cocktails kommt hier auch noch ein enormer Zeitfaktor hinzu. Sollte man sich entscheiden den Cocktail selbst herzustellen, muss in einem relativ zeitintensiven Verfahren (Messung von vielen Proben) die Qualität gesichert werden.

Ein weiteres Auswahlkriterium ist die Verfügbarkeit eines Cocktails. Sollten mehrere Nuklide gemessen werden, kann entweder für jedes Nuklid der geeignetste Cocktail oder ein Universalcocktail verwendet werden. Der Nachteil eines Universalcocktails ist dass die Zählausbeute nicht für jedes Radionuklid optimal ist. Für radionuklidspezifische Messungen, wie zum Beispiel Tritium, ist es besser einen Spezialcocktail zu verwenden.

Das wohl wichtigste Auswahlkriterium ist die Sicherheit. Es gibt große Unterschiede bei den

Flammpunkten und der Toxizität, die nicht außer Acht gelassen werden dürfen. Besonders ein niedriger Flammpunkt kann zu großen Problemen in einem Labor führen.

Ein Flüssigszintillationscocktail setzt sich aus zwei bis vier Bestandteilen zusammen:

- Das Primärlösungsmittel wandelt die kinetische Energie des β -Partikels in Anregungsenergie um
- Das Sekundärlösungsmittel (optional) bindet die Probe in der Nähe des Primärlösungsmittels, um eine höhere Ausbeute zu erlangen
- Der Primärszintillator beziehungsweise die Lösung wandelt die Anregungsenergie in Photonen um, welche letztendlich detektiert werden
- Der Sekundärszintillator (optional) kann die Wellenlänge des Lichtes verschieben

Für die Szintillationstechnik gibt es eine Vielzahl von Cocktails mit unterschiedlicher Zusammensetzung. Grundsätzlich besteht jeder Cocktail aus einer Lösung, einem Emulgator (Lösungsmittel) und einem Szintillator. Die zu messende Probe muss in gelöster Form vorliegen und für flüssige Proben bedarf es noch zusätzlicher Emulgatoren, um wässrige Proben in den organischen Lösungsmitteln und Szintillatoren lösen zu können.

Wichtige Parameter für einen Cocktail sind Zählausbeute (Efficiency), ein niedriger Flammpunkt, ein geringer Gehalt an natürlichem ^{14}C , eine hohe Durchlässigkeit für die gebildeten Photonen und eine gute Probenaufnahmekapazität.

Grundsätzlich werden zwei Cocktails unterschieden: klassische und Sicherheitscocktails (*safer cocktails*).

Die Basis eines Cocktails besteht, wie bereits erwähnt, aus einem Lösungsmittel. Bei klassischen Cocktails sind dies Lösungsmittel wie zum Beispiel Benzol, Toluol, Xylol oder Pseudocumol. Diese klassischen Lösungsmittel haben einen niedrigen Flammpunkt (teilweise bereits bei Raumtemperatur wie Tabelle 7 zeigt) und oftmals verursachen sie aufgrund der hohen Dampfdrücke eine starke Geruchsbelästigung. Des Weiteren konnte festgestellt werden, dass diese Lösungsmittel großteils zumindest leicht toxisch und kanzerogen sind. Aus diesen Gründen werden klassische Cocktails kaum noch eingesetzt sondern die sogenannten „*safer cocktails*“ [9].

Tabelle 7: Flammpunkte einiger Flüssigkeiten in der Luft [9]

Stoff	Flammpunkt [°C]
Ultima Gold XR Cocktail	150
Opti-Flour Cocktail	150
Pseudocumol	50
Xylol	25-32
p-Dioxane	12
Methyl Alkohol	11
Ethyl Alkohol (rein)	9
Toluol	7
Benzen	-11

Sicherheitscocktails werden auf Basis von langkettigen Alkybenzolen hergestellt. Durch die hohen Flammpunkte (weit oberhalb der Raumtemperatur) ist das Arbeiten mit solchen Cocktails im Labor sicherer. Bis jetzt wurden sie nicht als krebserregend, fruchtschädigend oder erbgutverändernd eingestuft und sind außerdem biologisch abbaubar [31].

Für Primärszintillatoren wird heute großteils PPO (2,5-diphenyl Oxazol) verwendet. Dieser Szintillator weist eine gute Efficiency in moderaten Konzentrationen, gute Löslichkeit und niedrige Kosten auf und reagiert zudem nicht mit den meisten Chemikalien, die in der LSC-Technologie zum Einsatz kommen.

Für eine gute Zählhausbeute und eine gute Quenchresistenz reichen bereits 5-6 g PPO pro Liter Cocktail. Zu viel PPO (ab ungefähr 15 g) kann dazu führen, dass sich der Cocktail selbst quencht.

Wenn sich das Radioisotop mit Hilfe des Lösungsmittels gelöst hat werden die Photonen homogen in alle Richtungen abgestrahlt. Sollte sich das Radionuklid nicht vollständig lösen, kommt es zur Selbstabsorbktion. Das β -Teilchen besitzt eine gewisse Reichweite, die sowohl von der Energie, als auch von dem Medium in dem es sich bewegt, abhängig ist. Besonders beim Zerfall von Tritium kann dies aufgrund der sehr geringen Energie des entstanden β^- -Teilchens und somit geringen Reichweite ein Problem werden. Sobald es zur Selbstabsorbktion kommt werden keine Photonen mehr produziert und somit sinkt die Zählhausbeute [25].

Bei den Messungen, die für diese Arbeit durchgeführt wurden, wurde der *Ultima Gold XR* Cocktail (siehe Abbildung 13) eingesetzt, da er speziell für hohe Aufnahmekapazitäten von wässrigen Proben entwickelt wurde. Dieser Cocktail verwendet 2,6-Di-isopropylnaphtalin (DIPN Abb. 12) als Lösungsmittel und ist auf eine hohe Quenchresistenz ausgelegt [9].

Bei einem verschlossenen und mit Argon gereinigtem Standard (Standard von Perkin und Elmer) kann eine Efficiency von bis zu 65 % erreicht werden. Dieser Standard wird beispielsweise zur Normalisierung des Messgerätes eingesetzt. Mit dem Ultima Gold XR Cocktail kann eine Efficiency von zirka 50 % für kaum gequenchte Tritiumproben erreicht werden. In den meisten Fällen liegt bei radioökologischen Untersuchungen aufgrund des erhöhten Quenches die Efficiency bei ungefähr 25 %. Für Tritium weist der Cocktail eine hohe Quenchresistenz auf, er ist biologisch abbaubar und besitzt einen Flammpunkt bei zirka 150 °C (Sicherheitscocktail) [31].

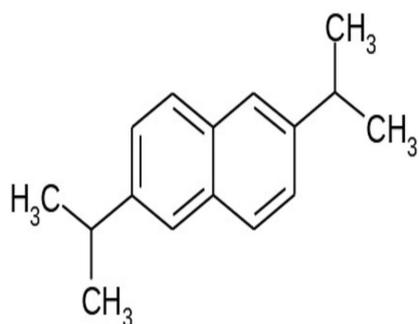


Abb. 11: DIPN Strukturformel [9]



Abb. 12: *Ultima Gold XR* Cocktail

4.3 Anreicherung

Es gibt verschiedene Methoden um Proben zur besseren Messbarkeit anzureichern. Die etablierten Methoden reduzieren sich jedoch auf die elektrolytische und die chemische Anreicherung. Die elektrolytische Anreicherung basiert auf dem Prinzip der Isotopenselektion. Da HTO im Vergleich zu H_2O oder HDO (D steht für Deuterium) eine leicht erhöhte Bindungsenergie hat teilt es sich weniger leicht in H_2 und O_2 auf. Somit werden bei jedem Phasenübergang, wie zum Beispiel von Wasser auf Dampf, Isotopenfragmente produziert und somit das Tritium im Wasser angereichert. Eine 95-prozentige Volumenreduktion würde einige Tage dauern weswegen man Multizellenelektrolyse mit bis zu 40 Elektrolysezellen verwendet [26]. Die Elektrolyse für 1 g Wasser benötigt zirka drei Amperestunden [19].

Die chemische Anreicherung mittels Benzen als Lösungsmittel bietet eine weitere Methode, ist jedoch sehr zeitintensiv. Des weiteren müssen sehr hohe Sicherheitsvorkehrungen getroffen werden, da Benzen krebserregend ist.

Für die meisten radiologischen Anwendungen kann die Probe ohne Anreicherung direkt gemessen werden (mit, oder ohne Destillation). Die chemische Anreicherung wird de facto, aufgrund der bereits genannten Schwierigkeiten nicht verwendet, da sie auch keinen großen Vorteil bezüglich der Nachweisgrenze bringt. In größeren Laboratorien ist eine elektrolytische Anreicherung sinnvoll, da die Nachweisgrenze deutlich gesenkt werden kann [26]. Der Nachteil der Elektrolyse ist in jedem Fall der relativ hohe zusätzliche Kostenaufwand einer Anlage.

4.4 Quenching

Das sogenannte Quenching ist in der Flüssigszintillationstechnologie ein sehr wichtiger Faktor. Eine Probe, welche entweder chemisch, durch Photonen oder durch eine Farbtönung verunreinigt ist, weißt einen Quench auf. Dadurch verschiebt sich einerseits das Maximum der emittierten β -Teilchen in Richtung Energienullpunkt andererseits werden bei höheren Energien weniger Teilchen emittiert.

Es sieht somit aus, als ob das Spektrum in Richtung Nullpunkt zusammengedrückt wird. Abbildung 14 zeigt eine ^{14}C Probe, welche mittels Aceton kontinuierlich gequenchet wurde. Deutlich sichtbar ist die angesprochene Verschiebung des Spektrums in Richtung Energienullpunkt.

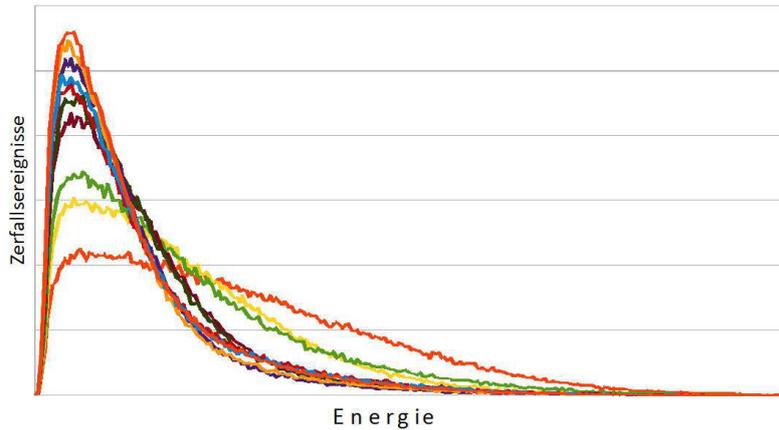


Abb. 13: Quencheffekt

Man unterscheidet drei Arten des Quenchings:

- Beim Photonenquenching handelt es sich um nicht vollständig transferierte β -Teilchen zu den Lösungsmittelmolekülen des Cocktails.
- Durch chemisches Quenching kommt es zu einem Energieverlust im Transfer zwischen Lösungsmittel und gelöstem Stoff, wodurch die Photonen weniger Energie haben und somit das Spektrum, wie bereits erwähnt, verschoben wird.
- Durch den Farb- beziehungsweise optischen Quench kommt es zu einer Abschwächung der Photonen, welche im Lösungsmittel entstehen.

Bei einem chemischen Quench kommt es somit noch vor der Bildung von Photonen zu einer Absorption der β -Energie, wohingegen der Farbquench das Resultat der Abschwächung von Photonen im Lösungsmittel ist. Bei einer Messung kommt es zu einem summativen Quencheffekt dieser drei Phänomene [28].

4.5 Messmethoden

Über den Tricarb können bis zu vier Methoden zur Single Label Auswertung der Zählraten ausgewählt werden. Für diese Arbeit wurde keine direkte Methode gewählt, sondern die automatisierten Algorithmen umgangen, um eventuelle Fehler des Messsystems auszuschließen. Einige dieser Methoden wurden zur Überprüfung herangezogen um die Messwerte zu verifizieren. Folgende Tabelle soll einen Überblick über die Vor- und Nachteile der Methoden geben:

Tabelle 8: Auswertemethoden des Tricarb [28]

Methode	Vorteile	Nachteile
Single Label DPM mittels SIS	kostengünstig	es wird eine Quenchkurve benötigt
Single Label DPM mittels tSIE	hohe statistische Genauigkeit, unabhängig von einigen Quencheffekten	es wird eine Quenchkurve benötigt
Single Label DPM mittels Efficiency Tracing	sehr einfach, es wird keine Quenchkurve benötigt	relativ ungenau, ungeeignet für 3H
Single Label Direct DPM	sehr einfach, es wird keine Quenchkurve benötigt	bei erhöhtem Quench wird die Methode sehr ungenau

Bei der ersten Methode wird der SIS als QIP (Quench Indicating Parameter) verwendet, wobei ein gewichtetes Mittel des Probenspektrums erstellt wird, um den SIS zu ermitteln. Anschließend muss eine Quenchkurve aufgenommen werden (siehe Kapitel 4.4), in der die Efficiency über den QIP aufgetragen wird, um für Proben mit nicht bekanntem Quench über den SIS auf die Efficiency schließen zu können. Dies ist die am meisten verbreitete Methode, da keine zusätzliche Hardware, wie ein externer Standard (wird für den tSIE benötigt), notwendig ist.

Die Auswertung über den tSIE funktioniert praktisch analog, da auch hier die Aufnahme einer Quenchkurve obligatorisch ist. Die Methode via tSIE ist jedoch bei weitem ausgereifter und immun gegen diverse Störeffekte. Sofern ein System mit einem Barium-133 Standard als externe Quelle ausgestattet ist, sollte diese Methode aufgrund der Genauigkeit bevorzugt werden [28]. ^{133}Ba zerfällt über einen β^- -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 10,5 Jahren zu ^{133}Cs , das stabil ist und somit keine Folgeprodukte aufweist [21].

Efficiency Tracing kann bei Radionukliden, die reine β -Strahler sind und eine Emissionsenergie größer als 40 keV haben, angewendet werden. Auch hier wird keine Quenchkurve benötigt. Man benötigt lediglich einen ungequenchten ^{14}C -Standard. Die Spektren der Proben werden in 6 Regionen mit dem ungequenchten Standard verglichen und somit über eine Interpolationsroutine korrigiert. Aufgrund der Tatsache, dass nur Proben über 40 keV (wie zum Beispiel: ^{14}C , ^{32}P , ^{36}Cl , ^{45}Ca , ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{81}Rb , ^{90}Sr , ^{131}I oder ^{147}Pm) mit dieser Methode gemessen werden können fällt Tritium weg.

Die direct DPM Methode ist vor allem zeitsparend, da keine Quenchkurve aufgenommen werden muss und die Probe einfach direkt über den tSIE ausgewertet wird. Da jedoch keine Quenchkurve für die Efficiency existiert, sind die Messergebnisse nicht so genau. Bei sehr stark gequenchten Proben nimmt die Genauigkeit noch weiter ab, beziehungsweise können zu stark verunreinigte Proben nicht mehr ausgewertet werden (tSIE < 200) [28].

Von den vorgestellten Methoden wurde in dieser Arbeit zur Auswertung ausschließlich die Methode über den tSIE und eine Quenchkurve gewählt.

4.6 Probenaufbereitung

Die richtige Probenaufbereitung ist in der Flüssigszintillation sehr wichtig, da die Messergebnisse bei inkorrektur Handhabung weder reproduzierbar noch korrekt wären. Bei klaren Flüssigkeiten, wie zum Beispiel Trinkwasser, ist keine weitere Verarbeitung, wie etwa Destillation oder elektrolytische Anreicherung (vgl. Kapitel 4.3), notwendig und daher können diese direkt gemessen werden.

Bei starker Verschmutzung ist es unumgänglich die Probe zumindest zu filtrieren, im Idealfall jedoch zu destillieren um zum Beispiel gelösten organischen Kohlenstoff zu entfernen und generell die Probenqualität zu erhöhen [26].

Sowohl die Probe als auch der Cocktail wurden mittels Pipetten (siehe Abb. 15) befüllt und parallel über eine kalibrierte Waage überprüft. Die 10 ml Pipette, mit welcher sowohl die Probe als auch der Cocktail befüllt wird, ist ebenfalls qualitätsgesichert und wies bei der Überprüfung der Firma *Socorex* bei 1 ml einen mittleren Fehler von 0 % und bei 10 ml einen mittleren Fehler von 0,24 % auf [34]. Eine Überprüfung durch eine Waage ist nicht zwingend notwendig, jedoch eine gute Kontrolle für richtiges pipettieren. Die Dichte des Cocktails kann, wie Wasser, mit $1 \frac{g}{cm^3}$ angenommen werden wodurch die Überprüfung mittels einer Waage sehr viel einfacher wird [29].

Bei der Probenaufbereitung ist es wichtig Einweghandschuhe zu tragen, um keine Fingerabdrücke auf den Vials zu hinterlassen, da diese die Messung beeinflussen können. Nach dem Befüllen der Vials wird die Probe am Deckel beschriftet und nicht am Vial selbst. Die bei dieser Arbeit verwendeten Probenfläschchen (siehe Abbildung 16) wurden zusätzlich mit vergälltem 96 % Ethanol (C_2H_6O) gereinigt.

Nach der Probenaufbereitung werden die Vials geschüttelt, um ein homogenes Gemisch aus Probe und Cocktail zu erzeugen. Anschließend sollten die Fläschchen ehestmöglich lichtdicht verpackt werden, da der Cocktail durch die Photonen bereits angeregt werden kann. Sollte die Probenflüssigkeit milchig wirken, muss mit dem Starten der Messung noch etwas gewartet werden bis die Flüssigkeit klar ist.



Abb. 14: Verwendete Pipetten



Abb. 15: Verwendete Vials

4.7 Verarbeitung

Wichtig bei der Probenverarbeitung ist zum einen die richtige Wahl des Cocktails (siehe Kapitel 4.2) und zum anderen die richtige Mischung. In der Literatur wird meistens ein Mischungsverhältnis von 12 ml Cocktail zu 8 ml Probe angegeben. Standardmäßig werden bei den verwendeten Messgeräten Vials mit 20 ml Volumen eingesetzt, wobei auch kleinere Vials verwendet werden könnten.

Um die Effizienz dieses Mischungsverhältnisses zu verifizieren, wurde wiederholt mit unterschiedlichen Zusammensetzungen gemessen (Tabelle 9). Bei allen Proben wurden 0,25 ml eines 3H Standards des ATI genommen, der im April 2005 eine Aktivitätskonzentration von $3980 \frac{dpm}{ml}$ aufwies. Die Differenz zwischen Standard und verwendetem Cocktail wurde mit deionisiertem Wasser aufgefüllt.

In diesem Fall wurde auf eine Aktivitätsauswertung verzichtet und nur die cpm (counts per minute) verglichen, da es lediglich herauszufinden galt, welche Mischung am effektivsten ist.

Die Messzeit wurde auf 2 h begrenzt beziehungsweise wurde die Messung unterbrochen wenn eine 2 % Unsicherheit des $2 \cdot \sigma$ Vertrauensbereiches erreicht wurde. Sämtliche Proben wurden fünf mal gemessen, um Systemfehler des Messgerätes auszuschließen und anschließend wurde ein Mittelwert aus den Ergebnissen genommen.

Tabelle 9: Cocktailkonzentrationen (08.11.2012)

Cocktailkonzentration [ml]	Ereignisse pro Minute cpm
8	95,05
9	117,93
10	119,72
11	135,81
12	186,61
13	161,67
14	170,77

Hieraus ist ersichtlich, dass eine Mischung von 12:8 zwischen Cocktail und Probe die beste ist.

Bei der richtigen Probenaufbereitung und Verarbeitung können Nachweisgrenzen der Aktivitätskonzentration von wenigen $\frac{Bq}{l}$ erreicht werden [26].

4.8 Messort und Messgeräte

Die Messungen wurden im Low-Level Counting Laboratory (LLCL) Arsenal durchgeführt. Die Abschirmung ist besonders wichtig, da aufgrund der sehr energiereichen kosmischen Strahlung ein Hintergrund entsteht, der vor allem im Niedrigenergiebereich (3H oder auch ^{14}C) dominant ist, obwohl er natürlich auch in Bereiche mit höheren Energien einwirkt.

Zur Hintergrundreduktion kann die Bleiummantelung des Messgerätes verstärkt, oder das Messgerät selber in einen gut abgeschirmten Raum gestellt werden. Es kann auch die Spannung an den beiden PMT reduziert werden, was natürlich auch eine geringere Zählhausbeute bedeutet [26].

Das LLC Labor Arsenal ist eine spezielle Einrichtung für Low-Level Radioaktivitätsmessungen. Zum Schutz vor kosmischer und terrestrischer Strahlung wurde der Messraum (siehe Abb.17) mit einer 1,6 m dicken Schwerbetonschicht, 3 cm Low-Level Blei und 0,6 cm Low-Level Stahl ummantelt. Der Messraum wurde für Umweltradioaktivitätsmessungen errichtet, da aufgrund der niedrigen Aktivitätskonzentration eine Reduktion des Hintergrunds evident ist.

Der Messraum wird für Isotopenhydrologie, Geowissenschaften und den angewandten Strahlenschutz verwendet. Neben der Flüssigszintillation wird der Messraum noch für gammaspektrometrische Messungen benutzt [23].

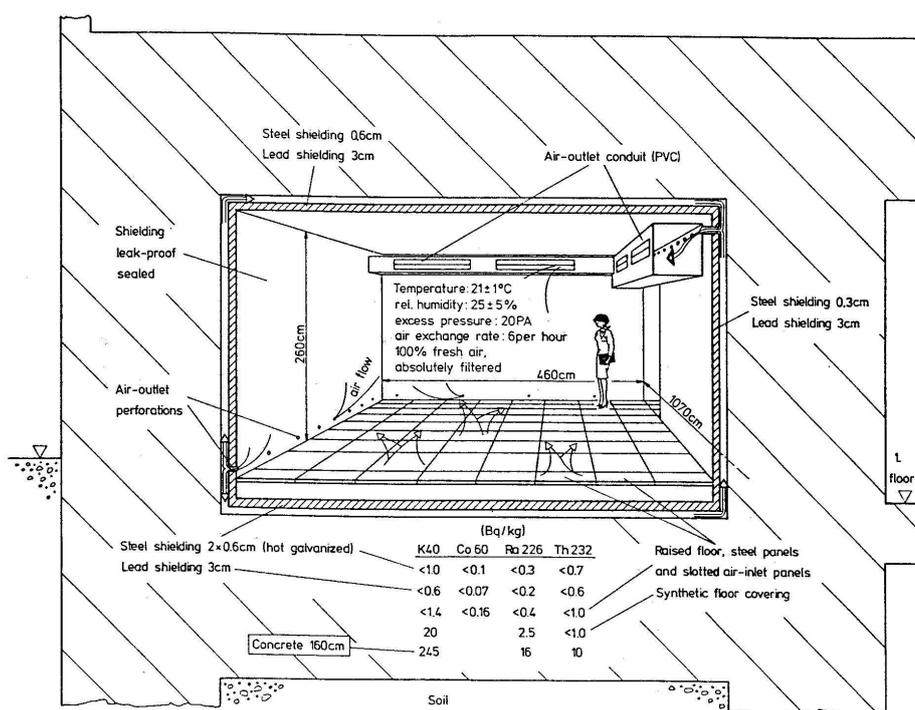


Fig. 1. Cross sectional view of room 1.

Abb. 16: Querschnitt des LLCL Messraumes [23]

4.8.1 Triathler

Der *TriathlerTM Multilabel Tester Liquid Scintillation Counter* ist ein kompaktes Flüssigszintillationsmessgerät. Aufgrund seiner Größe, kann er mobil eingesetzt werden. Der Triathler besitzt jedoch nur einen Photodetektor, wodurch die Genauigkeit der Messungen rapide abnimmt. Der Triathler kann sehr gut bei höheren Aktivitätskonzentrationen eingesetzt werden, zum Beispiel bei Wischtests von Arbeitsflächen, welche potentiell radioaktiv kontaminiert sind [13].

Für Aussagen im Low-Level Bereich ist dieses Messgerät bezüglich Tritium nur bedingt geeignet, weshalb die Ergebnisse dieses Gerätes großteils verworfen werden mussten, da sich keine qualitativ hochwertigen Aussagen treffen ließen. Für Radonmessungen in Wasser wurde dieses Gerät bereits erfolgreich eingesetzt.

4.8.2 Tricarb

Im Zuge dieser Arbeit wurden Vergleichsmessungen an drei Geräten der Marke Tricarb durchgeführt. Zum einen waren dies die im LLCL Arsenal aufgestellten Messgeräte Tricarb 1700 beziehungsweise 2100. Aufgrund diverser technischer Pannen wurde der Tricarb 1700 nach geraumer Zeit durch das neuere Modell 2100 (siehe Abb. 18) ersetzt. Das Ersatzgerät wurde unter anderem aufgrund des Ausfalls der PMT (photomultiplier tubes) evident. Zum anderen wurde ein drittes Gerät (Tricarb 2700) des Atominstututs der Technischen Universität Wien zu Vergleichsmessungen und zur Verifizierung der Messergebnisse herangezogen.

Sämtliche Geräte haben grundsätzlich dieselbe Bauweise und unterscheiden sich maximal in der elektronischen Signalendverarbeitung oder etwa in dem Umstand, dass die Nachfolgemodelle des Tricarb 1700 bereits einen automatischen Probenwechsler besitzen. Sämtliche in diesem Kapitel vorgestellten technischen Details beziehen sich somit auf das Messgerät Tricarb 2100.

Der Tricarb 2100 ist 48 cm hoch, 103 cm breit, 82 cm tief und wiegt 221 kg. Das Messsystem besteht aus einem Szintillationsdetektor, Pulsanalysator, Probenwechsler (bei Tricarb 1700 nicht vorhanden) und diversen Elementen zur Signalendverarbeitung, Darstellung und Kommunikation (Bildschirm, Eingabegerät, etc.).

Die zu messenden Proben werden über den automatischen Probenwechsler in die Messkammer gefahren, welche sich unterhalb des Probenwechslers befindet und lichtundurchlässig ist, um keine Störungen zu produzieren. Der Detektor besteht aus zwei PMT, welche an eine optische Kammer gekoppelt sind. Zur Abschirmung der Messkammer werden noch ein magnetisches Schild und eine zirka 5 cm dicke Bleischicht eingesetzt. Weiters befindet sich ein Reflektor in der Kammer um die Efficiency der Messung weiter zu erhöhen [28].

Ein wichtiges Merkmal des Tricarb ist die Existenz von zwei PMT (im Gegensatz zum Triathler). Diese photomultiplier tubes überprüfen die entstandenen Lichtimpulse auf Koinzidenz. Bei einem Zerfallsereignis wird das entstandene Licht homogen in die Messkammer ausgestrahlt, dadurch kann es von beiden PMT detektiert werden und zählt als Ereignis. Wenn etwa ein Myon aus der kosmischen Strahlungen auf einen der beiden PMT trifft wird dieses somit nicht als Ereignis gezählt.

Mit dieser Methode kann der Hintergrund reduziert werden. Ein nukleares Zerfallsereignis pro-

duziert in etwa 10 Photonen pro keV. Diese entstandene Energie dissipiert bereits nach zirka 5 Nanosekunden. In dieser Zeit treffen die Photonen, da der Energieübertrag in der Lösung homogen verteilt ist (siehe Abschnitt 4.1), beide PMT quasi gleichzeitig und somit wird das Signal auch als tatsächliches Zerfallsereignis gewertet [25].

Der Tricarb verwendet zur weiteren Reduzierung des Hintergrunds das von Packard patentierte „TR-LSC (time-resolved LSC)“ System. Mit Hilfe dieser Methode werden die „after-pulses“, die im Regelfall mehr sind (aufgrund des Hintergrunds), als jene von einem tatsächlichen β -Zerfall, analysiert. Diese Methode kann jedoch die Efficiency negativ beeinflussen.

Um den Hintergrund weiter zu reduzieren, wurde in LSC-Detektoren ein Reflektor in der Messkammer (um das Probenfläschchen) eingebaut. Dieser Plastikschild für den Detektor ist optisch an die PMT gekoppelt und mit einem Reflektormaterial ummantelt. Bei Verwendung dieses Schutzes vor externer Strahlung muss darauf geachtet werden, dass das Absorptionsspektrum nicht dasselbe ist, wie jenes des Cocktails. Aus diesem Grund werden vor der konventionellen Inbetriebnahme des Messgerätes immer mehrere Cocktails getestet.

Neuere Technologien verwenden Bismuth Germanat ($Bi_4Ge_3O_{12}$ oder BGO) als Detektorschutz. BGO unterdrückt die Gamma- und Myonkomponenten der kosmischen Strahlung um einige cpm, jedoch wird auch die Efficiency etwas schlechter.

Um Low-Level Messungen durchführen zu können, muss der *High Sensitivity Count Mode (HSCM)* aktiviert werden. Durch das Verwenden des HSCM ist eine weitere Reduktion des Hintergrunds um bis zu 40 % möglich, wobei auch die Efficiency schlechter wird. Die FOM (vgl. Kapitel 3.3.2) wird jedoch um einen Faktor 1,25-2,00 erhöht und somit wird, aufgrund der höheren Detektorleistung, auch die Messzeit signifikant gesenkt. Dieser Hochsensitivitätsmodus wird automatisch abgeschaltet, falls die Zählrate 100 000 cpm übersteigt [26].



Abb. 17: Tricarb 2100

Untersuchungen bezüglich Efficiency, Hintergrund und Cocktailmischverhältnisse ergaben mit Hilfe des Low-Level Count Mode (LLCM) die in Tabelle 10 zusammengefassten Ergebnisse. Für die Versuche wurde der Ultima Gold LLT Cocktail (eine Vorgängerversion des in dieser Arbeit verwendeten Cocktails) verwendet und die Probe in 20 ml Plastik Vials 500 Minuten lang gemessen [27].

Tabelle 10: TR-LSC Leistung [27]

TR-LSC Zählmethode	Probe:Cocktail	ϵ	Hintergrund (CPM)	NWG ($Bq \cdot L^{-1}$)
LLCM	8:12	0,268	2,9	2,79
LLCM mit BGO	8:12	0,246	1,2	1,93
LLCM	10:10	0,228	2,5	2,46
LLCM mit BGO	10:10	21,2	1,1	1,77

Man kann hier sehr gut erkennen, dass die Efficiency mit der Hinzunahme eines BGO Detektorschutzes abfällt jedoch die $FOM = (\frac{E^2}{B})$ verbessert und die Nachweisgrenze (NWG) weiter gesenkt wird. Um bei der Efficiency nicht zu große Einbußen zu haben, wurde in dieser Arbeit stets mit einem Probe-zu-Cocktail-Verhältnis von 8:12 gearbeitet. Besonders bei stark gequenchten Proben, wie sie in der Natur hauptsächlich vorkommen, kann eine zu kleine Efficiency zu Problemen bei der Auswertung führen.

4.8.2.1 Pulsanalysator

Ein β -Puls teilt sich in einen prompten und einen verzögerten Puls. Ein Großteil des emittierten Lichtes ist im ersten Puls enthalten, der typischerweise 2-9 Nanosekunden dauert. Die verzögerte Komponente existiert mehrere hundert Nanosekunden. Die Pulsanalyse versucht nun diese „after-pulses“ vom eigentlichen Zerfallsereignis zu unterscheiden und abzutrennen, damit der Hintergrund reduziert wird [26].

Der Pulsanalysator reduziert den Hintergrund, der durch vorhandene Strahlung (zum Beispiel Höhenstrahlung) entsteht. Aufgrund ihrer spezifischen Strahlungscharakteristik unterscheiden sich die Hintergrundpulse durch ihre „after-puls“ Verteilung, welche durch zeitaufgelöstes (TR-LSC) Zählen der Pulse reduziert werden kann. Es wird dabei ein 3-dimensionaler Plot der Aktivität, Energie und den zeitaufgelösten Informationen von jedem Zerfallsereignis erstellt und analysiert [28].

Eine Limitierung der Messgenauigkeit beruht auf der Tatsache, dass die PMT, auch wenn keine Photonen eintreffen, einen geringen Puls produzieren. Der Pulsanalysator misst nun die Pulsamplitude, um unterscheiden zu können, ob das Signal von einem Zerfallsereignis kommt oder vom Hintergrundrauschen des PMT. Die Pulsamplitude ist ebenfalls wichtig wenn mehr als ein Radionuklid in der Probe vorhanden ist [25].

Besonders bei radioökologischen Untersuchungen sind in jeder Probe, die nicht chemisch oder physikalisch bearbeitet wurde, viele Radionuklide vorhanden.

4.8.2.2 Spektrenanalysator

Ein weiteres sehr wichtiges Element ist der Spektrenanalysator. Der Benutzer kann ein vorgefertigtes Energiefenster (über Auswahl der zu messenden Isotope) auswählen, oder selber eines definieren. Des Weiteren kann das Messgerät über einen integrierten externen Standard den sogenannten „transformed spectral index of the external standard (tSIE)“ erzeugen, welcher den Grad des Quenchings in der Probe angibt.

Dieser Spektralindex ist wichtig für die Efficiencykorrektur. Eine einmalig aufgenommene Quenchkurve (siehe Kapitel 4.4) kann gespeichert werden und somit über den tSIE als automatische Quenchkorrektur eingesetzt werden. Die Spektrendaten werden in 4000 linearen Kanälen (0-2000 keV) gespeichert und können auch grafisch dargestellt werden, wodurch auch eine grobe visuelle Kontrolle eines etwaigen Quenchings möglich ist.

Mithilfe dieser Eigenschaften wäre sogar eine direkte Messung der Aktivität (dpm) möglich. Dies wurde in dieser Arbeit nicht verwendet, da der Kontrolleffekt wegfällt. Sollte es einen Fehler in der Verarbeitung der Signale geben, würde dieser nicht auffallen.

Mit Hilfe des Spektrenanalysators ist es möglich Interferenzen zu eliminieren, welche die Messungen stören:

- Chemischer beziehungsweise Farbquench (siehe Kapitel 4.4)
- Chemi- und Photolumineszenz
- Statische Aufladung des Messgerätes
- Wandeffekte zwischen Probe und Vial, beziehungsweise Cocktail und Vial
- Hintergrundstrahlung
- Statisches Rauschen

Bei der chemischen Lumineszenz handelt es sich um die Produktion von Licht aufgrund von chemischen Effekten, die zum Beispiel durch die Interaktion von Peroxiden mit dem Cocktail entstehen. Photolumineszenz entsteht durch die Anregung des Cocktails durch UV-Strahlung, wie zum Beispiel Sonnenlicht. Es ist somit wichtig die Proben und das Messgerät so weit wie möglich vor direkter Lichteinstrahlung zu schützen.

Durch statische Aufladungen im Messgerät beziehungsweise auch in Plastikvials, welche in dieser Arbeit verwendet wurden, kann es zu spontanen Entladungen kommen, wodurch Photonen produziert werden, die mit der Messung interferieren können. Der Spektrenanalysator kann aufgrund der Form dieser Pulse statische Entladungen von jenen eines nuklearen Zerfallsereignisses unterscheiden.

Mit dem Tricarb ist es grundsätzlich möglich zwei Isotope parallel zu messen. Dadurch verkompliziert sich jedoch die Einstellung der Energiefenster. Will man zum Beispiel die Zählrate oder Aktivitätskonzentration von 3H und ^{14}C simultan bestimmen, wird das obere Limit des Tritiumfensters auf 12 keV statt auf 18 keV gesetzt, da sich die beiden Spektren ohnehin überlappen. Diese Einstellungen wurden für ungequenchte Proben festgelegt. Sollten die Proben jedoch

einen Quench aufweisen verkompliziert sich die Einstellung der Limits noch weiter. Da man bei radioökologischen Untersuchungen de facto nie ungequenchte Proben untersucht, wird auf diese Methode nicht weiter eingegangen [28].

4.8.2.3 Transformed Spectral Index (tSIE)

Wie bereits erwähnt, wurde in dieser Arbeit vorzugsweise der tSIE als QIP verwendet. Hierbei wird die Energieverteilung korrigiert, sobald ein Spektrum Verzerrungen aufweist. Konventionelle Methoden, die mit externen Standards arbeiten eliminieren zum einen einfach den verzerrten Teil des Spektrums, wodurch ein Zählverlust entsteht. Zum anderen wird nur ein gewisser „gesunder“ Teil des Spektrums betrachtet anstatt das gesamte zu verwenden. Diese Methode ist jedoch statistisch sehr unpräzise, da es in jedem Teil zu Verzerrungen kommen kann.

Auf die sogenannte „Reverse Spectrum Transform method“ (RST-Technik) kann mathematisch nicht weiter eingegangen werden, da diese Informationen von *PerkinElmer* nicht freigegeben sind. Die RST Technik eliminiert Verzerrungen in einem Spektrum mittels mathematischer Spektrentransformation [28].

Formel 47 zeigt eine vereinfachte mathematische Ausdrucksweise der RST-Technik:

$$\int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E} = \left(\int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}_2} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E} - \int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}_1} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E} \right) * \frac{\widehat{E} - tSIE}{\widehat{E}_2 - \widehat{E}_1} \quad (47)$$

\widehat{E} ist die bereits transformierte Energie und die Indizes 1 und 2 geben den oberen und unteren Energiebereich an, in welchem der tSIE berechnet wird. Der tSIE ist einer der Parameter die sich aus dieser RST-Funktion berechnen lassen:

$$tSIE = \widehat{E} - (\widehat{E}_2 - \widehat{E}_1) * \frac{\int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E}}{\int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}_2} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E} - \int_{\widehat{E}_{max}}^{\widehat{E}_1} N(\widehat{E}) \cdot d\widehat{E}} \quad (48)$$

Die Vorteile dieser Methode zur Berechnung des tSIE sind folgende:

- Der tSIE wird nicht von Wandeffekten beeinflusst.
- Es wird hohe statistische Präzision erreicht, da jedes Zählereignis in einem Spektrum zur Auswertung herangezogen wird und somit auch sehr stark gequenchte Proben, oder solche mit geringen Volumina gemessen werden können.
- Durch das effiziente quench-monitoring ist selbst bei chemisch oder optisch verschmutzten Proben nur eine vergleichsweise geringe Messzeit notwendig.
- Der tSIE ist vom Probenvolumen unabhängig.
- Pro Radionuklid muss nur eine Quenchkurve aufgenommen werden, unabhängig von unterschiedlichen Volumina, Cocktails oder Vialsorten.

Die Grundidee der RST Methode war einen idealen Quenchparameter zu kreieren, der folgende Kriterien erfüllt:

- Der QIP muss unabhängig von Zählinterferenzen sein, die beispielsweise von Cocktaildichte, Wandeffekt, Vialmaterial oder auch Volumenänderungen abhängen.
- Der QIP soll einen möglichst breiten Bereich abdecken, sodass auch besonders stark gequenchte Proben noch vernünftig gemessen werden können.
- Die Energie der externen Standardquelle muss möglichst niedrig sein um störende Interferenzen der Gammastrahlung mit dem Messgerät zu unterbinden.
- Die spezifische Aktivität der Standardquelle sollte niedrig sein um gesundheitliche Gefahren zu eliminieren und hohe strahlenschutzrechtliche Auflagen zu vermeiden.

Unter den Gesichtspunkten dieser Anforderungen wurde letztlich Barium-133 (^{133}Ba) gewählt [25].

Kapitel 5

Messergebnisse, Validierung und Diskussion

Ausgewählte Proben wurden mit unterschiedlichen Messgeräten gemessen, um deren Eigenschaften zu studieren. Jeder Messserie ging eine Standardmessung (zur Bestimmung der Efficiency) und eine Leerwertmessung voraus, um letztendlich eine Aktivitätskonzentration zu erhalten (in $\frac{Bq}{l}$). Vor der Messung wurde das Messgerät mittels eines ^{14}C -Standards normalisiert. Weiters wurde die Erkennungsgrenze bestimmt, um feststellen zu können, ob die erhaltene Aktivitätskonzentration aussagekräftig, oder bereits kleiner der errechneten Grenze ist.

Sämtliche in diesem Kapitel vorgestellten Messergebnisse wurden, sofern nicht explizit erwähnt, mit dem Tricarb 2100 im LLCL Arsenal aufgenommen. Die Messungen wurden im Zeitraum von November 2011 bis Jänner 2013 durchgeführt. Die Messzeiten je Probe beziehungsweise Leerwert lagen zwischen wenigen Minuten und 48 Stunden.

Wie bereits erwähnt wurde der Tricarb 2700 des Atominstututs (ATI) der Technischen Universität Wien zur Verifizierung der Messergebnisse verwendet. Aufgrund der Tatsache, dass es in den Ergebnissen nur kleinere und konsistente Abweichungen gab, die innerhalb des erwarteten Fehlerbereichs, zu den selben Resultaten führten, wird auch darauf nicht näher eingegangen.

5.1 Messung

Um aussagekräftige Messergebnisse zu bekommen, ist es unumgänglich bei dem verwendeten Messgerät die optimalen Einstellungen zu finden. Bei der Messung von Tritium muss beispielsweise das Energiefenster zwischen 0 und 18,6 keV eingestellt werden. Würde man das Fenster breiter wählen, würde die Efficiency und Zählstatistik darunter leiden.

Bei „dual-label“ Messungen, bei welchen zwei Nuklide gleichzeitig gemessen werden, kommt es zu diesen Einbußen. Oftmals ist es praktikabler zwei Nuklide gleichzeitig zu messen, jedoch sollte dies nur in Ausnahmefällen praktiziert werden, um die Qualität der Messergebnisse nicht unnötig herabzusetzen [28].

Die vorbereiteten Messproben werden in die Kassetten des Messgerätes (vergleiche Abb. 19) gestellt. Jeder Messserie ist ein Protokoll vorangestellt (an der ersten von, falls notwendig, meh-

renen Kassetten), nach welchem der Tricarb misst. In diesem Protokoll kann der Benutzer zum Beispiel das Messnuklid, die Zeit, die Anzahl der Wiederholungen und vieles mehr einstellen (siehe Anhang B). Nach Beendigung des Messvorgangs sollten die Proben wieder lichtdicht aufbewahrt werden, falls eine Nachfolgemessung geplant ist.

Vor jedem Start einer Messserie ist es ratsam eine Synchronisierung (SNC) des Messgerätes vorzunehmen. In einer eigens dafür bereitgestellten Kassette werden ein ungequenchter ^{14}C - und ^3H - sowie ein Hintergrund-Standard für den Leerwert (LW) gemessen. Über den ^{14}C -Standard wird die optimale Einstellung der Hochspannung an den PMT gesucht. Dabei werden die PMT über den SIS des ^{14}C -Standards einzeln justiert.

Der tSIE des Systems wird automatisch auf 1000 gesetzt (komplett ungequenches Spektrum). Mit beiden Standards wird zusätzlich das $\frac{E^2}{B}$ -Verhältnis (FOM) und damit die Leistung des Messgerätes überprüft. Über den Standard wird der Hintergrund in den Regionen 0-18,6 keV für ^3H und 0-156 keV für ^{14}C bestimmt, der letztendlich auch für die FOM genutzt wird. Hierbei ist darauf zu achten, dass in dem System die richtigen Parameter der Standards (Herstellungsdatum und Aktivität) eingegeben werden.

Weiters sollte das System überprüft werden, indem der ^{14}C -Standard gemessen wird, wobei hier auch ^{14}C als Messnuklid ausgewählt werden muss. Sollte der tSIE einen Wert unter 950 und eine Efficiency von unter 90 % erreichen, so muss das System auf Fehler oder Schäden überprüft werden. Für einen ungequenchten ^3H -Standard sollte die Efficiency nicht unter 58 % fallen [28]. In Tabelle 11 sind exemplarisch einige Daten der System-Normalisierung vor den jeweiligen Messzyklen über die letzten sechs Monate gelistet.

Tabelle 11: System Normalisierung

^3H			^{14}C		
ϵ	Leerwert [cpm]	FOM	ϵ	Leerwert [cpm]	FOM
0,61	10,02	367,45	0,94	13,95	846,25
0,61	9,15	404,49	0,94	12,73	883,88
0,61	9,77	384,17	0,94	13,43	834,04
0,61	9,18	402,17	0,94	13,22	866,37
0,61	9,62	383,95	0,95	13,63	853,30
0,61	10,13	363,92	0,95	13,88	857,64

Man sieht, dass die zuvor diskutierten kritischen Werte nie unterschritten wurden. Die verwendete Leerwertprobe ist, analog zum verwendeten Standard, argonversiegelt wodurch die Hintergrundzählrate deutlich höher ist als jene bei den selbst im Labor hergestellten Leerwertproben. Allerdings liegt die Efficiency der selbst hergestellten Proben, aufgrund des natürlichen Quenches, deutlich unter jenen von *PerkinElmer*.

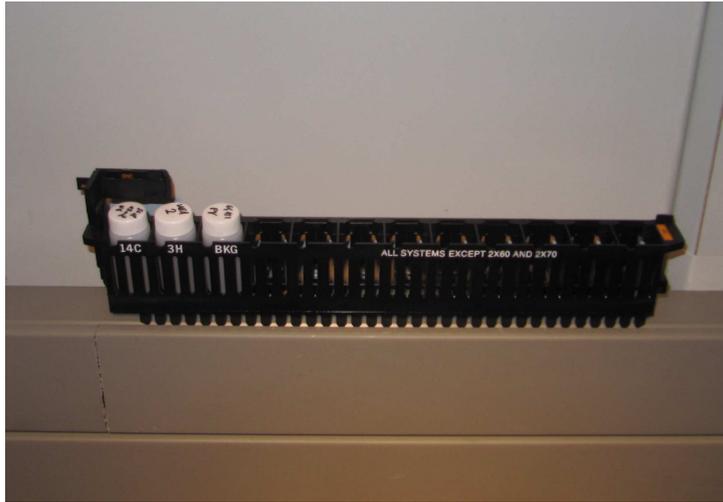


Abb. 18: Probenkassette

5.2 Berechnung der Messergebnisse

Die verwendeten Messgeräte geben bezüglich der detektierten Photonen einen Wert mit der Einheit *cpm* (*counts per minute*, oder *Ereignisse pro Minute*- min^{-1}) aus. Um einen aussagekräftigen Messwert in $\frac{\text{Bq}}{\text{l}}$ zu erhalten ist es notwendig, eine Berechnung durchzuführen sowie den Messwert mit der Efficiency zu berechnen. In Tabelle 12 sind sämtliche Messparameter zusammengestellt, welche zur Ergebnisberechnung relevant sind.

Tabelle 12: Messparameter

Parameter	Einheit	Bedeutung
$A_{Std,t=0}$	min^{-1}	Aktivität des Standards zum Zeitpunkt $t = 0$
R_{Std}	min^{-1}	gemessene Zählrate des Standards
$t_{1/2}$	s	Halbwertszeit von Tritium
t_a	s	Verstrichene Zeit (ab $t = 0$)
t_{Std}	s	Messzeit des Standards
R_0	min^{-1}	gemessene Zählrate des Leerwertes
t_0	s	Messzeit des Leerwertes
R_b	min^{-1}	gemessene Brutozählrate der Probe
t_b	s	Messzeit der Probe
V	ml	Probenmenge
a_{Probe}	$\frac{\text{Bq}}{\text{l}}$	Aktivitätskonzentration der gemessenen Probe
ϵ	1	Efficiency

5.2.1 Efficiency

Für die Berechnung der Efficiency wurde eine Quenchkurve (siehe 5.2.2) aufgenommen. Für den Leerwert wurden verschiedene Wässer benutzt. Zum einen wurde destilliertes Wasser vom ATI für die Proben des Instituts, da auch bei der Probenahme die benutzten Utensilien mit diesem Wasser abgespült wurden, verwendet. Für Proben, welche im LLC Labor Arsenal hergestellt wurden, wurde zum anderen das dort verwendete destillierte Wasser gemessen. Wichtig ist dabei, dass die Probenzusammensetzung des Leerwertes und der tatsächlichen Probe gleich ist. Um aussagekräftige, nachvollziehbare und konsistente Messergebnisse zu erhalten, muss der Leerwert immer den zu messenden Proben angepasst werden.

Über den tSIE kann verglichen werden, ob die Probe einen gleichen oder zumindest ähnlichen QIP hat. Sollte dies nicht der Fall sein, muss auch der Hintergrund über die Quenchkurve mit der passenden Efficiency korrigiert werden.

Der Wert für die Aktivität muss über das Zerfallsgesetz (6) für den Messzeitpunkt korrigiert werden:

$$A_{Std,t} = A_{Std,t=0} \cdot e^{\frac{-\ln 2 \cdot t_a}{t_{1/2}}} \quad (49)$$

Der Standard wird nun genauso wie der präparierte Leerwert gemessen. Der gemessene Leerwert (R_0) muss von der Brutozählrate R_b abgezogen werden und durch die Aktivität des Standards dividiert werden. Über die Ergebnisse in *cpm* kann nun die Efficiency (ϵ) des Messgerätes berechnet werden:

$$\epsilon = \frac{(R_b - R_0)}{A_{Std,t}} \quad (50)$$

5.2.2 Aufnahme einer Quenchkurve

Zur Ergebnisberechnung, respektive zur Efficiency-Korrektur wurde eine Quenchkurve aufgenommen. Hierzu wurde ein Standard der IAEA verwendet, welcher am 01.06.2008 eine Aktivitätskonzentration von $2,48 \cdot 10^4 \frac{Bq}{ml}$ aufwies. Wichtig ist, dass bei der Überprüfung der Efficiency die Aktivitätskonzentration über das Zerfallsgesetz (49) korrigiert wird.

Der Standard wurde, wie nachstehende Tabelle 13 zeigt, sukzessive (in 0,5 ml Schritten) mit Aceton und 12 ml Cocktail gemischt um eine Quenchkurve zu erhalten. Ausgehend von der Aktivitätskonzentration des Standards muss dieser Wert mit der Menge des verwendeten Standards multipliziert werden, um eine Aktivität (Bq) zu erhalten.

Um nun die Efficiency bestimmen zu können, wird der Messwert (cpm) durch 60 (um die Zählrate pro Sekunde (cts/s) zu erhalten) und anschließend durch den Sollwert der Aktivität des Standards dividiert. Im nächsten Schritt wird die Efficiency über den tSIE aufgetragen.

Bei der Aufnahme der Quenchkurve wurden die zehn Proben mit unterschiedlichen Mischverhältnissen insgesamt fünf mal (fünf Messzyklen) gemessen und der Mittelwert der jeweiligen Messwerte gebildet.

Tabelle 13: Parameter der Quenchkurve vom 08.01.2013

Standard [ml]	Messwert [cts/s]	tSIE	Sollwert [Bq]	ϵ
8	293,59	275	1528,63	0,1921
7,5	254,51	253	1433,09	0,1776
7	197,15	213	1337,55	0,1474
6,5	145,15	180	1242,01	0,1169
6	126,09	171	1146,47	0,1100
5,5	92,13	143	1050,93	0,0877
5	73,28	132	955,39	0,0767
4,5	64,66	127	859,85	0,0752
4	58,80	127	764,31	0,0769
3,5	53,45	129	668,77	0,0799

Der Standard an sich ist bereits gequencht und somit konnte die Kurve nicht über den gesamten Wertebereich (tSIE zwischen 0 und 1000) aufgenommen werden, da kein tSIE über 300 erreicht wird. Dies stellt in diesem Fall insofern kein Problem dar, da auch sämtliche gemessene Proben in diesem Quenchbereich angesiedelt sind. Wie bereits erwähnt gibt es bei radioökologischen Untersuchungen de facto keine ungequenchten Proben, oder Proben die den aufgenommenen Wertebereich überschreiten.

In Abbildung 20 sieht man die im Labor aufgenommene Quenchkurve. Die Kurve über den gesamten Wertebereich (Abbildung 21) wurde einer Default-Datei des Messgerätes entnommen.

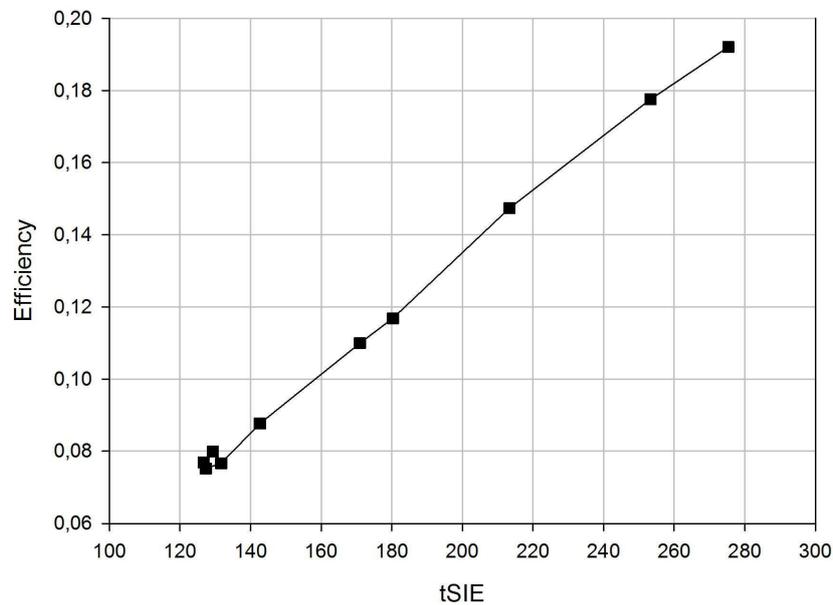


Abb. 19: Aufgenommene Quenchkurve

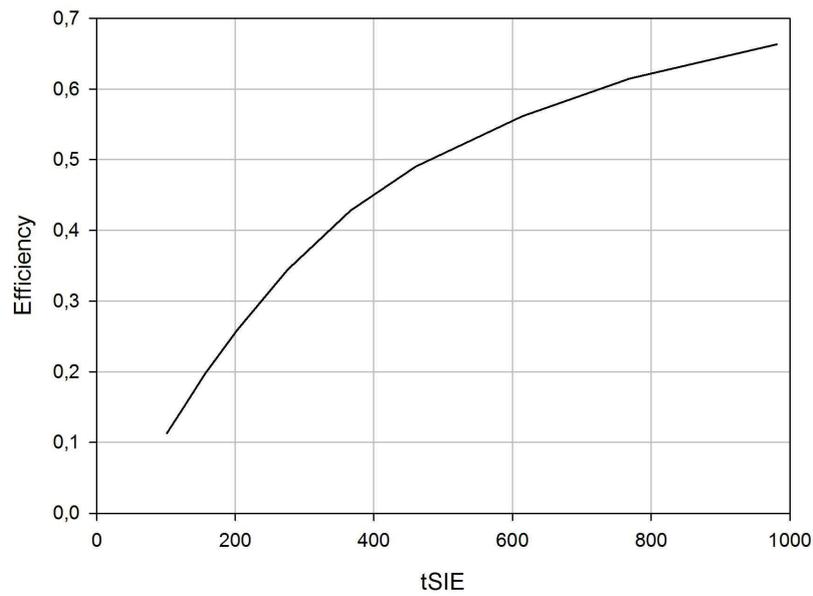


Abb. 20: Quenchkurve

Wie man in Abbildung 20 sieht, ist die Quenchkurve in dem relevanten Bereich linear. Mittels einer Polynominterpolation ersten Grades ($y = kx + d$) konnte die folgende Formel errechnet werden, die jedoch nur bis zu einem tSIE von zirka 400 angewendet werden kann, um verlässliche Werte für die Efficiency zu erhalten:

$$\epsilon = 0,0008 \cdot \text{tSIE} - 0,0256 \quad (51)$$

In nachstehender Grafik (Abbildung 22) sieht man in rot die Interpolationsgerade und in schwarz die Messdaten. Man erkennt deutlich, dass in dem betrachteten Bereich die Efficiency über den tSIE ausreichend linear ist.

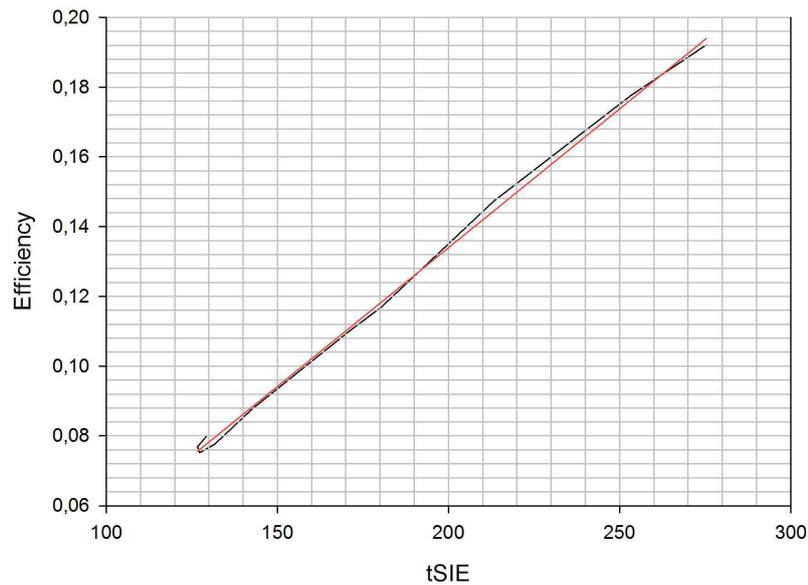


Abb. 21: Polynominterpolation der Messwerte

5.2.3 Ergebnisberechnung

Die Ausgabe der Messgeräte weist die Einheit *cpm* (*counts per minute*) auf. Um auf die Zählrate pro Sekunde zu kommen muss also durch 60 dividiert werden, um nach der Auswertung durch die Efficiency auf Bq ($\frac{1}{s}$) zu kommen.

Die in dieser Arbeit verwendete Einheit ist $\frac{Bq}{l}$. Um diese zu erhalten muss zuerst, analog zur Berechnung der Efficiency (ϵ), von der Brutozählrate (R_b) der Leerwert (R_0) abgezogen werden. Dieser Wert wird durch das Probenvolumen dividiert sowie mit einem Faktor 1000 multipliziert, um die Aktivitätskonzentration in $\frac{Bq}{l}$ zu erhalten. Zuletzt wird der Messwert noch mit der gefundenen Efficiency (5.2.2) ausgewertet.

$$A_{Probe} = \frac{(R_b - R_0) \cdot 1000}{V \cdot 60} \cdot \frac{1}{\epsilon} \quad (52)$$

Nach Berechnung der Messergebnisse wurden selbige mit der Erkennungsgrenze, welche gemäß (24) berechnet wurde verglichen, um feststellen zu können, ob die Messergebnisse hinreichend aussagekräftig sind.

5.2.4 Unsicherheit

Um letztendlich die Aktivitätskonzentration inklusive der Unsicherheit angeben zu können, muss ein Unsicherheitsbudget gemäß 19 erstellt werden. Im konkreten Fall dieser Arbeit gibt es drei Einflussfaktoren:

- Die Unsicherheit der Pipetten (s_P): Für die Proben wurde eine 10 ml Pipette verwendet, die bei 10 ml mit einer Unsicherheit von 0,00244 (0,24 %) angegeben ist. Bei der Probenvorbereitung werden 10 ml +2 ml Cocktail pipettiert und 8 ml Probe. Somit muss diese Unsicherheit drei mal berücksichtigt werden.
- Die Unsicherheit der Fitkurve (s_F): gemäß Formel 51 ist die Unsicherheit der Kurve mit 0,002 (0,00002 %) angegeben
- Die Unsicherheit des Messgerätes wird mit 2σ in Bezug auf die Zerfallsereignisse angegeben.

Somit ergibt sich die Gesamtunsicherheit zu:

$$s = \sqrt{(s_P)^2 + 3 \cdot (s_F)^2 + (2\sigma)^2} \quad (53)$$

5.3 Ergebnisse ATI

Am Atominstitut der Technischen Universität Wien wurden an fünf Stellen (Radiochemielabor, altes Radiochemielabor, Reaktortank, Reaktorkanzel und Dachboden (siehe Abb.23)) Proben genommen. Es wurde versucht, an diesen Orten die Aktivitätskonzentration in der Luft zu messen. Dabei wurden Plastiksäcke mit Trockeneis für ungefähr eine Stunde aufgehängt. Die Luft kondensiert an der kalten Oberfläche der Säcke und es bilden sich Eiskristalle, welche abgekratzt werden. Das Eis verflüssigt sich und somit kann man das erhaltene Wasser analysieren.

Interessant zu beobachten war, dass sowohl im alten als auch im neuen Radiochemielabor weniger Probenmenge zustande kam, da es deutlich kühler als in der Umgebung des Reaktors war. Die Luft in diesen beiden Räumen ist deutlich trockener, da die Räume ständig klimatisiert werden. Die Messungen konnten nur mit dem Triathler durchgeführt werden, da zu diesem Zeitpunkt der Tricarb nicht zur Verfügung stand, wodurch die Ergebnisse qualitativ wenig aussagekräftig sind. Das verwendete Messgerät war kontaminiert und konnte mit herkömmlichen Methoden nicht gereinigt werden, wodurch ein relativ hoher Leerwert vorhanden war.

Die Ergebnisse aus den Radiochemielaboratorien und der Reaktorkanzel waren unter der Erkennungsgrenze, wobei die gemessenen cpm in der Kanzel höher waren als in den beiden Labors. Über dem Reaktor konnten wenige $\frac{Bq}{l}$ gemessen werden (~ 40 Bq/l). Interessanterweise war die Aktivitätskonzentration von Tritium am Dachboden (hinter der Kanzel) am höchsten. Das gasförmige Tritium sammelt sich in diesem abgeschlossenen Raum, wodurch eine höhere Aktivitätskonzentration entsteht.

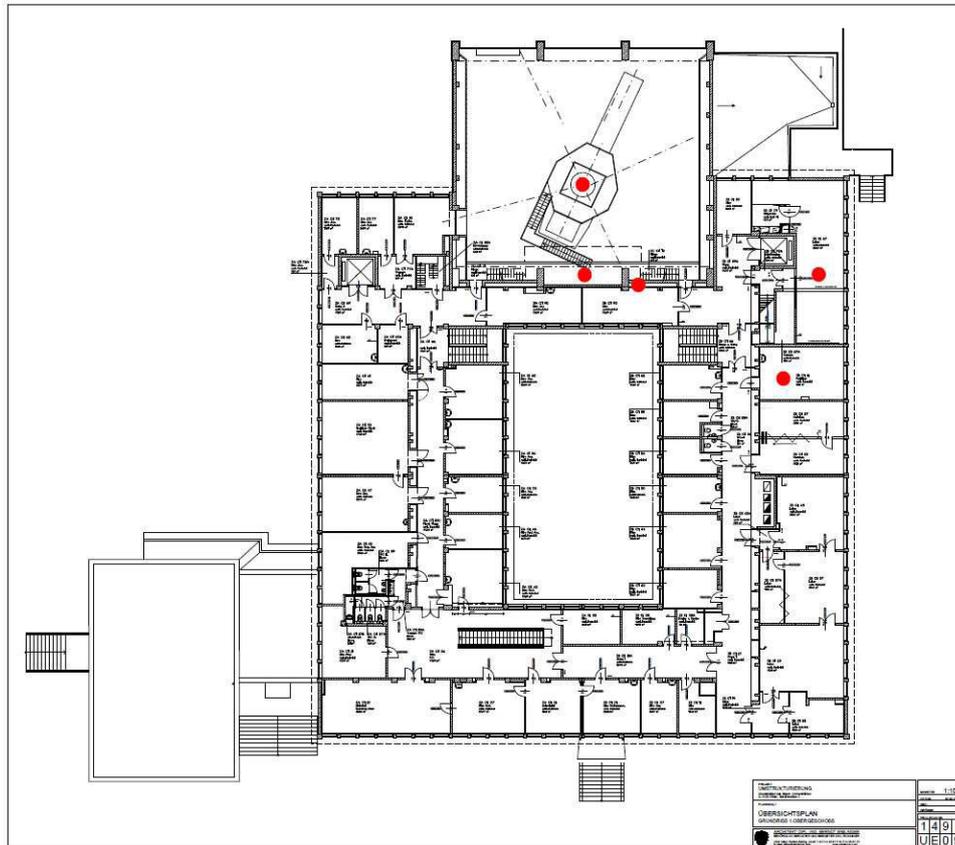


Abb. 22: ATI Grundriss

Weiters wurde noch dem Reaktortank eine Flüssigprobe entnommen, die zu einem späteren Zeitpunkt mit dem Tricarb analysiert werden konnte. Interessant dabei ist der relativ hohe QIP mit einem tSIE von 339 (Efficiency von 24,60 %) im Vergleich zu den gemessenen Umweltproben. Der Grund dafür liegt darin, dass der Reaktor des ATI mit hochreinem Wasser gekühlt wird. Für die Aktivitätskonzentration im Reaktortankwasser ergibt sich somit $9485 \pm 439 \frac{Bq}{l}$. In einer Diplomarbeit aus dem Jahr 2005 wurde ebenfalls Tritium im Reaktortank analysiert mit einer Aktivitätskonzentration von $9920 \frac{Bq}{l}$ [8].

Jedoch sind diese beiden Messwerte nur grob vergleichbar, da sich die Reaktorlaufzeiten und somit auch das dabei entstehende Tritium in jedem Jahr zumindest geringfügig ändern.

5.4 Trinkwasser

Im Zuge einer Trinkwasseruntersuchung in ausgewählten österreichischen Wasserwerken wurden 10 Proben auf Tritium untersucht. Dabei soll sichergestellt werden, dass die Aktivitätskonzentrationen den Grenzwert von 100 Bq/l, gemäß der österreichischen Trinkwasserverordnung, nicht überschreiten [5].

Die Messzeit betrug bei allen Proben drei Stunden. Bei jedem der drei Messzyklen wurde des weiteren eine Leerwertprobe (12ml Cocktail Ultima Gold + 8ml einfach destilliertes H_2O) gemessen. Die gemäß (22) errechnete Erkennungsgrenze (EG) ergibt $3,5 \frac{Bq}{l}$.

Tabelle 14: Leerwertmessung

Zyklus	CPM	tSIE
1	2,52	276
2	2,81	275
3	2,72	276

Die Ergebnisse der Trinkwasserproben sind in nachstehender Tabelle 15 zusammengefasst. Es wurde von jeder Probe ein Mittelwert der drei Zyklen genommen.

Tabelle 15: Ergebnisse der Trinkwasserproben

Probe	CPM	tSIE	Aktivitätskonzentration
1	2,82	280	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
2	2,74	277	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
3	2,79	277	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
4	2,76	275	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
5	2,69	279	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
6	2,77	275	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
7	2,72	281	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
8	2,73	280	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
9	2,73	278	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)
10	2,67	274	$< 3,5 \frac{Bq}{l}$ (EG)

Sowohl die Werte des tSIE als auch jene der Wasserproben (in cpm) liegen genau im Bereich der untersuchten Leerwerte. Eine Aktivitätsauswertung ist somit obsolet. In keiner Trinkwasserprobe aus diversen Wasserwerken konnte somit Tritium nachgewiesen werden.

5.5 IAEA Ringvergleich

Durch die Teilnahme an einem Ringvergleich der IAEA (International Atomic Energy Agency) war es möglich die theoretischen Überlegungen zu validieren. Zum Zeitpunkt der Teilnahme wurde noch mit dem Triathler gearbeitet, der die Kriterien nicht erfüllte. Jedoch war genug Probenmenge vorhanden, um weitere Messungen durchführen zu können. Der Sollwert der IAEA Proben wird mit a_{Ref} angegeben.

Die Proben wurden jeweils fünf mal je 180 Minuten gemessen und anschließend ein Mittelwert der jeweiligen Messergebnisse gebildet. Der Bezugszeitpunkt der Proben ist der 15.11.2011 und somit ergeben sich gemäß den Formeln 52 und 53 für die Aktivitätskonzentration (a) und Unsicherheiten folgende Werte:

Tabelle 16: IAEA Ringvergleich

Probe	cts	tSIE	ϵ	a [Bq/l]	s [Bq/l]	a_{Ref} [Bq/l]
1	2245	246	0,1713	47,7	$\pm 2,8$	50,2
2	1458	259	0,1817	21,4	$\pm 1,4$	25,0
3	1850	259	0,1817	32,1	$\pm 2,0$	35,1

Die Validierung der Messergebnisse ist wichtig, um die Basis für eine Akkreditierung der Prüfstelle für das PLUS (Prüflabor für Umweltradioaktivität und Strahlenschutz) bezüglich Tritiumanalytik zu schaffen. Die Messungen für die akkreditierte Prüfstelle werden gemäß ISO-9698 durchgeführt [16].

Kapitel 6

Konklusion und Ausblick

Die Flüssigszintillationstechnologie stellt eine relativ kostengünstige Möglichkeit zur Messung diverser Radionuklide (siehe Tabelle 6) dar. Die Tritiumanalytik im Speziellen kann in Zukunft an Bedeutung gewinnen, sollte der Durchbruch in der Kernfusion gelingen, bei welcher ^3H als Brennstoff eingesetzt wird.

Tritium ist ein radioaktives Wasserstoffisotop das auf natürliche Weise durch Spallation infolge der kosmischen Strahlung, aber auch künstlich in der Nuklearindustrie produziert wird. Bei einem Unfall in etwaigen Anlagen kann es zum Austritt von T in die Umwelt kommen. Aufgrund seiner Ähnlichkeit zu Wasserstoff ergeben sich quasi uneingeschränkte Wege zur Verteilung dieses Isotops. Aufgrund seiner großen Mobilität ist es notwendig den Tritiumgehalt in der unmittelbaren Umgebung kerntechnischer Anlagen permanent zu überwachen.

Die Flüssigszintillation bietet dabei eine effiziente Möglichkeit, ohne viel Arbeits- und Personalaufwand, eine gute Überwachung zu garantieren. Aufgrund des anhaltenden Energieproblems und dem drastischen Rückgang von fossilen Brennstoffen wird der Einsatz der Kernfusion immer dringender. Der Forschungsaufwand und auch der Fortschritt in Richtung „break-even“-Punkt sind beachtlich. Da in dieser Technologie Tritium als Brennstoff eingesetzt wird ist dessen Überwachung ein Thema das Hand in Hand geht.

Mit Ausnahme des Triathlers sind sämtliche in dieser Arbeit verwendeten und besprochenen Messgeräte zur Tritiumanalytik geeignet. Es können Erkennungsgrenzen von zirka 3-7 Bq/l erreicht werden. Dadurch lassen sich die Methoden beispielsweise im Bereich der Natürlichen Strahlenquellen-Verordnung oder der österreichischen Trinkwasserverordnung einsetzen.

Der Grenzwert für Tritium in Österreich, gemäßg der Trinkwasserverordnung, liegt bei 100 Bq/l. Die Aktivitätskonzentration der, im Zuge dieser Arbeit untersuchten Proben aus ausgewählten Trinkwasserwerken, waren ausnahmslos kleiner als die errechnete Erkennungsgrenze (3,5 Bq/l) und somit deutlich unter dem erwähnten Grenzwert.

Der aufgebaute Messplatz wird im Zuge des EMRP (*European Metrology Research Programme*) Projektes 2013 zum Einsatz kommen. Bei diesem Projekt wird verstärkt auf Kooperation in Bezug auf Umwelt- und Klimaforschung gesetzt, wie zum Beispiel:

- Kontamination von Wasser, Erde und Luft
- Strahlenmesstechnik und Strahlenschutz
- Bestandteile der Atmosphäre und Ozeane sowie deren Kontamination aber auch die Transportwege kontaminierter Partikel
- Emissionskontrolle sowie Fernüberwachung der Umwelt und des Klimas

Dabei wird beispielsweise versucht Tritium als Tracer zur Erforschung von Transportwegen des Wasserdampfes in der Atmosphäre einzusetzen. Oder auch die Erforschung und Erschließung von Grundwasserressourcen sowie die Dispersion von Oberflächenwässern. Weiters wird versucht eine Grundwasserdatierung über 3H und ^{14}C vorzunehmen, sowie die Zirkulationen und Mischprozesse in Meeren.

Die Grundidee ist also die Entwicklung neuer Tracermethoden mittels low-level Radionukliden für radioökologische Anwendungen, die den Klimawandel betreffen [24].

Wenn man Forschung in Richtung (ultra) low-level Messung betreiben möchte ist es jedoch unumgänglich in neuere Technologien, wie den *Quantulus* (Abbildung 24), oder den *Hidex 300 SL* (Abbildung 25), zu investieren. Dadurch sollten Erkennungsgrenzen von deutlich unter einem Bq/l möglich sein. Mit diesen Nachweisgrenzen eröffnen sich weitere Anwendungsgebiete. So können bereits sehr geringe Mengen Tritium als Tracer für die angesprochenen radioökologische Studien verwendet werden.



Abb. 23: Quantulus [30]

Die Einsatzgebiete des *Quantulus* sind vielfältig. Sie reichen über Trinkwasseruntersuchungen (Radon, Tritium), Nahrungsmittelkontrolle (Strontium-90), Abwasserkontrolle in kerntechnischen Anlagen, über Radiocarbonuntersuchungen bis hin zu Kontrollen von Biosprit. Beson-

ders im Fall eines Nuklearen Unfalls mit resultierender Kontamination der Umwelt kann das Messgerät sehr schnell und effizient zur Überprüfung von etwaigen erhöhten Aktivitätskonzentrationen eingesetzt werden [30].

Ein weiteres *super low-level* Messgerät ist der Hidex 300 SL (siehe Abbildung 25). Dieses neue Flüssigszintillationsmessgerät von Hidex ist mit drei PMT ausgestattet um TDCR (triple to double coincidence ratio) Messungen durchführen zu können. Damit ist eine Auswertung der Messproben ohne externe Standardquelle auf direktem Weg möglich. Dies bedeutet für den Benutzer eine weitere Zeitersparnis, da keine Quenchkurve (5.2.2) aufgenommen werden muss. Durch zusätzliche Abschirmungen des Detektors kann eine drastische Reduzierung des Hintergrundes erreicht werden. Im Vergleich zum Tricarb (4.8.2) ist der *Hidex 300 SL super low-level liquid scintillation counter* mit einer Höhe von 68 cm, einer Breite von 52 cm und einer Tiefe von 63 cm auch wesentlich kompakter und mit einem Gewicht von 180 kg deutlich leichter zu transportieren.



Abb. 24: Hidex 300 SL [14]

Mit diesem Messgerät konnten bei Umweltproben Efficiencies von über 30 % und bei ungequenchten Proben Efficiencies von bis zu 73 % erreicht werden [14].

Die nukleare Umweltanalytik und die permanente Überwachung unseres Ökosystems ist unumgänglich, um die Gesundheit des Menschen zu schützen. Die Auswirkungen von Nuklearunfällen auf die Gesundheit des Menschen sind spätestens seit Tschernobyl (1986) und Fukushima (2011) bekannt. Dahingehend ist es wichtig unsere Umwelt zu überwachen, um rechtzeitig reagieren zu können.

Literaturverzeichnis

- [1] A 6601, ÖNORM: Benennungen und Definitionen für ionisierende Strahlung. In: *Strahlenschutz*, 2011
- [2] BÉ, M. ; CHISTÉ, V. ; DULIEU, C. ; MOUGEOT, X. u. a.: Table of Radionuclides (Comments on evaluation). In: *Monographie BIPM-5* Bd. 1-5, 2010, S. 1–3
- [3] BETGHE, K. ; WALTER, G. ; WIEDEMANN, B.: *Kernphysik*. Bd. 3.Auflage. Springer, 2008
- [4] BOSCH, H. ; BRADSHAW, A.: *Kernfusion als Energiequelle der Zukunft*. Schwerpunkt, 2001
- [5] BUNDESKANZLERAMT-ÖSTERREICH: *Verordnung des Bundesministers für soziale Sicherheit und Generationen über die Qualität von Wasser für den menschlichen Gebrauch*. Website. 2001. – <http://www.ris.bka.gv.at/GeltendeFassung.wxe?Abfrage=Bundesnormen&Gesetzesnummer=20001483>; zugegriffen am 11.12.2012.
- [6] COOK, G. ; PASSO, C. ; CARTER, B.: Handbook of Radioactivity Analysis. In: *Environmental Liquid Scintillation Analysis* (2003), S. 358–364
- [7] DEMTRÖDER, W.: *Experimentalphysik 3*. Bd. 3.Auflage. Springer, 2005
- [8] DJURICIC, M.: *Radionuklide im TRIGA Mk-II Reaktortank -Entstehungsverhalten und Abklingverhalten*, Atominstitut der Technischen Universität Wien, Diplomarbeit, 2005
- [9] EDLER, R.: Cocktails für die Messungen im Szintillationszähler / Perkin Elmer. 2005. – Forschungsbericht
- [10] ENVIRONMENTAL SCIENCE DIVISION (EVS) : *Tritium (Hydrogen-3)*. Argonne National Laboratory, 2005
- [11] GOODHEAD, D.: *Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters*. Kap. The relevance of dose for low-energy beta emitters. In: *Radiation Protection No 152*, European Commission, 2007
- [12] GUÉTAT, P. ; DOUCHE, C. ; HUBINOIS, J.: *Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters*. Kap. Tritium and the Environment: Sources, Measurement and Transfer. In: *Radiation Protection No 152*, European Commission, 2007
- [13] Hidex (Veranst.): *TriathlerTM-Multilabel Tester-Liquid Scintillation Counter*. 1.8. 2007

- [14] HIDEX: *HIDEX 300 SL*. Website. 2013. – <http://www.hidex.com/products.aspx>; zugegriffen am 30.01.2013.
- [15] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA): Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14. In: *Technical Reports Series No. 421* (2004)
- [16] ISO-9698: Water quality-Determination of tritium activity concentration-Liquid scintillation counting method. In: *International Standard*, 2010
- [17] ITER: *the way to new energy*. Website. 2012. – <http://www.iter.org/>; zugegriffen am 11.12.2012.
- [18] JOHNSON, J. ; D., Dunford: Dosimetric Models of ^3H from Skin Absorption Following Contact with T_2 -contaminated Surfaces. In: *Health Physics* 48 (1985), Nr. 1
- [19] KRAUSE, W. ; SPEER, W.: Überwachung der Tritiumaktivität in Wasser (Niederschlag, Oberflächen-, Grund-, Trink- und Abwasser). In: *Loseblattsammlung FS-78-15-AKU Empfehlungen zur Überwachung der Umweltradioaktivität*. IRPA FS, 2008, S. 1–7
- [20] LEBERON-JACOBS, L.: *Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters*. Kap. Introduction. In: *Radiation Protection No 152*, European Commission, 2007
- [21] MAGILL, J. ; PFENNIG, G. ; GALY, J.: Karlsruher Nuklidkarte. In: *European Commission Joint Research Centre Institute for Transuranium Elements 7.Auflage* (2006), S. 17–19
- [22] MANTEL, J.: The Beta Ray Spectrum and the Average Beta Energy of Several Isotopes of Interest in Medicine and Biology. In: *International Journal of Applied Radiation and Isotopes* 23 (1972), S. 407–413
- [23] MARINGER, F.J.: 25 Jahre Low-Level Counting Laboratory Arsenal. In: *Radioaktivität und Strahlung in den Umwelt- und Lebenswissenschaften*, 2010, S. 12–13
- [24] MARINGER, F.J.: Metrology for climate change research: Radionuclides and isotopes. In: *EMRP*, 2013
- [25] PACKARD: Liquid Scintillation Analysis. In: *Science and Technology*, 1987
- [26] PASSO, C. ; COOK, G.: *Handbook of Environmental Liquid Scintillation Spectrometry*. Packard Instrument Company, 1996
- [27] PASSO, J. ; COOK, G. ; PERKINELMER, Inc.: Time Resolved Liquid Scintillation Counting: (TR-LSCTM) for Environmental ^3H Analysis. In: *TR-LSCTM Application Note*, 2002
- [28] PERKINELMER: *Tri-Carb Liquid Scintillation Analyzers Models 2100TR/2300TR Operation Manual*. PerkinElmer Life and Analytical Sciences, 2003
- [29] PERKINELMER: *LSC cocktails - Elemental composition*. Website. 2010. – http://www.nucleide.org/ICRM_LSC_WG/2010_LSC_cocktails_elementary_composition.pdf; zugegriffen am 13.11.2012.

- [30] PERKINELMER: *QUANTULUS Liquid Scintillation Spectrometer*. Website. 2012. – <http://http://www.perkinelmer.com/Catalog/Family/ID/Quantulus%20Family>; zugegriffen am 12.01.2013.
- [31] PERKINELMER: *Ultima Gold TM XR Safety Sheet*. PerkinElmer Life and Analytical Sciences, 2012
- [32] RAVIKUMAR, P. ; SOMASHEKAR, R.: Environmental Tritium (³H) and hydrochemical investigations to evaluate groundwater in Varahi and Markandeya river basins, Karnataka, India. In: *Journal of Environmental Radioactivity* (2010), S. 153–162
- [33] S 5250-1, ÖNORM: Zählstatistische Aspekte bei Radioaktivitätsmessungen. In: *Teil 1: Messunsicherheiten, Erkennungs- und Nachweisgrenzen*, 2012
- [34] SOCOREX: *Quality Control Certificate*. Accredited Service Center, 2012
- [35] TIPLER, P. ; MOSCA, G.: *Physik für Wissenschaftler und Ingenieure*. Bd. 2.Auflage. Spektrum Akademischer Verlag, 2004
- [36] TOSHEVA, Z. ; KIES, A. ; LETISSIER, P. ; LANGER, M.: LSC 2005, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry. In: *EASY AND RAPID ESTIMATION OF ENVIRONMENTAL TRITIUM WITH EICHROM COLUMNS AND LSC MEASUREMENT* (2005), S. 395–400
- [37] UNIVERSITY OF NORTH CAROLINA AT CHARLOTTE- OFFICE OF ENVIRONMENTAL, HEALTH AND SAFETY (EH&S): *Nuclide Safety Data Sheet Hydrogen-3 [Tritium]*. Website. 2011. – <http://safety.uncc.edu/sites/safety.uncc.edu/files/Hydrogen%203.pdf>; zugegriffen am 09.08.2012.
- [38] WENZEL, M. ; SCHULZE, E.: *Tritium-Markierung*. Walter de Gruyter & Co., 1982
- [39] WIKIPEDIA: *Physikalische Grundlagen der Nuklearmedizin/ Interaktion von Strahlung mit Materie*. Website. 2007. – http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Datei:Photomultiplier_schema_de.png&filetimestamp=20070509230617; zugegriffen am 02.12.2012.
- [40] WIKIPEDIA: *Säkulares Gleichgewicht*. Website. 2011. – http://de.wikipedia.org/wiki/S%C3%A4kulares_Gleichgewicht; zugegriffen am 07.08.2012.
- [41] WIKIPEDIA: *Physikalische Grundlagen der Nuklearmedizin/ Interaktion von Strahlung mit Materie*. Website. 2012. – http://de.wikibooks.org/w/index.php?title=Datei:Beta_Ray_Spectrum-de.svg&page=1; zugegriffen am 16.11.2012.
- [42] WOBIG, H.: *Wege zur kontrollierten Kernfusion*. Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, 1973

Anhang A

IRPA 2014

Der nachstehende Abstract wird für die IRPA (International Radiation Protection Association) Tagung 2014 in Genf zum Thema „*Radiation Protection Culture - a global challenge*“ eingereicht. Die Themenbereiche erstrecken sich über Strahlenschutz in der Bevölkerung, Medizin, Industrie, Forschung, über Kommunikation mit der Bevölkerung sowie im Strahlenschutz angewandte Messmethoden.

A Liquid-Scintillation measuring system for radio-ecological purposes, especially for Tritium in drinking water, was established. The main goal of this framework was to be able to measure Tritium in the low-level region and to form the measuring and methodical basics for an accredited testing laboratory. Several measurement devices and configurations were tested in order to find the ideal cocktail-mixture, sample quantity and measuring time.

Some measurement-systems were tested of which one, the Triathler, was inapplicable for low-level measurements. The device used for the measurements was the Tricarb 2100. Even though the device is not state of the art, it qualified for measurements concerning the Austrian Drinking Water Regulations. The threshold for Tritium is 100Bq/l and the reached decision limit was about 4 Bq/l.

Liquid samples from the testing-reactor tank of the Institute of Atomic and Subatomic Physics in Vienna and of several drinking water supply stations have been measured. Furthermore, efforts have been made to liquefy the air in some rooms of the ATI with dry ice to determine the activity concentration of Tritium in these rooms. All the results were validated via a world-wide proficiency test by the IAEA.

The results of the radio-ecological measurements in the investigated water supply stations fulfilled the requirements of the Austrian Drinking Water Regulations. In none of the elected stations Tritium could be detected.

In the future Liquid-Scintillation technology could become more important because Tritium is assembled as fuel in nuclear fusion reactors. If the breakthrough is reached in this technology it will become inevitable to install permanent monitoring systems to secure the environment.

Anhang B

Protokolleinstellungen Tricarb 2100

Im Folgenden werden die Protokolleinstellungen des Tricarb 2100 gezeigt und die Grundfunktionen exemplarisch aufgezeigt.

Die nachstehende Abbildung 26 zeigt den Startbildschirm des Messprogrammes.

- *S#* zeigt die Probe (Sample) an, die gerade gemessen wird.
- *Time* ist die aktuelle Messzeit der Probe.
- Die Regionen sind Messregionen, die der Benutzer (in *kev*) einstellen kann.
- *DPM* (*disintegrations per minute*) gibt die Aktivität einer Probe an, sofern die Efficiency in die Auswertung inkludiert ist. Auf diese Methode wurde, wie bereits erwähnt, verzichtet um interne Fehlerquellen zu minimieren. Ebenfalls muss bei dieser Methode ein Leerwert, der von der Nettozählrate abgezogen wird und für die Efficiency eine Quenchkurve angegeben werden.
- *CPM* gibt die Nettozählrate einer Probe in *counts per minute* an.
- *2S %* gibt die aktuelle 2σ Unsicherheit der Messprobe an.
- *P# Name* bezeichnet die Protokollnummer und den vom Benutzer eingegeben Namen.
- Über *F1* können die Protokolle editiert werden (siehe Abb. 27).
- Mit *F2* wird die Messung gestartet.

S#	TIME	REGION A:	DPM	CPM	2S%
24	0.00	REGION B:	0.0	0.0	0.00
		REGION C:	0.0	0.0	0.00
P#	NAME	P#	NAME	P#	NAME
1	3H LL	11	test	21	
2	3H LL	12		22	
3		13		23	
4		14		24	
5		15		25	
6		16		26	
7		17		27	
8		18		28	
9		19		29	
10	C test	20		30	DIRECT DPM
FLAGS: A = Active, C = Complete, P = Group Stat					
F1-EDIT PROT	F2-COUNT START/STOP	F3-SC CONTROL	F4-DECAY	F5-DATE/TIME	F6-SPECTRUM
F6-SPECTRUM	F7-GROUP PRIORSTAT	F8-COMPUTER OUTPUT	F9-etc		

Abb. 25: Startbildschirm

Die diversen Einstellungen eines ausgewählten Messprotokolls sind auf drei Seiten (siehe Abb. 27, 28, 29) aufgeteilt und können mittels $Pg \downarrow / Pg \uparrow$ erreicht werden. Auf der ersten Seite (siehe Abb. 27) können folgende Einstellungen vorgenommen werden:

- Der Protokollname des ausgewählten Protokolls (in diesem Fall 1) kann geändert werden.
- Die Zyklen wie oft die Proben gemessen werden, können ebenso wie die maximale Messzeit und die 2σ Koninzenz, angegeben werden.
- Weiters kann eingestellt werden wie oft ein Probenfläschchen gemessen wird, wieviele Vials es für den Standard gibt und wie viele Vials es für eine Probe gibt, falls eine Probe auf mehrere Vials aufgeteilt wurde, sowie ob das erste Probenfläschchen als Leerwert dient. Diese Einstellungen sind nur für den DPM Modus interessant.
- Das zu messende Radionuklid kann ausgewählt werden. Sollte ein Radionuklid ausgewählt werden, wie zum Beispiel 3H dann legt das Messgerät die Messregionen automatisch fest. Diese kann jedoch auch vom Benutzer manuell eingestellt werden.
- Weiters kann eine 2σ Grenze angegeben werden. Falls im konkreten Fall nur 5 % der Messwerte außerhalb des 2σ Vertrauensbereiches liegen, wird die Messung noch vor dem Ablauf der maximalen Messzeit abgebrochen. Bei Proben mit erhöhten Aktivitätskonzentrationen kann so sehr viel Zeit gespart werden.

- Der QIP (beispielsweise tSIE oder SIS) kann ebenso ausgewählt werden.
- Letztlich kann noch der Datenmodus ausgewählt werden. Sollte man sich nicht für die reine Zählrate (CPM) sondern für DPM entscheiden sind weitere Eingaben (Parameter einer aufgenommenen Quenchkurve) notwendig, die das zur Berechnung einer Aktivität benötigt werden.

Protocol # =	1	Copy Protocol #?	no
Protocol Name?	3H LL		
Cycles?	5		
Count Time?	180.00		
2 Sigma Coincidence?	no		
# Counts/Vial?	1		
# Vials/Standard?	1	# Vials/Sample?	1
1st Vial Background?	no		
Radionuclide?	3H		
	LL	UL	Bkg
Region A:	0.0	18.6	0.00
Region B:	2.0	18.6	0.00
Region C:	0.0	0.0	0.00
		2 Sigma%	LCR
		5.0	0
		.00	0
		.00	0
Qip?	tSIE	ES Terminator?	count
% of Reference?	no		
Data Mode?	cpm		
Please enter Protocol name (alphanumeric - 16 chars)			

Abb. 26: Protokolleinstellungen 1

In nachstehender Abbildung (28) können die Halbwertszeit, das Referenzdatum und diverse Korrekturmodi für eine Probe eingestellt werden, falls eine manuelle Auswertung umgangen werden möchte. Wichtig für Proben mit niedriger Aktivitätskonzentration ist das setzen des HSCM (High Sensitivity Count Mode) auf *yes*. Sollte eine Zählrate von 100 000 counts überschritten werden wird dieser Modus automatisch auf *no* gesetzt. Weiters kann noch ein Pfad zur Sicherung der Daten angegeben werden. Sollte der Name der zu speichernden Datei die Endung *.dat* haben wird nur eine Datei gespeichert und, sofern mehrere Messzyklen ausgewählt wurden, lediglich der letzte Messzyklus. Möchte man jeden Messzyklus speichern muss eine inkrementelle Speichervariante (.000) gewählt werden.

```

Protocol # = 1 Protocol Name = 3H LL
Half Life ? A: 0.00 B: 0.00
  Ref Date ? A: 01/01/1993 B: 01/01/1993
  Ref Time ? A: 00:00 B: 00:00
Single Photon Count ? no
Colored Samples ? no
RS232 Computer Output ? no
Heterogeneity Monitor ? no
Luminescence Correction ? no
High Sensitivity Count Mode ? yes
Data/Application Drive & Path ? A:\
  Save Data ? DATA.007
  Save Spectrum ? no
  Run User Application ? no
    File Name ?
    Command String ?
Static controller ? on

```

Please enter Half life (hours) in the range of 0.01 to 999999 (0 = off)

Abb. 27: Protokolleinstellungen 2

Auf der letzten Seite der Protokolleinstellungen (Abbildung 29) können die Zellen ausgewählt werden, die ausgedruckt beziehungsweise gespeichert werden. Die 0 am Ende der *Print cells?* Eingabe gibt an, dass der Rest einer Zeile gelöscht wird und somit für die nächste Probe eine neue Zeile begonnen wird. Dieser Parameter ist nicht optional. In Abbildung 30 ist ein exemplarischer Ausdruck eines Messzyklus dargestellt.

```

Protocol #: 11 Name: test
Additional Heading?
C# Name Format C# Name Format C# Name Format Equation
0 CRLF 11 C:2S% BXX. 21 A:%CV BXXX.
1 PID EX 12 C:%REF BXXX. 22 B:%CV BXXX.
2 S# BX 13 SIS BXX.X 23 TOD BXXXXXXXX
3 TIME BXXX. 14 DPM1 BXXXX. 24
4 CPMA BXXXX. 15 DPM2 BXXXX. 25
5 A:2S% BXX. 16 ELTIME BXXXX 26
6 A:%REF BXXX. 17 FLAG BXX 27
7 CPMB BXXXX. 18 BLANK BBBBBB 28
8 B:2S% BXX. 19 tSIE B.X 29
9 B:%REF BXXX. 20 %LUM BX 30
10 CPMC BXXXX. 31

```

Define Cell #? 1 Name? Format? BXXX
Equation? (Operators: +, -, *, /, SQR, LN)
Print Cells? 2 3 4 5 17 19 0

Additional heading (50 chars)

Abb. 28: Protokolleinstellungen 3

Protocol #: 2 Name:3H LL 19-Dec-2012 14:53
 Region A: LL-UL= 0.0-18.6 Lcr= 0 Bkg= 0.00 %2 Sigma=5.00
 Region B: LL-UL= 2.0-18.6 Lcr= 0 Bkg= 0.00 %2 Sigma=0.00
 Region C: LL-UL= 0.0- 0.0 Lcr= 0 Bkg= 0.00 %2 Sigma=0.00
 Time =180.00 QIP = tSIE ES Terminator = Count
 High Sensitivity Count Mode
 Data/Application Drive & Path = A:\
 Save Data Filename = DATA.004

S#	TIME	CPMA	A:2S%	CPMB	B:2S%	SIS	tSIE	FLAG
1	1.45	1104.48	5.00	674.14	6.40	9.273	268.	
2	180.00	2.46	9.50	2.16	10.15	21.712	279.	
3	180.00	2.62	9.20	2.23	9.98	21.938	270.	
4	180.00	2.53	9.38	2.16	10.15	21.365	461.	
5	122.23	13.09	5.00	9.66	5.82	18.666	253.	
6	180.00	7.97	5.28	6.20	5.99	18.959	251.	
7	166.18	9.63	5.00	7.06	5.84	18.099	254.	
8	180.00	2.60	9.24	2.14	10.19	20.621	278.	
9	180.00	2.82	8.88	2.35	9.73	19.648	272.	
10	180.00	2.69	9.10	2.33	9.78	20.515	276.	
11	180.00	2.77	8.95	2.38	9.65	21.315	278.	
12	180.00	2.52	9.39	2.19	10.07	22.097	275.	
13	180.00	2.69	9.09	2.34	9.75	21.151	276.	
14	180.00	2.31	9.81	1.96	10.65	20.376	270.	
15	180.00	2.51	9.41	2.17	10.11	21.081	278.	
16	180.00	2.39	9.64	2.05	10.42	21.499	274.	
17	180.00	2.60	9.24	2.29	9.85	21.780	279.	
18	180.00	2.45	9.53	2.13	10.22	20.813	279.	
19	180.00	2.77	8.95	2.46	9.50	21.741	277.	
20	180.00	2.51	9.41	2.13	10.21	21.470	274.	
21	180.00	2.43	9.56	2.09	10.30	20.622	270.	
22	131.22	12.20	5.00	9.11	5.78	17.709	258.	
23	180.00	7.13	5.58	5.63	6.28	19.669	263.	
24	174.76	9.16	5.00	7.06	5.69	19.007	266.	
25	180.00	2.31	9.80	1.97	10.61	20.213	276.	
26	0.02	151480.	3.63	134980.	3.85	19.248	986.	

Abb. 29: Exemplarischer Ausdruck