

3 Physikalische Grundlagen

3.1 Aufbau des Atomkerns

3.1.1 Kernradius

Ein Atom besteht nach der klassischen Theorie von Niels Bohr aus dem Kern und den Elektronenschalen. Der Kern wird von ungeladenen Neutronen und positiv geladenen Protonen aufgebaut, in elektrisch neutralem Zustand ist die Anzahl der Protonen gleich der Anzahl der Hüllenelektronen. Erste Versuche zur Bestimmung von Ladung und Radius des Atomkerns wurden von E. Rutherford durchgeführt (1911). Er beobachtete die Streuung von α -Teilchen beim Durchtritt einer Goldfolie und stellte die folgende Streuformel auf: Sind D die Schichtdicke, N die Zahl der Atomkerne pro Volumeneinheit, ε_0 die Vakuumdielektrizitätskonstante, E_α die Energie der gestreuten Teilchen, e die Elementarladung und Z_1 sowie Z_2 die Kernladungszahlen der streuenden Atome und der gestreuten Atomkerne, so gilt für das Verhältnis der unter einem Winkel ϕ in den Raumwinkel $d\phi$ gestreuten Anzahl der Teilchen dn zur ursprünglichen Teilchenzahl n :

$$\frac{dn}{n} = \frac{N \cdot D}{16} \cdot \left(\frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{4\pi\varepsilon_0 \cdot E_\alpha} \right)^2 \cdot \frac{1}{\sin^4 \cdot \left(\frac{\phi}{2} \right)} \cdot d\phi$$

Unter sonst gleichen Bedingungen nimmt die Anzahl der gestreuten α -Teilchen mit dem Quadrat der Ordnungszahl des bestrahlten Materials zu.

Die Ausdehnung des Atomkerns wird heute über den Wirkungsbereich der sehr kurzreichweitigen Kernkräfte definiert. Der Radius R eines Atomkernes wird als „Halbwertsradius“ (Abnahme der Kernkräfte auf die Hälfte, Abbildung 3.1) definiert und errechnet sich nach dem empirisch gefundenen Fermi-Modell aus der Beziehung

$$R = R_0 A^{1/3} \quad R_0 = 1,4 \text{ fm} \quad (1,4 \times 10^{-15} \text{ m}) = \text{Protonenradius}$$

Daraus ergibt sich für den ^{209}Bi -Kern: $R = 8,31 \text{ fm}$

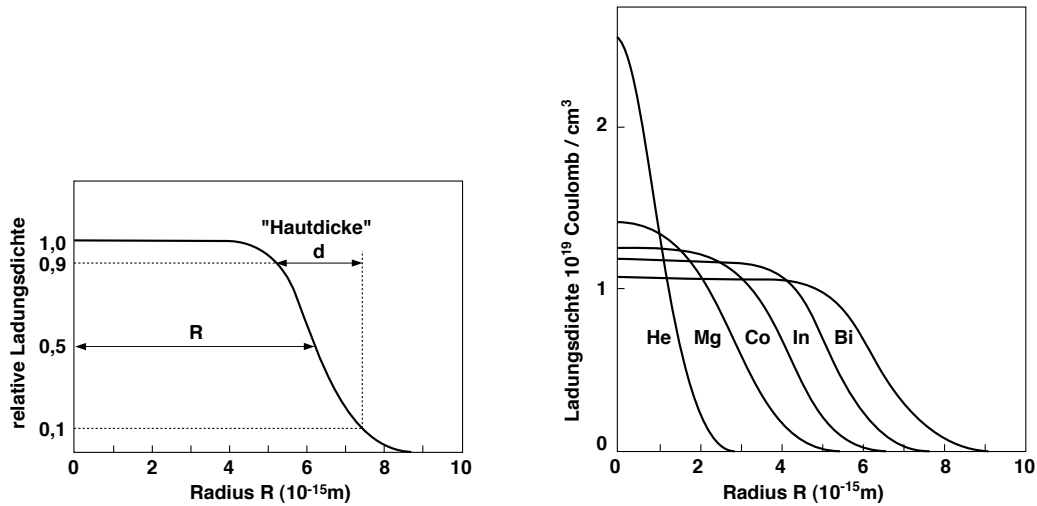


Abbildung 3.1: Ladungsverteilung in sphärischen Kernen

3.1.2 Moseleysches Gesetz

Eine einfache Beziehung zur Bestimmung der Ordnungszahl Z eines Elementes bietet das Moseleysche Gesetz für die Frequenz ν der K_α -Strahlung eines bestimmten Nuklids.

$$\nu = const(Z - 1)^2$$

Dieses Gesetz wurde zur Bestimmung der Ordnungszahl des Elementes Nobelium ^{255}No verwendet, welches durch den Beschuss von Curium mit ^{12}C Atomen in geringer Anzahl über die Reaktion $^{248}\text{Cm} (^{12}\text{C}, 5n)^{255}\text{No}$ produziert wurde. Beim α -Zerfall des Nobeliums konnte durch Koinzidenzmessung der dabei auftretenden Röntgenstrahlung der Nachweis für die Ordnungszahl ebendieses Elementes geführt werden.

3.1.3 Neutronen und Protonen

Während in einem Atomkern gebundene Neutronen stabil sind, wandelt sich das freie Neutron unter Elektronenemission (β^- -Zerfall) mit einer Halbwertszeit von 10,25 min in ein Proton um. Die Massen von Proton bzw. Neutron betragen:

$$\text{atomare Masseneinheit: } u = \frac{1}{12} {}^{12}\text{C} = 1,6605402 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

$$\text{Proton: } 1,6726 \times 10^{-27} \text{ kg} = 938,27231 \text{ MeV} = 1,00727647 \text{ u}$$

$$\text{Neutron: } 1,6749 \times 10^{-27} \text{ kg} = 939,5656 \text{ MeV} = 1,0086647 \text{ u}$$

Die Differenz von $2,3 \times 10^{-30} \text{ kg}$ entspricht dem Massenäquivalent des beim Neutronenzerfalls emittierten Elektrons plus seiner kinetischen Energie von 0,8 MeV.

$$m_e = 9,10939 \times 10^{-31} \text{ kg} = 0,510999 \text{ MeV} = 0,0005486 \text{ u}$$

$$E_\beta = 0,8 \text{ MeV} = 1,42613 \times 10^{-30} \text{ kg} = 0,0008588 \text{ u}$$

Beim Vergleich der bekannten stabilen Nuklide und ihrer Kernzusammensetzung wird beobachtet, dass die Anzahl der Kerne mit geradzahligem Protonen- und Neutronenzahlen (g,g) nicht einer zufälligen Verteilung entspricht, sondern durch unterschiedliche Stabilität bedingt ist. Abbildung 3.2 zeigt die Elementhäufigkeiten in Meteoriten des Typs Chondrit C1, die als Ausgangsmaterial für die Erdentstehung angesehen werden.

g,g Nuklide	162
g,u Nuklide	55
u,g Nuklide	49
u,u Nuklide	5

Dieser Effekt beruht auf der Bindungsenergie von g,g-Kernen, welche höher ist als das arithmetische Mittel der jeweils benachbarten Nuklide. In Analogie mit dem Modell der Elektronenschalen wird auch beobachtet, dass besonders bei bestimmten „magischen“ Protonen- bzw. Neutronenzahlen höhere Stabilität und damit verbunden eine erhöhte Häufigkeit auftritt (Z bzw. $N = 2, 8, 20, 28, 50, 82, 126$).

Aus dieser Überlegung resultiert auch die Mattauchsche Isobarenregel, welche besagt, dass kein Paar isobarer und stabiler Nuklide existiert, dessen Ordnungszahlen sich durch 1 unterscheiden. Die bis vor kurzem als Ausnahmen betrachteten Nukleonenzahlen 50, 113 und 180 konnten durch die Existenz der sehr langlebigen Radionuklide ${}^{50}\text{V}$, ${}^{113}\text{Cd}$ und ${}^{180}\text{Ta}$ als regelkonform belegt werden. Interessant sind auch die natürlichen Isobarentripel bei $A = 40, 138$ und 176 . Werden die Bindungsenergien isobarer Nuklide gegen die Ordnungszahl aufgetragen, erhält man die sogenannte „Isobarenparabel“. Die Abbildung 3.3 zeigt diese Kurven am Beispiel der Massenzahlen 39 und 40.

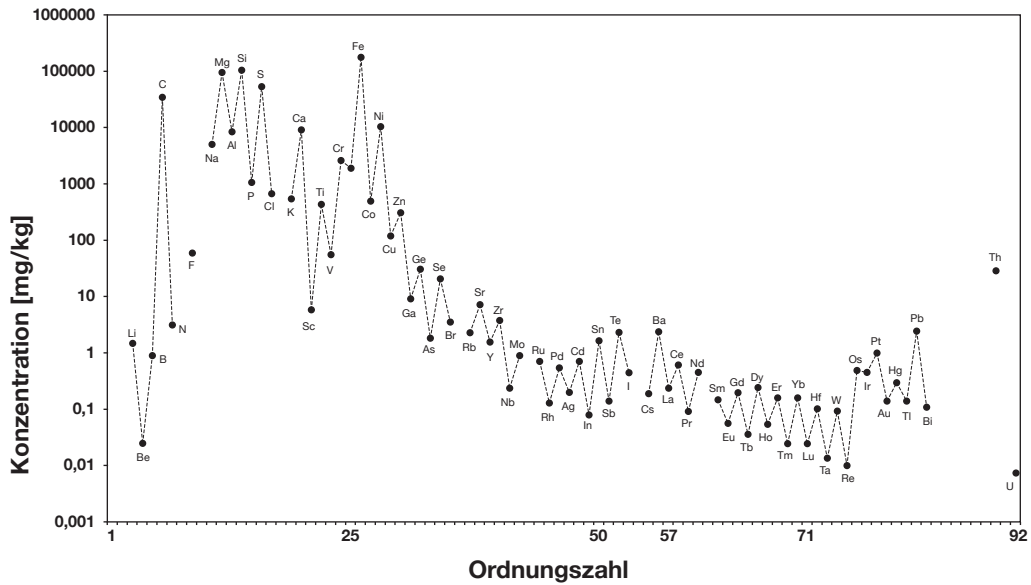


Abbildung 3.2: Häufigkeit von Elementen in C1-Chondriten (McDonough & Sun 1995)

3.2 Radioaktivität

Radioaktivität (lat. radius = Strahl, Speiche; activitas = Tätigkeit) ist die Eigenschaft bestimmter Nuklide, spontan Teilchen- oder Gammastrahlung aus dem Atomkern zu emittieren oder nach dem Einfang eines Hüllenelektrons durch den Atomkern Röntgenstrahlung aus der Hülle auszusenden.

Radioaktive Stoffe sind Stoffe, die Radionuklide enthalten. Da in der Natur praktisch alle Stoffe Radionuklide enthalten, wird vom Gesetzgeber festgelegt, ab welchem Grenzwert „die Aktivität oder Konzentration im Zusammenhang mit dem Strahlenschutz nicht außer Acht gelassen werden kann“ (Amtsblatt der Europäischen Gemeinschaften vom 29.6.1996).

3.2.1 Radioaktiver Zerfall

Der radioaktive Zerfall ist statistischer Natur, jeder radioaktive Kern zerfällt unabhängig von seinen Nachbarkernen mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit. Diese wird durch die Zerfallskonstante λ ausgedrückt. Für ein einzelnes Atom eines radioaktiven Nuklids kann der Zerfallszeitpunkt nicht vorhergesagt werden. Zwei Kerne des gleichen Nuklids wandeln sich mit der gleichen Wahrscheinlichkeit innerhalb des gleichen Zeitraums um, auch wenn sie zu unterschiedlichen Zeitpunkten entstanden sind. Die Zerfallswahrscheinlichkeit ist durch die Eigenschaften der betreffenden Kernart bedingt und unabhängig vom chemischen und physikalischen Zustand des Radionuklids. Ausnahmen siehe Absatz 3.4.4

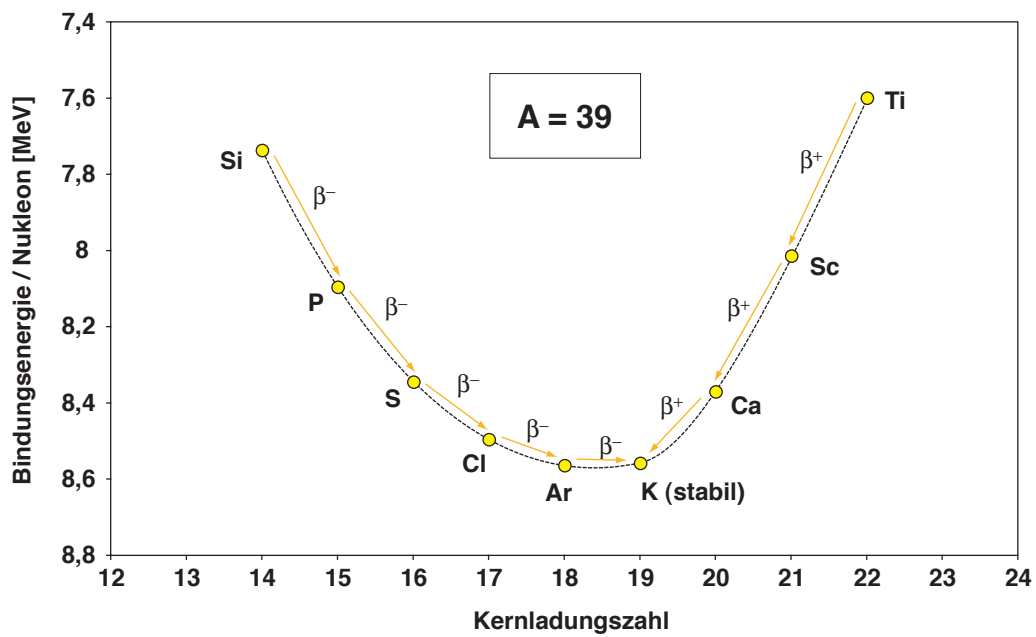
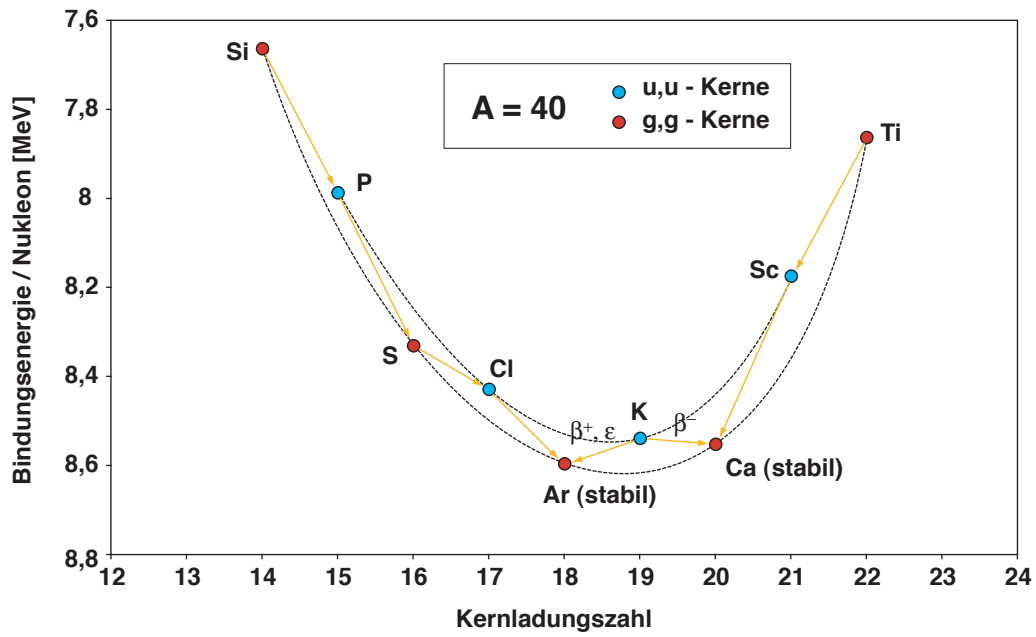


Abbildung 3.3: Isobarenparabeln zur Veranschaulichung des Zerfalls von ^{40}K für (u,u) und (g,g)-Kerne sowie am Beispiel ^{39}K für (u,g)-Kerne

3 Physikalische Grundlagen

Aus der konstanten Zerfallswahrscheinlichkeit und der Unabhängigkeit der einzelnen Zerfallsakte folgt, dass die Aktivität A , (die Anzahl der Atomkerne eines Nuklids, die sich in einem Zeitintervall dt umwandeln) proportional der Anzahl N der zu diesem Zeitpunkt vorhandenen radioaktiven Kerne ist.

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda N$$

Unter der Bedingung N_0 sei die Anzahl der zur Zeit $t = 0$ vorhandenen Kerne erhält man durch Lösung dieser Differentialgleichung das Zerfallsgesetz:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad \text{bzw.} \quad A(t) = A_0 \cdot e^{-\lambda t}$$

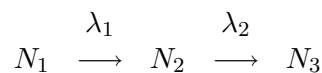
Aus der Zerfallskonstante λ errechnet sich das anschauliche Maß der Halbwertszeit ($T_{1/2}$). Man versteht darunter jene Zeitspanne, in der sich die Hälfte der ursprünglich vorhandenen Atomkerne umwandelt.

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

Die Einheit der Aktivität ist das Becquerel [Bq]. Findet in einer Probe ein Zerfall pro Sekunde statt, so hat diese Probe die Aktivität von 1 Bq. Die spezifische Aktivität gibt an, wie viele Zerfälle pro Sekunde in einer bestimmten Masse einer Substanz stattfinden [Bq/kg]. Die Aktivitätskonzentration gibt an, wie viele Zerfälle pro Sekunde in einem bestimmten Volumen einer Substanz stattfinden [Bq/m³].

3.2.2 Mutter-Tochter-Systeme

Der genetische Zusammenhang zwischen zwei oder mehr aufeinanderfolgenden radioaktiven Kernarten wird durch die Begriffe Mutter-, Tochter-, Enkelnuklid usw. gekennzeichnet ($N_1, N_2 \dots N_n$). Je nachdem, wie sich in solchen Systemen die Halbwertszeiten zueinander verhalten, kann es zur Ausbildung von radioaktiven Gleichgewichten kommen.



Für die zeitliche Änderung der Anzahl der Atome des Mutter- bzw. Tochternuklids gilt:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

Dieses System von Differentialgleichungen beschreibt das Verhältnis von Mutternuklid zu Tochternuklid. Die Lösung für das Tochternuklid ist:

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{1(0)}(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{2(0)}e^{-\lambda_2 t}$$

Unter der Annahme, dass zum Zeitpunkt $t = 0$ nur das Mutternuklid vorhanden war (das Tochternuklid vollständig abgetrennt war) fällt der letzte Term weg. Statt der Anzahl der Atome N kann auch die Aktivität A eingesetzt werden, womit die Beziehung lautet:

$$A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot A_{1(0)}(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})$$

Von einer Gleichgewichtseinstellung kann man dann sprechen, wenn der Klammerausdruck den Wert 1 erreicht. Als Faustregel kann man bei einem Halbwertszeitunterschied um mindestens Faktor 2 nach 10 Halbwertszeiten des Tochternuklids mit einer Gleichgewichtseinstellung rechnen. Unter der Annahme, dass zum Zeitpunkt $t = 0$ nur das Mutternuklid vorhanden ist, ergibt sich für mehrere, aufeinanderfolgende Zerfälle von Nukliden mit den Zerfallskonstanten $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n$:

$$N_n(t) = c_1 e^{-\lambda_1 t} + c_2 e^{-\lambda_2 t} + c_3 e^{-\lambda_3 t} + \dots + c_n e^{-\lambda_n t}$$

$$c_1 = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \dots (\lambda_n - \lambda_1)} \cdot N_n(t = 0)$$

$$c_2 = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \dots (\lambda_n - \lambda_2)} \cdot N_n(t = 0)$$

$$c_n = \frac{\lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot \lambda_3 \dots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \dots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} \cdot N_n(t = 0)$$

Aus dieser Beziehung ergeben sich drei Spezialfälle:

1. Hat das Mutternuklid eine größere Halbwertszeit als das Tochternuklid, so ergibt sich die Einstellung des „laufenden“ Gleichgewichtes. In diesem Fall durchlaufen sowohl die Gesamtaktivität als auch die Aktivität des Tochternuklids ein Maximum, im weiteren Verlauf bleibt $A_2 > A_1$ (Abbildung 3.4). Im Gleichgewichtszustand gilt:
2. Hat das Mutternuklid eine sehr viel größere Halbwertszeit als das Tochternuklid, so ergibt sich die Einstellung des „säkularen“ Gleichgewichtes. Die Aktivitäten A_2 und A_1 werden praktisch gleich (Abbildung 3.5).
3. Ist die Halbwertszeit des Tochternuklids größer als die des Mutternuklids, kommt es zu keiner Gleichgewichtseinstellung. Die Verhältnisse sind in Abbildung 3.6 dargestellt.

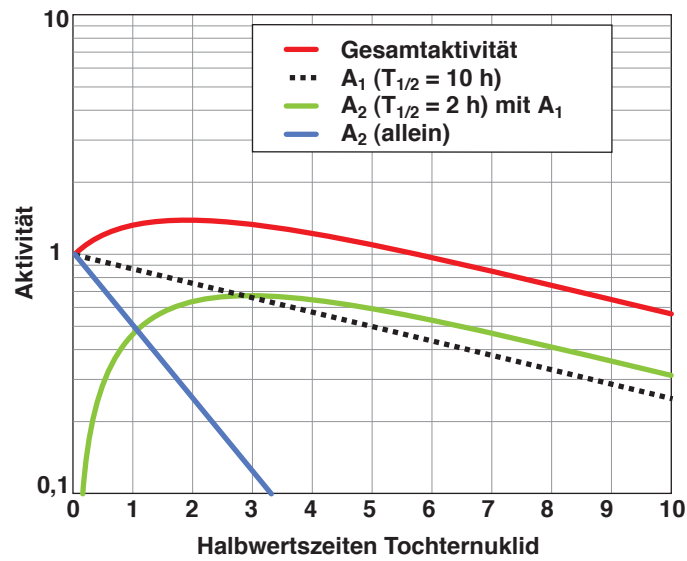


Abbildung 3.4: Einstellung des laufenden Gleichgewichtes

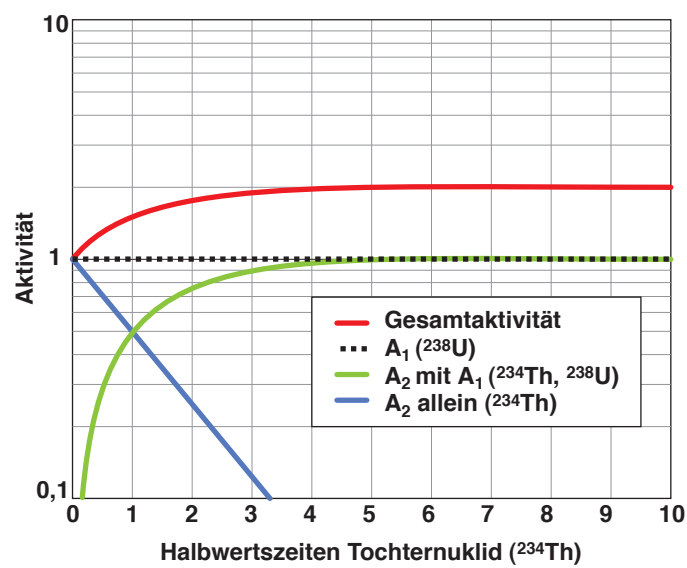


Abbildung 3.5: Einstellung des säkularen Gleichgewichtes

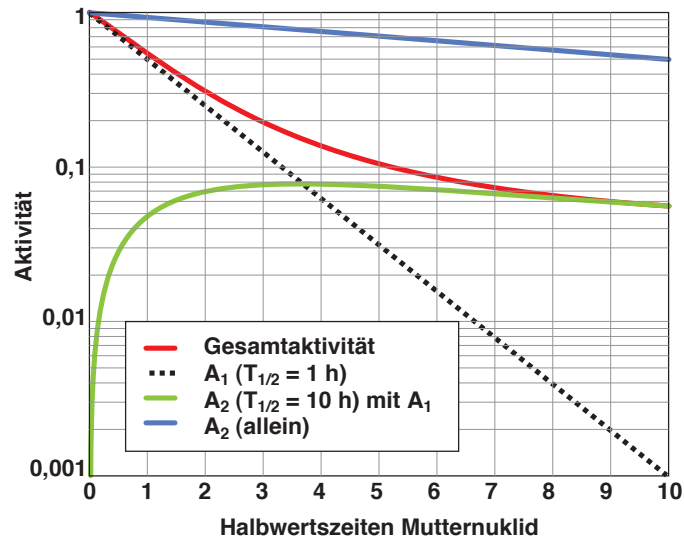


Abbildung 3.6: Keine Gleichgewichtseinstellung

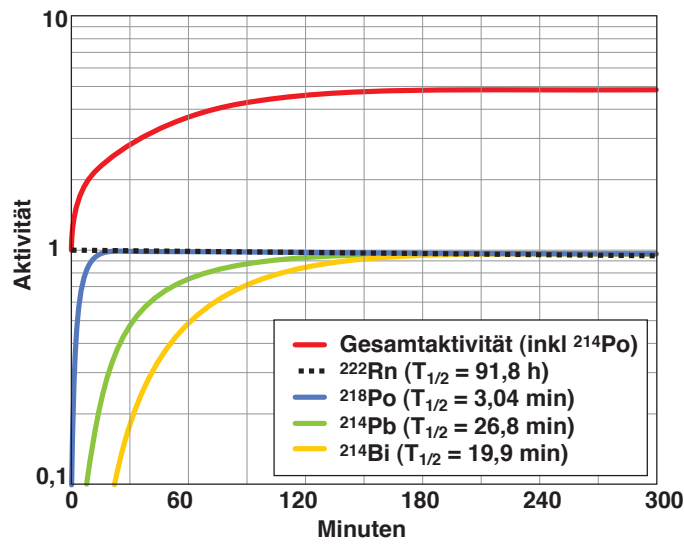


Abbildung 3.7: Gleichgewichtseinstellung in einer Zerfallsreihe (^{222}Rn)

3.2.3 Fallbeispiel Radon und seine Folgeprodukte:

In der Zerfallreihe von ^{238}U tritt das Isotop 222 des Edelgases Radon auf. Aufgrund seiner Halbwertszeit von 91,8 h kann es durch Diffusion aus der uranhaltigen Substanz, in der es entstanden ist, entweichen, bzw. verhältnismäßig leicht abgetrennt werden. Die Zunahme der Aktivität infolge des Nachwachsens der Tochterprodukte ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi und ^{214}Po ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Die Aktivitätskurve von ^{214}Po fällt wegen der kurzen Halbwertszeit von nur 0,164 ms mit derjenigen von ^{214}Bi zusammen und wird deshalb nicht separat dargestellt. Unter Vernachlässigung von ^{210}Pb (Halbwertszeit 22,3 a), welches für den gezeigten Beobachtungszeitraum als stabil betrachtet werden kann, erreicht das System sein Aktivitätsmaximum und damit das Gleichgewicht nach 228,6 min. Danach nimmt die Gesamtaktivität mit der Halbwertszeit von ^{222}Rn (91,8 h) ab.

3.3 Zerfallsarten

Je nach auftretender Strahlenart werden α -, β - und Protonen-Zerfall sowie isomerer γ -Übergang unterschieden. Weiters beobachten wir Elektroneneinfang, Spontanspaltung und die Emission von Neutronen und mittelschweren Kernen wie z.B. ^{14}C und ^{24}Ne . Freie Neutronen haben eine Halbwertszeit von etwa 10,25 min und zerfallen unter β -Emission zu Protonen. Unter δ -Strahlung verstand man einst die Emission von Konversionselektronen. Zur Darstellung der energetischen Verhältnisse verwendet man Zerfallsschemata, die folgenden Konventionen gehorchen: die verschiedenen Kernzustände mit den jeweiligen Anregungsenergien werden durch horizontale „Energie-Niveaulinien“ dargestellt. Das unterste Niveau mit der Energie E_0 entspricht dem Grundzustand. Die beobachteten Übergänge zwischen den Niveaus werden durch Pfeile dargestellt (Abbildung 3.8).

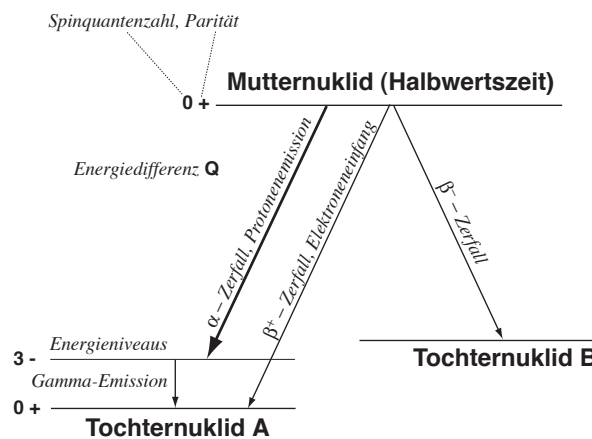


Abbildung 3.8: Zerfallsschema allgemein

Entstehen beim Zerfall weitere Radionuklide, so spricht man von Zerfallsreihen. Im irdischen Teil der Natur kennen wir drei dieser Reihen, nämlich die von ^{238}U , ^{235}U und ^{232}Th ihren Ausgang nehmenden Zerfallsreihen. Nach älterer Nomenklatur werden sie als Uran-Radium-, Uran-Actinium- und Thorium-Reihe bezeichnet. Die Endprodukte sind stabile Isotope des Bleis. Dazu kommt noch die, auf der Erde bereits „ausgestorbene“, aber in Reaktoren zu beobachtende Neptunium-Reihe (^{241}Am), deren Endglied das Wismutisotop ^{209}Bi ist.

3.3.1 Alphastrahlung

ist eine Korpuskularstrahlung (corpusculum: lat. Körperchen) mit positiver Ladung. Beim α -Zerfall wird ein ^4He -Kern emittiert, sodass sich die Massenzahl des emittierenden Nuklids um 4, die Ordnungszahl um 2 erniedrigt. Die Geschwindigkeit der Teilchen kann ein Zehntel der Lichtgeschwindigkeit erreichen. Anfängliche Schwierigkeiten verursachte der Umstand, dass α -Teilchen den Potentialwall des Kernes theoretisch nicht überwinden können. Gamov (1928) konnte mit Hilfe der Wellenmechanik zeigen, dass eine gewisse Wahrscheinlichkeit besteht, dass α -Teilchen den Potentialwall durch den Tunneleffekt durchdringen können und legte damit das theoretische Fundament für die Existenz des α -Zerfalls. Die freiwerdende Energie setzt sich aus folgenden Komponenten zusammen: Energie des α -Teilchens, Rückstoßenergie des Kernes sowie der Anregungsenergie des Tochterkerns. Abbildung 3.9 zeigt die Zerfallsschemata für einen einfachen und einen komplexen α -Zerfall.

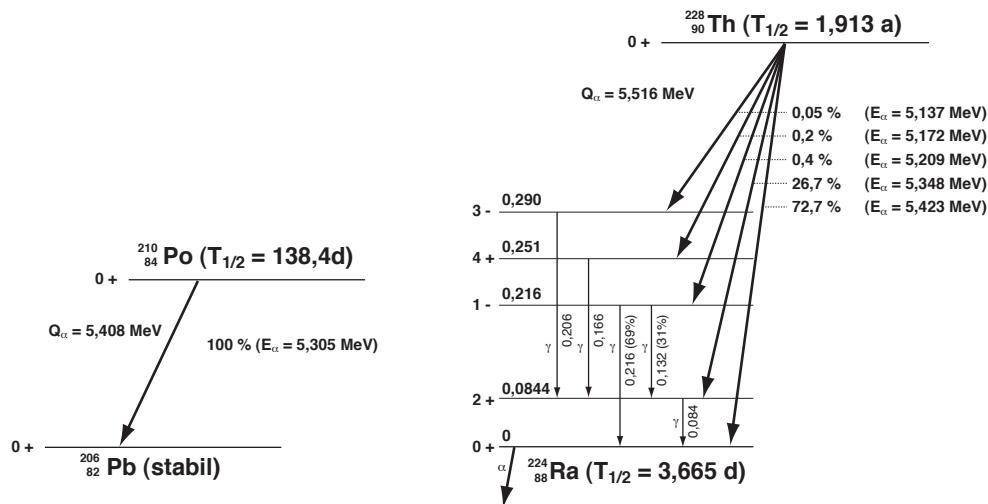


Abbildung 3.9: Zerfallsschemata für ^{210}Po und ^{228}Th

3.3.2 Betastrahlung

ist ebenfalls eine Korpuskularstrahlung. Man unterscheidet zwei Arten des β -Zerfalls: β^+ - und β^- -Zerfall. In beiden Fällen werden ein Lepton (Elektron bzw. Positron) und ein Antineutrino bzw. ein Neutrino emittiert. Die Emission der zuletzt genannten Neutralteilchen wurde 1930 von Wolfgang Pauli postuliert und ist aus zwei Gründen erforderlich: Proton, Elektron und Neutron besitzen die Spinquantenzahl $s = \frac{1}{2}$. Damit der Spinerhaltungssatz bei der Umwandlung eines Neutrons in ein Proton unter Elektronenemission nicht verletzt wird, muss ein neutrales Teilchen mit der Spinquantenzahl $-\frac{1}{2}$ emittiert werden (für Neutrinos gilt $s = \frac{1}{2}$, für Antineutrinos $s = -\frac{1}{2}$). Der zweite Grund ist die Tatsache, dass das β -Teilchen nicht die gesamte Zerfallsenergie übernimmt und daher β -Spektren einen kontinuierlichen Verlauf zeigen. Die Zerfallsenergie wird zwischen den beiden emittierten Korpuskeln zufällig verteilt, was zur Folge hat, dass β -Spektren eben einen kontinuierlichen Verlauf bis zu einer für einen bestimmten Zerfall charakteristischen Maximalenergie aufweisen (Abbildung 3.10). Die von Null verschiedene Minimalenergie der β^- -Teilchen ergibt sich notwendigerweise zur Überwindung der elektrostatischen Anziehung des positiv geladenen Kernes. Aufgrund der geringen Masse der Leptonen können diese sehr hohe Geschwindigkeiten erreichen (bis zu 99,9% der Vakuumlichtgeschwindigkeit). Bei beiden β -Zerfällen bleibt die Massenzahl konstant, hingegen nimmt die Ordnungszahl die Werte $Z+1$ bzw. $Z-1$ in den Tochterkernen an. Ein typisches, einfaches Zerfallsschema ist in Abbildung 3.11 wiedergegeben.

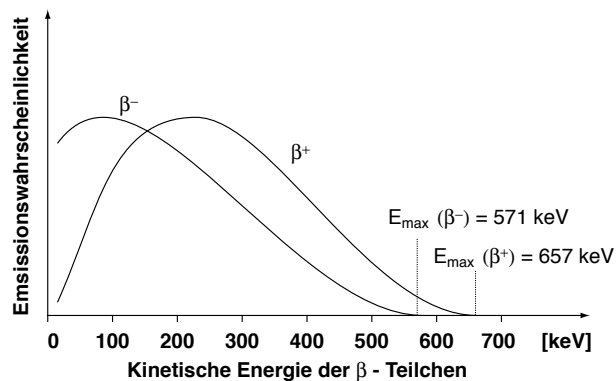
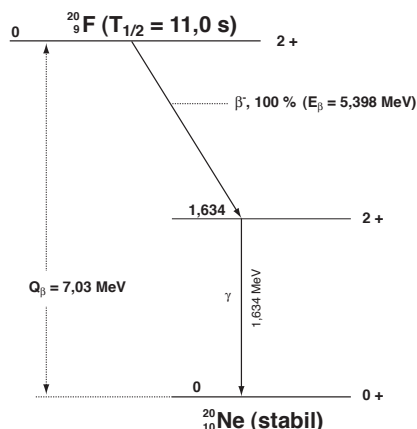


Abbildung 3.10: Energiespektrum der beim dualen Zerfall von ^{64}Cu auftretenden Positronen und Elektronen (nach [7])

In protonenreichen Atomen wird neben dem β^+ -Zerfall auch der Einfang von Hüllenelektronen beobachtet. Die Emission von Positronen ist wegen der Energieerhaltung grundsätzlich nur ab Energiedifferenzen über 1,02 MeV möglich. Bei höheren Energiedifferenzen tritt der Elektroneneinfang in Konkurrenz mit der Positronenemission auf, bei niedrigeren findet der Zerfall daher nur durch den Einfang

Abbildung 3.11: Zerfallsschema für ^{20}F

eines Hüllenelektrons, zumeist aus der K-Schale, statt. Die Differenzenergie liegt in letzterem Falle dann als Summe aus Anregungszustand des Produktkernes und den in diesem Fall monoenergetischen Neutrinos vor. Emittiert wird noch zusätzlich charakteristische Röntgenstrahlung infolge der Nachbesetzung des eingefangenen Elektrons.

3.3.3 Gammastrahlung

ist die Emission elektromagnetischer Wellen aus dem Atomkern. Gammastrahlen besitzen keine elektrische Ladung und werden daher im Magnetfeld nicht abgelenkt. Sie zeichnen sich durch ein hohes Durchdringungsvermögen aus, weshalb die Wahrscheinlichkeit einer Wechselwirkung gering ist.

3.3.4 Konversion und Auger-Elektronen

Konversionselektronen sind monoenergetisch und treten bei der Übertragung von Energie aus dem Kern auf ein Hüllenelektron auf. Der Konversionskoeffizient gibt das Verhältnis der Emissionswahrscheinlichkeiten für Konversionselektronen und Gammaphotonen für einen bestimmten Energieübergang des betreffenden Atomes an. Im allgemeinen ist der Konversionskoeffizient umso größer, je geringer die Energiedifferenz und je größer die Differenz der Spinquantenzahlen eines angeregten Zustands sind. Er nimmt daher mit steigender Ordnungszahl und Lebensdauer des angeregten Zustands zu. Die partiellen Konversionskoeffizienten geben dieses Verhältnis für jeweils eine bestimmte Elektronenschale an. Bei der Nachbesetzung solcherart entstandener Lücken kommt es zur Emission charakteristischer Röntgenstrahlung. Diese kann ihrerseits wieder zu einem analogen Prozess unter Ausbildung von Resonanzen führen. Die dabei auftretenden, niedrig-monoenergetischen

Elektronen werden als Auger-Elektronen bezeichnet. Die Emission von Auger-Elektronen tritt somit in Konkurrenz zur Röntgenfluoreszenz auf.

3.3.5 Protonenzerfall

tritt nur bei Kernen mit sehr großem Protonenüberschuss auf (^{112}Cs , ^{113}Cs , ^{109}I , ^{103}Sb , ^{131}Eu , ^{141}Ho , ^{145}Tm zu 100% und bei einigen anderen partiell). Protonenzerfall wurde erstmals 1981 nach dem Beschuss von ^{96}Ru mit 261 MeV ^{58}Ni -Ionen an dem derart hergestellten ^{151}Lu nachgewiesen.

3.3.6 Emission mittelschwerer Kerne

wird auch in den natürlichen Zerfallsreihen beobachtet. Die Radiumisotope ^{222}Ra , ^{223}Ra , ^{224}Ra und ^{226}Ra emittieren auch ^{14}C Atome mit Energien im Bereich von 30 MeV. Weiters sind Emissionen von ^{24}Ne (^{232}U), ^{24}Ne und ^{28}Mg (^{234}U) bekannt. ^{234}U kann somit auf vier Arten zerfallen: α -Zerfall, Emission von ^{24}Ne - oder ^{28}Mg -Kernen sowie Spontanspaltung. Da diese Art von Zerfällen quasi eine Mittelstellung zwischen Zerfall und Spontanspaltung einnimmt, sprechen manche Autoren auch von „Cluster-Radioaktivität“.

3.3.7 Verzögerte Emission schwerer Teilchen

tritt nur bei hochangeregten Kernen auf. Bekannt sind verzögerte Emissionen von Protonen, Neutronen und α -Teilchen. Verzögerte Neutronen werden vorzugsweise dort beobachtet, wo nach einem Zerfall ein angeregter Kern mit einer Neutronenzahl knapp oberhalb einer der magischen Grenzen vorliegt (z.B. $^{87}\text{Kr} \rightarrow ^{86}\text{Kr}$, siehe Abb. 3.12). Analog kann bei protonenreichen Kernen verzögerte Protonenemission beobachtet werden (z.B. $^{53\text{m}}\text{Co} \rightarrow ^{52}\text{Fe}$). Größere Bedeutung hat die verzögerte Emission von Neutronen nach der Spaltung von ^{235}U , da dieser Vorgang erheblichen Einfluss auf die Steuerbarkeit von Kernreaktoren hat. Würden alle Neutronen gleichzeitig freigesetzt, müsste die Reaktivitätsregelung auf eine andere Basis gestellt werden, da mechanische Regelungen nicht rasch genug reagieren können.

Entsprechend der Emission von verzögerten Neutronen aus neutronenreichen Kernen wird für protonenreiche Kerne die Emission von verzögerten Protonen beobachtet. Zum Beispiel kommt es nach dem β^+ -Zerfall von ^{17}Ne in das hochangeregte ^{17}F innerhalb von $<10^{-12}$ s zur Protonenemission mit dem doppelt magischen ^{16}O als Endprodukt. Vergleichbar, aber mit messbarer Halbwertszeit (0,42 s) ist die Protonenemission von $^{53\text{m}}\text{Co}$. Doppelte Protonenemissionen sind von ^{22}Al und ^{26}P bekannt. Die Emission der beiden Protonen erfolgt in diesem Fall sukzessive und nicht gleichzeitig (als ^2He -Kern). α -Teilchen, welche aus angeregten Kernzuständen schwerer Kerne emittiert werden, haben hohe Energien und werden als α -Teilchen hoher Reichweite bezeichnet (z.B. $^{212\text{m}}\text{Po}$, $E_\alpha = 11,7$ MeV). Verzögerte Emission von α -Teilchen nach β -Zerfällen ist ebenso bekannt. Ein Beispiel ist ^{110}I , das sowohl direkt α -Teilchen aussendet als auch verzögert nach vorausgehendem β^+ -Zerfall.

3.4 Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie

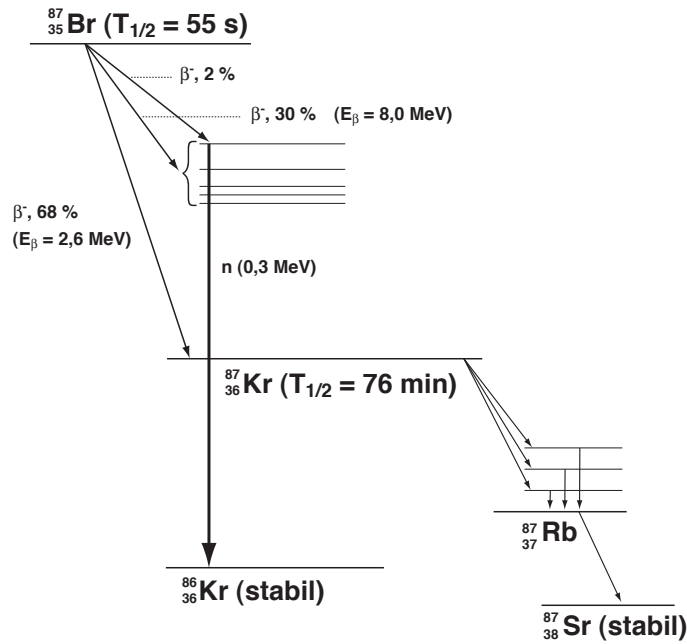


Abbildung 3.12: Zerfallsschema von ^{87}Br

Primäre Spaltungsfragmente emittieren auch schwerere Kerne bis hin zu C und O. Die extrem neutronenreichen Nuklide ^6He und ^8He wurden über solche Zerfallsreaktionen entdeckt. Tritium zählt gleichfalls zu den Produkten dieses Reaktionstyps, die Ausbeute beträgt etwa ein T-Atom pro 106 Spaltungen.

Wird beim Zerfall eines Radionuklids ein angeregter Kernzustand des Folgeproduktes besetzt, der über der Spaltschwelle zu liegen kommt, ist eine verzögerte Kernspaltung die Folge. Dieser Umstand ist auch für die Begrenzung des Aufbaus schwerster Elemente im astrophysikalischen r-Prozess verantwortlich.

3.3.8 Spontanspaltung

tritt nur bei Nukliden mit $Z \geq 90$ auf und führt, meist unter Neutronen- und γ -Emission zur Bildung von Spaltungsprodukten.

3.4 Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie

Je nachdem, ob die Emission elektrische Ladung besitzt oder nicht, wird zwischen direkt ionisierender und indirekt ionisierender Strahlung unterschieden. Bei der Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie erfolgt (direkt oder indirekt) eine Reaktion mit den Hüllenelektronen der betroffenen Atome. Es tritt sowohl Anregung von Elektronen als auch Ionisation auf, wobei üblicherweise die Ionisation

3 Physikalische Grundlagen

nach dem Muster $A \rightarrow A^+ + e^-$ überwiegt. Die mittlere Energie zur Erzeugung eines Ionenpaares in Luft beträgt 35 eV.

Eine Wechselwirkung mit dem Atomkern tritt in der Natur nur mit ungeladenen Teilchen bzw. γ -Strahlung auf und wird zum Nachweis von Neutronen verwendet (z.B. Bildung von Rückstoßprotonen beim elastischen Stoß von Neutronen mit Wasserstoffkernen). Charakteristische Werte für ionisierende Strahlung sind Reichweite und Halbwertsdicke bezogen auf bestimmte Materialien. Die Reichweite ist die maximal beobachtbare Eindringtiefe, sie wird in cm, zum besseren Vergleich unterschiedlicher Absorber auch häufig als Flächenmasse in g/cm^2 angegeben (siehe Tabelle 3.1). Die Halbwertsdicke ist jene Stoffdicke, nach deren Durchtreten die Intensität der Strahlung auf die Hälfte des ursprünglichen Wertes abgenommen hat.

Tabelle 3.1: Reichweiten der α -Strahlung von ^{214}Po ($E_\alpha = 7,69$ MeV)

Absorbierende Substanz	Extrapolierte Reichweite [cm]	Reichweite [g/cm^2]
Luft	6,95	8,5
Glimmer	0,0036	10,1
Aluminium	0,00406	11
Kupfer	0,00183	16,3
Gold	0,00140	27

3.4.1 Wechselwirkung von Alphastrahlen

Alphastrahlung ist eine direkt ionisierende Strahlung, die Teilchen geben ihre Energie beim Durchgang durch Materie fast ausschließlich durch elektrostatische Wechselwirkung mit Elektronen der Atomhülle ab. Die sehr seltenen Kernstöße tragen zum gesamten Energieumsatz praktisch nichts bei. Da die Wechselwirkung mit Materie sehr groß ist, ist die Reichweite von α -Strahlen sehr gering. Sie beträgt in Luft maximal einige cm (^{232}Th , $E_\alpha = 4$ MeV, Reichweite in Luft 2,7 cm). Zur Abschirmung genügt ein Blatt Papier. In Materie erreicht die Ionisationsdichte kurz vor der Absorption ein Maximum („Bragg-Peak“, Abb. 3.13).

Zur Messung der Energie von α -Strahlung werden Magnetspektrometer oder Oberflächensperrschicht-Detektoren eingesetzt (siehe Kapitel 4). Wegen der großen Wechselwirkung erfordern derartige Messungen eine sehr aufwendige Probenpräparation mit Probendicken von wenigen mg/cm^2 , um eine Verfälschung der Resultate durch Selbstabschirmung ausschliessen zu können. Durch die Vermeidung der Selbstabschirmung erlaubt die Flüssigszintillation eine sehr empfindliche, aber bezüglich der Energieauflösung relativ ungenaue Detektion von α -Strahlen.

Protonen, Deuteronen und schwerere Ionen zeigen bezüglich der Wechselwirkung mit Materie ähnliche Eigenschaften wie α -Strahlen.

3.4 Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie

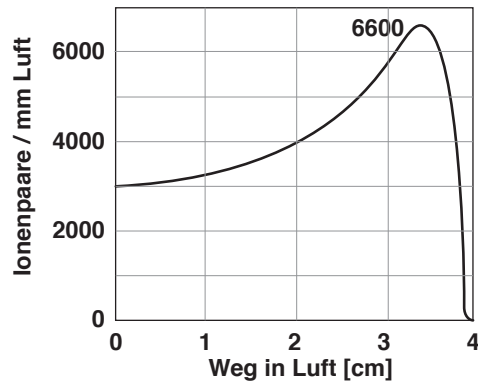


Abbildung 3.13: Spezifische Ionisation der α -Strahlen von ^{210}Po in Luft als Funktion des zurückgelegten Weges („Bragg Peak“, nach [9])

3.4.2 Wechselwirkung von Betastrahlen

Die Abbremsung von β^- -Strahlen erfolgt fast ausschließlich durch Coulombwechselwirkung oder durch Stöße mit Hüllenelektronen. Die Reichweite von β^- -Teilchen erreicht in Luft einige Meter (^{32}P , $E_\beta = 1,7 \text{ MeV}$, Reichweite in Luft: 7 m), die spezifische Ionisation liegt bei 4-8 Ionenpaaren pro mm Wegstrecke. Während der Abbremsung wird kontinuierliche, elektromagnetische Strahlung (Bremsstrahlung) emittiert, deren Energie proportional zur Energie des β^- -Teilchens und zur Ordnungszahl des absorbierenden Materials ist.

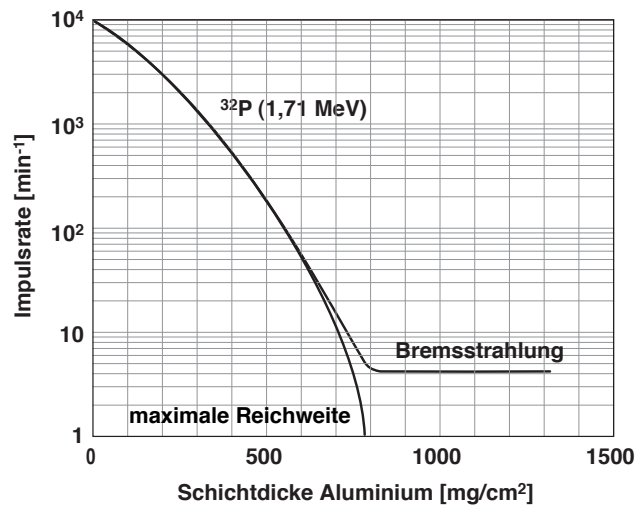


Abbildung 3.14: Mittels GM-Zählrohr ermittelte Absorptionskurve für die β^- -Strahlung von ^{32}P in Aluminium (nach [9])

3 Physikalische Grundlagen

Bei der Absorption von β -Strahlen können mehrere Vorgänge unterschieden werden (siehe Abbildung 3.14, 3.15, 3.16):

Wechselwirkung mit Elektronen: Ionisation der Atome im Absorber, entscheidend ist der Quotient aus Ordnungszahl und Massenzahl Z/A , der ein Maß für die Elektronendichte darstellt.

Wechselwirkung mit Atomkernen: als Folge der Ablenkung energiereicher β^- -Teilchen tritt eine kontinuierliche Photonenemission, die Bremsstrahlung auf. Die Energieabnahme durch die Abgabe von Bremsstrahlungsquanten ist proportional der Ordnungszahl des Absorbers und der Energie der β^- -Teilchen (Abb. 3.15).

Rückstreuung: mit zunehmender Ordnungszahl des Absorbers wird ein Anstieg der Streuung von β^- -Teilchen in einem Winkel von 180° beobachtet (Abb. 3.16).

Annihilation von β^+ -Teilchen unter der Emission von zwei γ -Quanten mit je 511 keV in entgegengesetzter Richtung (Impulserhaltung).

Čerenkovstrahlung: Diese Form der Emission von Photonen im sichtbaren Bereich wird bei der Ausbreitung von β -Strahlung in einem durchsichtigen Medium wie z.B. Wasser oder Plexiglas beobachtet. Voraussetzung ist, dass die Geschwindigkeit v der β -Teilchen höher als die Lichtgeschwindigkeit im betreffenden Medium ist, also die Bedingung $v \geq c/n$ erfüllt, wobei c die Vakuumlichtgeschwindigkeit und n die Brechzahl des Mediums sind.

3.4 Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie

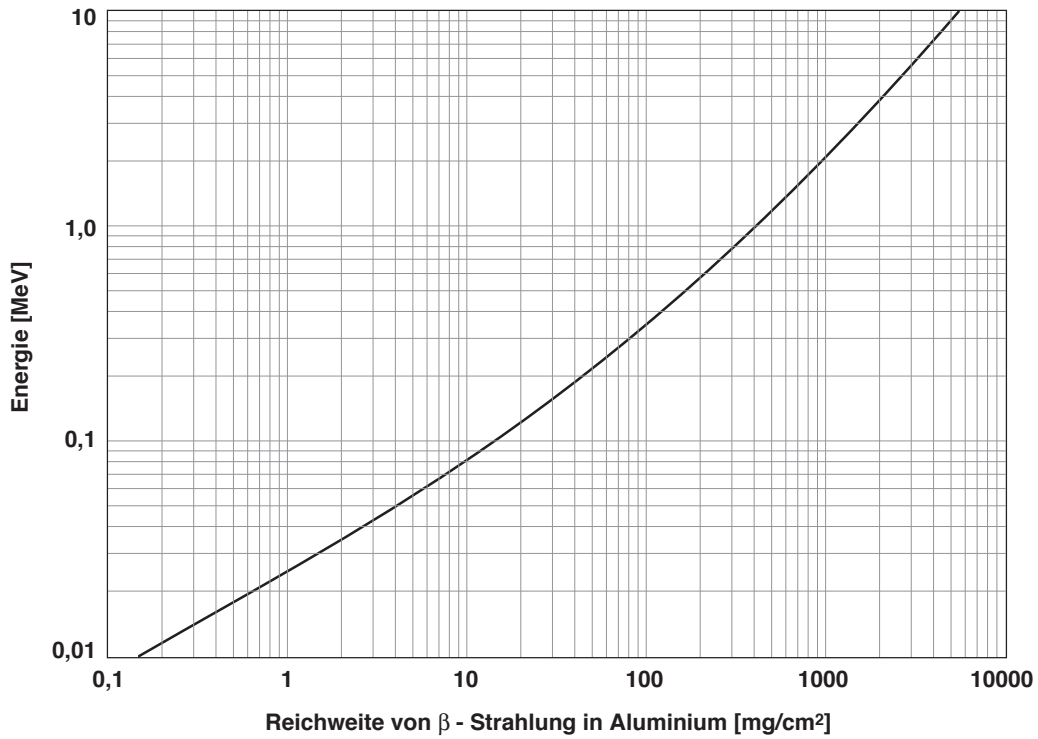


Abbildung 3.15: Energie-Reichweite-Beziehung für Elektronen- und β -Strahlen in Aluminium (nach [7])

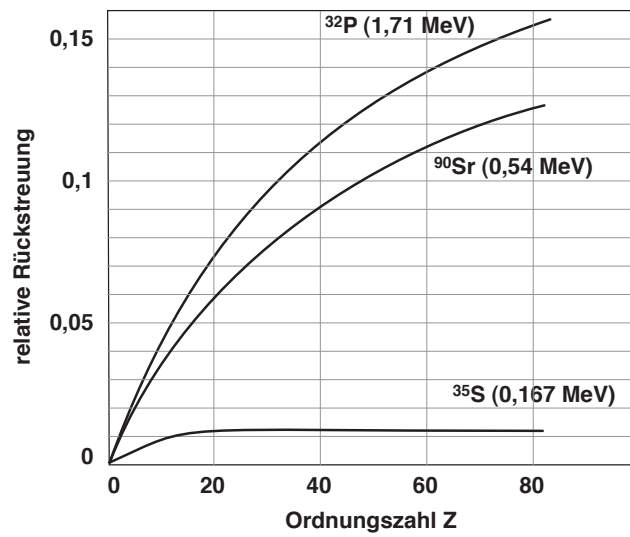


Abbildung 3.16: Rückstreuung von β -Strahlung verschiedener Energie in Abhängigkeit von der Ordnungszahl Z des Absorbers (nach [9])

3.4.3 Wechselwirkung von Gammastrahlen

Die Intensität I der γ -Strahlung sinkt exponentiell mit dem für ein bestimmtes Material charakteristischen Absorptionskoeffizienten μ und der Dicke d des Abschirmmaterials

$$I_d = I_0 \cdot e^{-\mu d}$$

Der Absorption von γ -Quanten liegen drei voneinander unabhängige Effekte zugrunde: Photoeffekt, Comptoneffekt und Paarbildung. Entsprechend setzt sich der totale Absorptionskoeffizient additiv aus diesen Komponenten zusammen (Abbildung 3.17).

$$\mu_{\text{total}} = \mu_{\text{photo}} + \mu_{\text{comp}} + \mu_{\text{paar}}$$

Photoeffekt: Bei dieser Form der Wechselwirkung gibt das γ -Quant seine gesamte Energie an ein Hüllenelektron ab, vermindert um die Bindungsenergie des Elektrons.

Compton-Streuung: Teilbeträge der Energie des γ -Quants können durch Compton-Streuung an Elektronen abgegeben werden. Der Betrag hängt vom Streuwinkel ab, die resultierende Energieverteilung ist daher eine kontinuierliche.

Elektron-Positron-Paarbildung: ein γ -Quant mit einer Energie von mindestens 1022 keV kann im Feld eines Atomkerns spontan ein Elektron-Positron-Paar bilden. Dieser Betrag entspricht dem Energieäquivalent der Ruhemasse des Teilchenpaares. Die verbleibende Energie wird zwischen den gebildeten Teilchen als kinetische Energie aufgeteilt.

Kernphotoeffekt: durch diesen können hochenergetische Photonen Protonen und Neutronen aus dem Atomkern herausschlagen. Da jedoch die Nukleonen wesentlich stärker an den Kern gebunden sind, müssen die sehr großen, aber kurzreichweitigen Kernkräfte überwunden werden. Beispiele sind ${}^9\text{Be}(\gamma, n){}^8\text{Be}$ (Energieschwelle 1,67 MeV) und ${}^2\text{D}(\gamma, n){}^1\text{H}$ (Energieschwelle 2,23 MeV).

Halbwertsdicke

Abhängig von der Energie der γ -Quanten können für bestimmte Materialien Gesamtabsorptionskoeffizienten angegeben werden (Abb. 3.18). Einen praktischen Wert stellt auch die Halbwertsdicke dar, die für ein bestimmtes Material und eine bestimmte γ -Photonenenergie angibt, nach welcher Schichtdicke die Strahlungsintensität auf die Hälfte ihres ursprünglichen Wertes abgenommen hat (Abb. 3.19).

3.4 Wechselwirkung von Kernstrahlung mit Materie

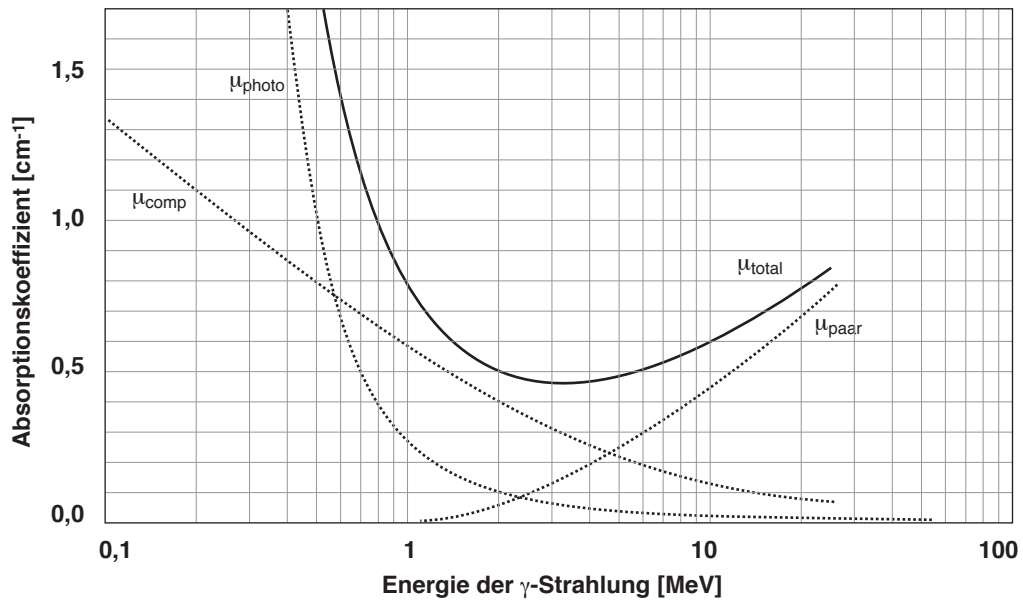


Abbildung 3.17: Absorptionskoeffizienten für γ -Strahlung in Blei (nach Davisson & Evans 1952)

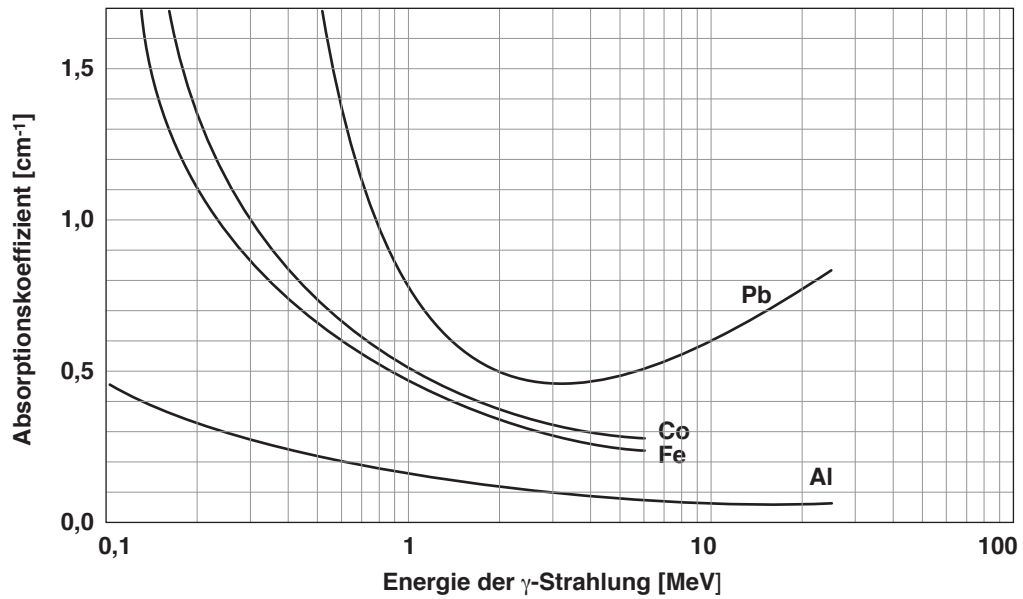


Abbildung 3.18: Gesamtabsorptionskoeffizienten für γ -Strahlung in verschiedenen Stoffen (nach Davisson & Evans 1952)

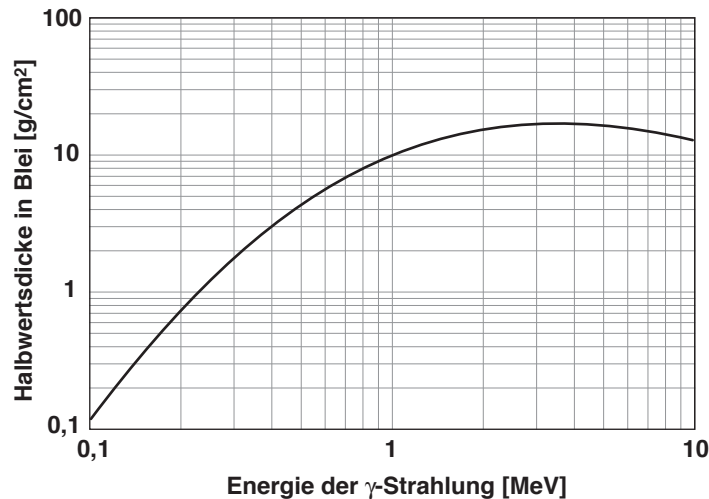


Abbildung 3.19: Energieabhängigkeit der Halbwertsdicke von Blei für γ -Strahlung (nach Davisson & Evans 1952)

3.4.4 Änderungen der Halbwertszeit

Eine Beeinflussung der Halbwertszeit durch äußere Bedingungen wird nur bei Nukliden beobachtet, bei denen Hüllenelektronen am Zerfall beteiligt sind. Beispiele dafür sind ${}^7\text{Be}$ und ${}^{235\text{m}}\text{U}$. ${}^7\text{Be}$ zerfällt durch Elektroneneinfang mit einer Halbwertszeit von 53 d zu ${}^7\text{Li}$. In metallischem Be ist die räumliche Ausdehnung der 1s Elektronenwolke kleiner als in Be^{2+} Verbindungen. Diese räumlich größere Nähe der K-Elektronen zum Kern führt zu einer Verringerung der Halbwertszeit um einen Faktor von etwa 10^{-3} . Eine analoge Auswirkung zeigt die Erhöhung des Druckes. Bei 270 kbar wurde eine Abnahme der Halbwertszeit um 0,6% nachgewiesen.

Vergleichbare Änderungen wurden beim Zerfall der Isomere ${}^{99\text{m}}\text{Tc}$, ${}^{90\text{m}}\text{Nb}$, ${}^{125\text{m}}\text{Te}$ und ${}^{235\text{m}}\text{U}$ aufgrund der Beeinflussung der Emission von Konversionselektronen durch die Elektronendichte der äußeren Schalen beobachtet. Speziell beim ${}^{235\text{m}}\text{U}$, dessen Energieniveau eine Differenz von nur 73 eV zum Grundzustand aufweist, konnten Abweichungen der Zerfallskonstante von bis zu 10% gemessen werden. Der Grund liegt darin, dass bei der Emission derart niederenergetischer Konversionselektronen nur Elektronen aus den 6s, 6p, 5f, 6d und 7s Niveaus in Frage kommen und ebendiese an den chemischen Bindungen beteiligt sind. Die größten Unterschiede der Halbwertszeit von ${}^{235\text{m}}\text{U}$ wurden zwischen metallischem Uran ($T_{1/2} = 24,68$ min) und in metallischem Ag implantierten ${}^{235\text{m}}\text{U}$ -Ionen gefunden ($T_{1/2} = 27,10$ min).

3.5 Statistik des radioaktiven Zerfalls

3.5.1 Berechnung des Messfehlers

Der Zerfall eines radioaktiven Atomkernes erfolgt spontan und völlig unabhängig von den anderen Kernen der radioaktiven Substanz. Es lässt sich nicht vorhersagen, wann ein bestimmter Kern zerfallen wird. Änderungen der Halbwertszeit durch äußere Einflüsse, wie der chemischen Bindung, werden nur bei Radionukliden beobachtet, bei denen Hüllenelektronen am Zerfall beteiligt sind (K-Elektroneneinfang). Dieses Phänomen wurde in Kapitel 3.4.4 behandelt.

Die Tatsache, dass von einer sehr großen Zahl von Kernen eines Radionuklids ein bestimmter Bruchteil pro Zeiteinheit zerfällt (siehe Zerfallsgesetz) beweist, dass der radioaktive Zerfall einer statistischen Gesetzmäßigkeit unterliegt. Es besteht eine bestimmte Wahrscheinlichkeit, dass ein bestimmter Kern in der nächsten Zeiteinheit zerfällt. Ist N_0 die Anzahl der Atome zum Zeitpunkt $t = 0$, N_t die Anzahl zum Zeitpunkt t und λ die Zerfallskonstante, so gilt nach dem Zerfallsgesetz für die relative Häufigkeit P (für $N \rightarrow \infty$ die Wahrscheinlichkeit) des Zerfalls in der Zeiteinheit:

$$P = \frac{N_0 - N_t}{N_0} = \frac{N_0 - N_0 \cdot e^{-\lambda t}}{N_0} = 1 - e^{-\lambda t}$$

Da die Zerfallskonstante λ von der Zeit unabhängig ist, muss auch die Zerfallswahrscheinlichkeit von der Zeit unabhängig sein. Während der Messzeit t zerfallen $N_0 - N_t = N_0(1 - e^{-\lambda t})\lambda^{-1}$ Atomkerne eines radioaktiven Präparates. Bei wiederholten Messungen stellt man allerdings fest, dass die Impulse, die von $N_0 - N_t$ Zerfällen verursacht werden, einer merklichen Streuung unterliegen. Ersetzt man nun die Zerfälle durch die (proportionale) Anzahl registrierter Impulse (Impulszahl N) so findet man nach n Messungen eine Häufigkeitsverteilung der Messwerte um einen Mittelwert \bar{N}

$$\bar{N} = \frac{N_1 + N_2 + N_3 + \dots + N_n}{n} = \frac{\sum N_i}{n}$$

Die mittlere Abweichung von diesem Mittelwert beträgt

$$\overline{N_i - \bar{N}} = \frac{\sum |N_i - \bar{N}|}{n}$$

Die Standardabweichung wird durch folgende Gleichung definiert:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum (N_i - \bar{N})^2}{n - 1}}$$

beziehungsweise für $N \gg 1$

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum (N_i - \bar{N})^2}{n}}$$

3 Physikalische Grundlagen

Die statistische Verteilung der Messergebnisse digitaler Strahlenmessung ist die Poissonverteilung, welche aber nur für ganze Zahlen definiert ist. Für Werte von $\bar{N} > 5$ wird der Unterschied zwischen einer Poissonverteilung und einer Gauß- oder Normalverteilung vernachlässigbar.

Die Maxima der Poisson- und Gaußverteilung sind bei kleinen Werten von \bar{N} geringfügig gegeneinander verschoben, fallen aber bei großen Werten von \bar{N} zusammen. Aus der Poissonverteilung ergibt sich:

$$\sigma = \sqrt{\bar{N}}$$

Im Gegensatz zur Poissonverteilung ist die Gaußverteilung symmetrisch. Das bedeutet, dass 68,26% der Werte innerhalb $\pm\sigma$, 95,44% innerhalb $\pm 2\sigma$ und 99,27% innerhalb $\pm 3\sigma$ liegen. Diese Bedingungen eignen sich sehr gut zur Kontrolle der Messapparatur, die durch wiederholte Messung desselben Präparates und der statistischen Auswertung der Ergebnisse auf korrekte Funktion überprüft werden kann. Im Falle der Verwendung einer „Loss-Free-Counting unit“ kann im gleichen Arbeitsgang auch die Justierung des Korrekturfaktors für hohe Zählraten durchgeführt werden.

Der geschätzte relative Fehler einer Einzelmessung ist:

$$\frac{\sqrt{\bar{N}}}{\bar{N}} = \frac{1}{\sqrt{\bar{N}}}$$

Er nimmt mit der Wurzel aus N und daher, bei entsprechend langer Halbwertszeit, auch mit der Wurzel aus der Messzeit ab. Die Impulsrate I_A eines Präparates ergibt sich aus der Probenaktivität A , der Ausbeute der Messanordnung η sowie der Differenz des Untergrunds U und der gemessenen Impulsrate I .

$$I_A = \eta \cdot A \qquad I_A = I - U = \left(\frac{N}{t} - \frac{N_U}{t_U} \right)$$

N und N_U sind die Impulszahlen für Präparat + Untergrund sowie Untergrund alleine, t und t_U die entsprechenden Messzeiten. Die Standardabweichung von I_A ergibt sich nach dem Fehlerfortpflanzungsgesetz aus den Standardabweichungen σ (von N) und σ_U (der Untergrundmessung).

$$\sigma_A^2 = \frac{\sigma^2}{t^2} + \frac{\sigma_U^2}{t_U^2} \qquad \sigma_A = \frac{1}{t} \sqrt{\sigma^2 + \left(\frac{t}{t_U} \right)^2 \cdot \sigma_U^2} = \frac{1}{t} \sqrt{N + \left(\frac{t}{t_U} \right)^2 \cdot N_U}$$

Die relative Standardabweichung σ_A/I_A kann verhältnismäßig große Werte annehmen, wenn die Impulsrate I nur wenig höher als der Untergrund ist. Bei der praktischen Auswertung von γ -Spektren misst man in n Kanälen die Gesamtimpulszahl N von Peak + Untergrund und in n_U benachbarten Kanälen die Impulszahl des Untergrundes N_U . Die Impulsrate des Peaks (ohne Untergrund) beträgt:

$$I_A = \frac{1}{t} \left(N - N_U \frac{n}{n_U} \right)$$

und die Standardabweichung:

$$\sigma_A = \frac{1}{t} \sqrt{N + \left(\frac{n}{n_U} \right)^2 \cdot N_U}$$

Ein typisches Beispiel einer gammaspektroskopischen Auswertung mit Kurvenanpassung („Gaußfit“) und Angabe des Residuums gibt Abbildung 3.20

3 Physikalische Grundlagen

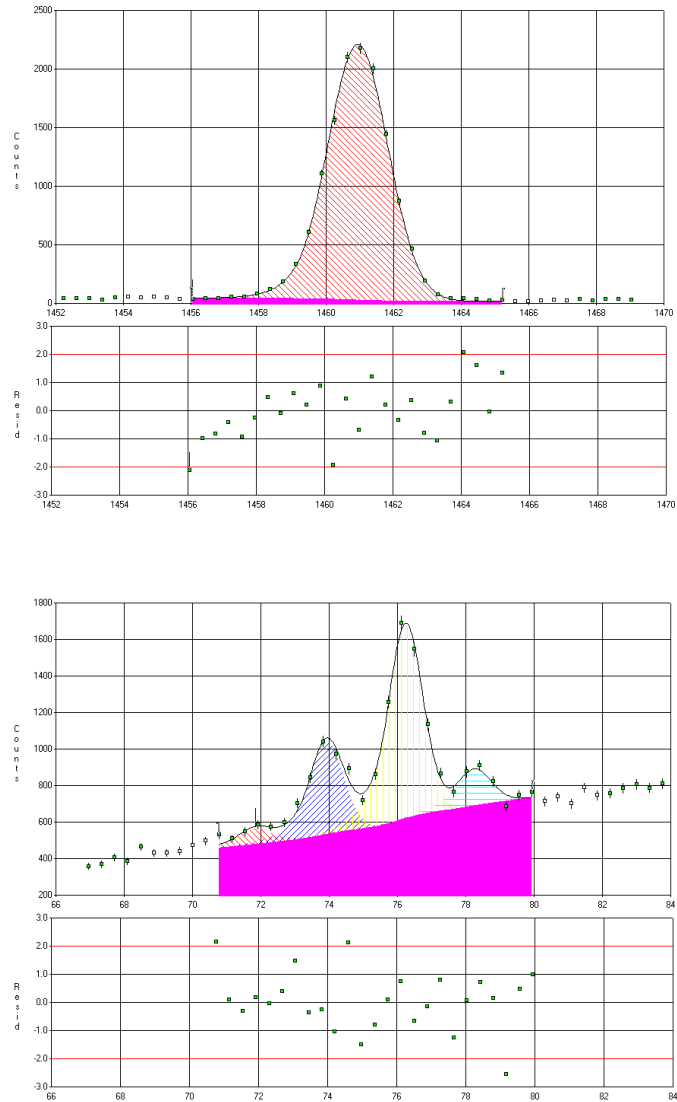


Abbildung 3.20: Beispiel einer gammaspektroskopischen Messung mit einem HPGe-Detektor (Spektrenausschnitte)

3.5.2 Nachweisgrenzen:

Unter der Voraussetzung, dass keine systematischen Fehler vorliegen und eine beliebige Wiederholung der Messung ein Gauß-verteilttes Ergebnis liefert, kann bei Messprozessen, deren Ergebnis eine Entscheidung über das Vorhandensein eines Signals notwendig macht, zwischen drei Arten von Grenzen unterschieden werden (nach [5]):

Das Entscheidungslimit LC, ab dem ein Wert als von der gesuchten Substanz herrührend betrachtet werden kann (critical level).

Das Nachweislimit LD, ab dem das Vorhandensein der Substanz als nachgewiesen betrachtet wird (detection limit).

Das Bestimmungslimit LQ, ab dem ein Wert präzise genug ist, um eine quantitativ zufriedenstellende Abschätzung der Menge der Substanz zu erlauben (quantitative detection limit).

Die qualitative Nachweisgrenze LD wird für gammaspektrometrische Untersuchungen üblicherweise mit 3σ angesetzt, ein genauer Wert kann aber zweckmäßigerweise nur durch die Messung einer Serie von Kalibrationspräparaten für die jeweiligen Messbedingungen empirisch ermittelt werden.

