

Ausgewählte Geräte, Versuche und Methoden zur Demonstration radiochemischer Experimente in der reformierten Oberstufe (I)

Von Robert Schwankner in Traunstein

1. Einleitung

In der nachstehenden Arbeit soll versucht werden, die Grundlagen zur Behandlung der Radiochemie in der reformierten Oberstufe (Kollegstufe) in einfacher Form an Hand von ausgewählten Experimenten darzustellen [1 bis 8] ¹⁾. Zu diesem Zweck wurden etwa 100 in der in- und ausländischen Literatur beschriebene Versuche ausprobiert, größtenteils durchgeführt und diejenigen, die mit einem Minimum an Vorbereitungszeit, Strahlenbelastung und Kosten mit einfachsten Schulmitteln durchgeführt werden können, ausgewählt sowie eigene Experimente. Die Reproduzierbarkeit war dabei ein ebenso entscheidendes Kriterium, wie die Auswahl solcher Versuche, die die Grundlagen der Radiochemie vermitteln, sowie Modelle, die in der Praxis der Forschung tatsächlich angewendete Methoden darstellen.

Der erste Teil beschäftigt sich ausschließlich mit den Meßgeräten, Methoden und dem Strahlenschutz, deren Beherrschung *unbedingte Voraussetzung* für die Durchführung radiochemischer, praktischer Arbeit ist. Es wurde weitgehend auf tiefergehende Theorien bzw. auf ausführliche mathematische Herleitungen verzichtet, also ausschließlich das für den Praktiker nötige „Handwerkszeug“ (in Teil I) zusammengestellt. *Zahlreiche* Literaturangaben sowie Anführungen von Bezugsquellen

durch die *ganze* Arbeit hindurch, sollen das *tiefer* Eindringen in die Problematik ermöglichen. Im zweiten Teil werden die meßtechnischen und anderen Grundlagen vorausgesetzt und nach kurzem geschichtlichen Überblick über die Radiochemie, die Experimente vorgestellt. Viele gefahrlose Untersuchungen können auch von Kollegiaten unter Aufsicht selbst durchgeführt werden, weshalb eine Zusammenfassung möglicher Themen für eine Facharbeit am Schluß steht. Möge diese Arbeit ein wenig zur Verbreitung der Theorien und dem grundlegenden Verständnis des Gebietes der Radiochemie beitragen, das alle Naturwissenschaften so entscheidend befruchtet hat.

2. Radiochemie in der Kollegstufe

2.1. Die Radiochemie im Curriculum

Die Radiochemie war jahrzehntelang Stiefkind des naturwissenschaftlichen Unterrichts an den Schulen; dies ist einerseits auf eine mangelnde Koordinierung der Physik-Chemielehrpläne, andererseits auf das mangelnde Angebot geeigneter Apparaturen durch die Lehrmittelfirmen zurückzuführen. So beschränkte sich die Chemie oft nur auf die unmathematische Behandlung dessen, was in der Physik, speziell an den naturwissenschaftlichen Gymnasien, sowieso Pflichtstoff war, oder man befaßte sich nur mit Kernreaktionen unter dem vagen Begriff Kernchemie [9, 10]. Oft auch wurde Reaktorchemie und die Anreicherung des Urans

¹⁾ Die Literaturangaben finden sich am Schluß von Teil II

theoretisch abgehandelt, jedoch Tracerversuche (to trace = aufspüren) nur am Rande erwähnt, ganz zu schweigen von einer experimentellen Darstellung. Auch blieb bei dem mit Biochemie gut gefüllten Lehrplan der Abiturklassen die Kernchemie ganz zurück.

Mit den curricularen Plänen für den Chemieunterricht an den Kollegstufen-Versuchsschulen wurde dies anders [11]. So heißt es in [11], „der Kollegiat soll die Bedeutung der Untersuchung radioaktiver Vorgänge für die Aufklärung des Atombaus kennenlernen“, wofür 20 Stunden im 4. Kurs halbjahr vorgesehen sind, neben zusätzlicher Zeit für die geschichtlichen Aspekte der Kernchemie. Hier kann man nun etwa 5 Stunden nach vorhergegangener Erarbeitung der Grundlagen von Radioaktivität und Kernreaktionen, für die Radiochemie abzuweichen und sich durch geeignete Experimente in die Chemie der Radionuklide und der Indikatoranalyse einarbeiten. Man kann damit direkt in den letzten Abschnitt des Kurshalbjahres übergehen, der sich mit Aufklärung der Reaktionsmechanismen und der Struktur chemischer Verbindungen befaßt, da ja gerade in diesen Bereichen der radioaktiven Markierung große Bedeutung zukommt. Der Kollegiat erhält durch ausführliche Behandlung der Meßmethoden, sowie deren Ausführung Grundlagen, die er in jedem Studienfach aus dem Bereich der Naturwissenschaften später nutzbringend verwerten kann, was ja gerade ein erklärtes Ziel der Oberstufenreform ist.

2.2. Strahlenschutz

Grundsätzlich ist vorweg zu bemerken, daß die Strahlenbelastung bei radiochemischen Demonstrationsversuchen im Schulbereich verschwindend gering ist, d. h., daß sich niemand von einer derzeit in der Öffentlichkeit vorherrschenden „nuklearen Umwelthysterie“ abschrecken lassen soll, derartige Experimente auszuführen; wobei die strikte Beachtung der Vorschriften der 1. u. 2. Strahlenschutzverordnung [12], die in *jeder* Lehrerbibliothek stehen sollte, oberstes Gebot ist.

Die zweite Strahlenschutzverordnung gewährt im Rahmen der gesetzlichen Bestimmungen dem Lehrer freie Hand (§ 14), der die erforderliche Fachkunde bei einer von der Aufsichtsbehörde beauftragten Ausbildungsstelle erworben hat. So führt zum Beispiel die Gesellschaft für Strahlenschutz

und Umweltforschung in Neuherberg bei München seit Jahren eine derartige Ausbildung durch, die bis jetzt *leider* hauptsächlich nur von Physiklehrern besucht wurde [13]. Hat ein Lehrer diese Kurse besucht und ist dies der Aufsichtsbehörde angezeigt worden, so gilt er gemäß der 2. SSVO als „ermächtigter Lehrer“, hat damit über den Einkauf und Verbrauch von Isotopen Buch zu führen und z. B. deren Dichtigkeit zu überprüfen. Auch dürfen Schüler unter seiner Leitung mit bauartgeprüften Vorrichtungen und offenen Isotopen unterhalb der Freigrenze experimentieren. Er hat dafür zu sorgen, daß die Summe der Bruchteile der Freigrenzen aller offenen Isotope den Wert 1 nicht überschreitet. (In dieser Arbeit wurde nur Uran, Freigrenze 100 Mikro-Curie/300 g und Thorium, Freigrenze: 1 Mikro-Curie/10 g verwendet [13]²⁾). Ebenfalls ist darauf zu achten, daß jede Möglichkeit einer Inkorporation auf alle Fälle ausgeschlossen wird. Auch empfiehlt sich die Anschaffung eines Füllhalterdosimeters, um so die Strahlenbelastung zu kontrollieren (Abb. 5)³⁾. Von der Durchführung von Versuchen gemeinsam mit Schülern, die das 18. Lebensjahr noch nicht erreicht haben, wird abgeraten. Ein weiterer Grund dafür, daß die Radiochemie bisher nur sehr vereinzelt Eingang in den Schulunterricht gefunden hat, ist, daß das Angebot an preiswerten Strahlungsmeßgeräten bisher äußerst beschränkt und nur auf die Anforderungen der Physik zugeschnitten war. Auch waren die bis jetzt vorliegenden Praktikumsbücher der Radiochemie ausschließlich für den Hochschulgebrauch bestimmt, weshalb sie größtenteils von Lehrkräften unbeachtet blieben, außerdem ein Großteil der in ihnen beschriebenen Versuche mit Schulmitteln undurchführbar ist [4]. Einen neuen begrüßenswerten Weg beschränkt erstmalig *Bernard Heinrich* mit seinen „Radiochemischen Demonstrationsversuchen“ [1], der sich streng an die für Schulen geltenden gesetzlichen Bestimmungen hält, andererseits jedoch eine Fülle eindrucksvoller Experimente anbietet. Auch finden sich vereinzelt Arbeiten [14], die Experimente mit Schulmitteln beschreiben. Es sei ferner auf das weite Feld der angelsächsischen Literatur [5, 6] hingewiesen.

²⁾ MERCK 9426 Uranyl Nitrat p.A. 25 g, 8162 Thoriumnitrat p.A. 25 g

³⁾ Z. B. Röntgendosimeter SEQ 61, KURT RIEDEL Strahlentechnik, 8771 Tennfeld, Friedenstraße 19; ca. 200,— DM

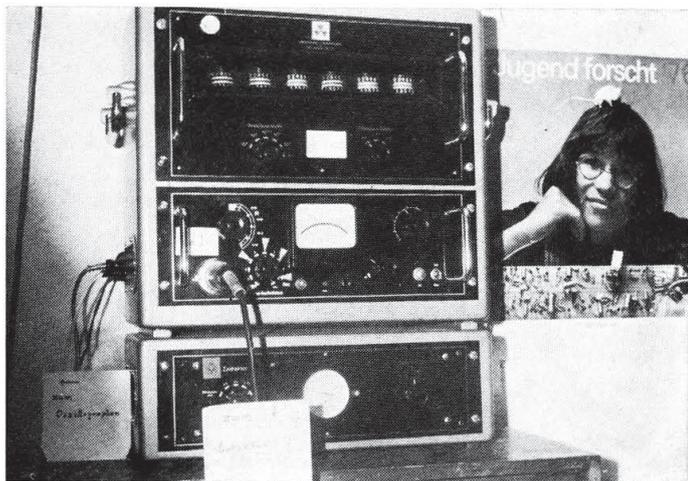


Abb. 1. Das Strahlungsmeßgerät FH 49 (Photo: Verfasser)

3. Strahlungsmeßgeräte

3.1. Zählgeräte

3.1.1. FH 49 bzw. FH 90 (Abb. 1) der Firma FRIESEKE HOEPFNER

In den letzten Jahren stellen sich immer mehr Forschungsinstitute von den herkömmlichen Geiger-Müller-Zählgeräten auf moderne Halbleiter- bzw. Szintillationszähler und Gammaspktrometer um, wobei es für eine benachbarte Schule durchaus im Bereich der Möglichkeiten liegt, für eine geringe Ablösezahlung oder gar kostenlos etwa ein noch voll funktionsfähiges FH 49- bzw. FH 90-Gerät zu bekommen, das jeglichen Anforderungen des Schulunterrichts voll entspricht (Abb. 1). So kann die Meßzeit vorgegeben, ein Oszillograph bzw. Meßschreiber angeschlossen, die Hochspannung variiert, Szintillationsköpfe bzw. Methandurchflußzähler, die ebenfalls erhältlich sind, ebenso wie Flüssigkeitszählrohren angeschlossen werden. Auch kann man die Ansprechschwelle des Verstärkers verändern, womit die Energieverteilung eines Strahlers grob untersucht werden kann. Man sollte sich aus diesen Gründen nicht scheuen, bei Kernforschungszentren, Reaktorverwaltungen, Universitäten, Landesanstalten vorstellig zu werden, da man dort ja die Geräte ohnehin ausmustert!

3.1.2. BF-LB 2040 ⁴⁾

der BF-Vertriebsgesellschaft ³⁾

Dieses speziell für das naturwissenschaftliche Praktikum entwickelte Gerät genügt allen Anforderungen radiochemischer Meßtechnik. Es vermag Im-

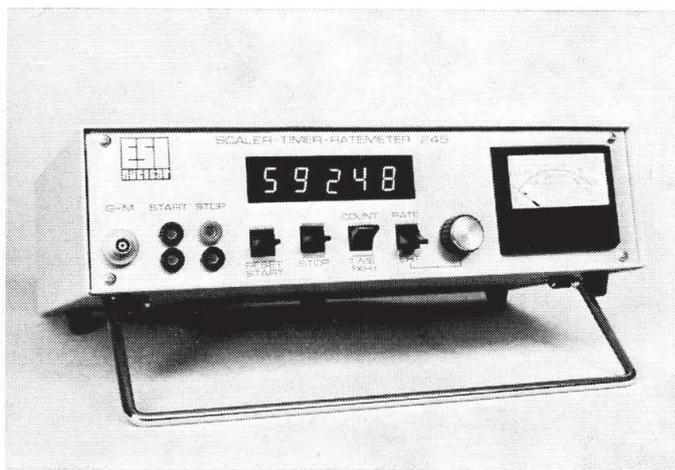


Abb. 2. Scaler-Timer-Ratemeter 245 (Photo: TECHNOWA)

pulsfrequenzen bis zu 10 MHz zu registrieren, verfügt über einen analogen Zählratenmesser und einen Lautsprecher. Auch hier ist ein sogenannter Diskriminator eingebaut, um die Mindestenergie eines Eingangsimpulses festzulegen. Als Zubehör sind neben normalen Endfensterzählrohren auch Neutronen-, Halbleiter, Szintillations- und Neutronendetektoren anschließbar. Das einzige „Nachteilige“ dürfte der Preis sein, der ohne Zubehör schon bei 3600,— DM liegt und damit gerade an der Grenze dessen liegt, was sich eine Schule normalerweise leisten kann. Gerade auf Grund seiner Einsatzfähigkeit und universellen Anwendbarkeit sei es jedoch besonders empfohlen. Vielleicht wäre ein gemeinsamer Einkauf durch die Biologie-, Chemie- und Physikfachlehrer im Rahmen der in der Kollegstufe unerlässlichen Zusammenarbeit der Fachschaften ratsam, da man sich ja hinsichtlich des Lehrstoffes so absprechen könnte, daß jede Fachschaft zu der Zeit des Schuljahres über das Gerät verfügen kann, in der es tatsächlich benötigt wird.

3.1.3. Zählgerät 245 (Abb. 2) ⁵⁾

Für einen Preis von etwa 1000,— DM erhält man von der Firma TECHNOWA ein gut durchdachtes, einfach zu bedienendes Gerät mit 5-stelliger Digitalanzeige sowie Meßinstrument für Zählrohrspannung und Analogwert. Die Siebensegmentanzeige ist weithin sichtbar, außerdem ist das Gerät mit einem Lautsprecher, der die Impulse hörbar macht, ausgestattet. Da das Gerät auch als Zeit-Intervall- und Digitalmeßgerät verwendet

⁴⁾ BF-Vertriebs-GmbH München 40, Karl-Theodor-Straße 29

⁵⁾ TECHNOWA GmbH, Neuss, Breite Straße 110

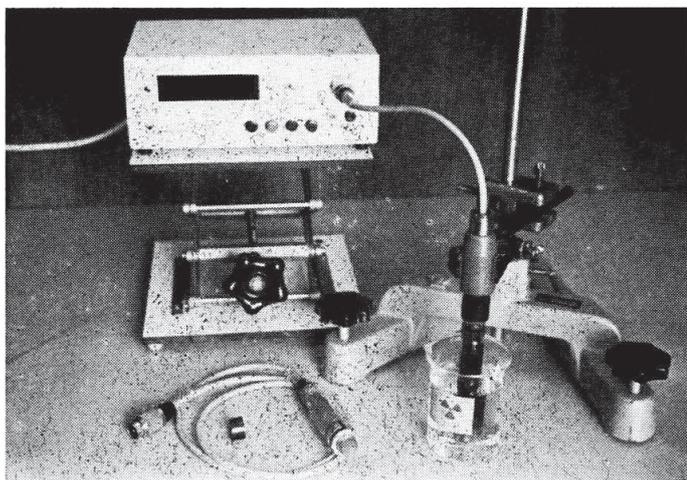


Abb. 3. Kleines LEYBOLD-Zählgerät (57545) mit Finger- und Endfensterzählrohr (Photo: Verfasser)

werden kann, wäre auch hier eine preisgünstige gemeinsame Anschaffung empfehlenswert. Interessenten seien auch auf das Zählgerät 237 der gleichen Firma hingewiesen.

3.1.4. Kleines Zählgerät (LEYBOLD-HERAEUS)⁶⁾ Katalog-Nr. 57 545 (Abb. 3)

Dieses erst im September 1976 auf dem Markt erschienene Gerät ist nicht nur wegen seines niedrigen Preises von etwa 650,— DM für Schülerversuche geeignet, sondern es lassen sich damit fast alle der beschriebenen grundlegenden radiochemischen Versuche ausführen. Das mit 4 Dekaden ausgerüstete Gerät verfügt über einen Lautsprecher. Eine begrüßenswerte Neuerung stellt sicher die frontseitige Digit-Stop-Taste dar, mit der der momentane Zählstand festgehalten werden kann, das Gerät jedoch intern weiterzählt, der Zählvorgang also nicht unterbrochen werden muß! Diese Eigenschaft ist insbesondere bei der Bestimmung kleiner Halbwertszeiten von Nukliden von großer Bedeutung, da man nicht mehr Zeit durch Rückstellen und neues Starten verliert. Damit können Halbwertszeiten im Minutenbereich sehr genau ermittelt und damit Isotope identifiziert werden, bei denen dies bisher experimentell mit Schulmitteln nicht möglich war.

Das Fehlen einer Meßzeitvorwahl macht sich beim Bestimmen von Aktivitäten zwar unangenehm bemerkbar, jedoch kann man sich mit befriedigender Genauigkeit mit einer Armbanduhr behelfen und bei langen Meßzeiten mit einer Stoppuhr. Auch ist es möglich, das Gerät extern über eine Uhr zu steuern. Damit die Anzeige für die meisten Expe-

⁶⁾ LEYBOLD-HERAEUS GmbH u. Co. KG, Köln

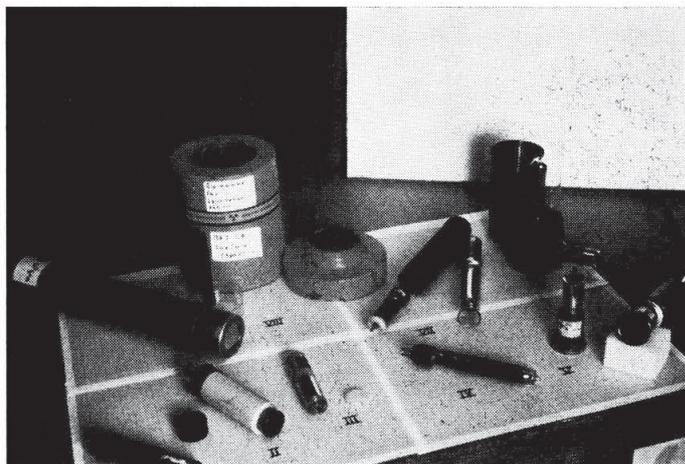


Abb. 4. Strahlungsdetektoren. II: VALVO 18505 in Selbstbaufassung; III: FRIESEKE HOEPFNER FHZ 80; IV: LEYBOLD-Fingerzählrohr; V: FHZ 12 Endfensterzählrohr in vertikaler und Frontansicht; VI: Becherglaszählrohr: FHZ 83; VII: kleine Flüssigkeitszählrohre von FRIESEKE HOEPFNER; VIII: Szintillationszähler FH 451 und selbstgebaute Bleikammer zur Herabsetzung der Nullrate (Photo: Verfasser)

perimente ausreicht, ist eine Untersetzung der Impulse um 1:10 und 1:100 möglich. Etwas teurer geraten sind die Detektoren, besonders das Fensterzählrohr. (Alle Preisangaben sind nur als Anhaltspunkt zu verstehen!)

3.2. Strahlungsdetektoren

3.2.1. Geiger-Müller-Zählrohre (Abb. 4)

Schon *Marie Curie* verwendete bei ihren ersten Untersuchungen über die Uranstrahlen (1898) zur Aktivitätsbestimmung eine Ionisationskammer, nützte somit die Emission ionisierender Teilchen eines Strahlers zu dessen quantitativer Beschreibung aus [15].

Eine entscheidende Fortentwicklung stellten *Rutherford* und *Geiger* schon 1908 vor [16], die bis heute auf breiter Basis allgemeine Anwendung findet. Es handelt sich um eine Verbesserung der Ionisationskammer, aber mit einer als Draht (Spitze) ausgebildeten zentralen Anode, die gegen das Gehäuse eine Spannung von mehreren Hundert bis ca. 3000 Volt, je nach Typ, aufweist.

Das Endfensterzählrohr z. B. ist ein einseitig, zum Strahleneintritt mit Glimmer belegter zylinderförmiger Körper, mit zentraler Anode, die gut gegen das Gehäuse isoliert ist. Es weist einen Restgasdruck von 100—200 Torr an Argon oder anderen Edelgasen und Halogenen (Cl_2 ; Br_2) als Löschanstanz auf. Alkohol wird heute fast nicht mehr als Löschanstanz verwendet, da er im Gegensatz zu den Halogenen verbraucht wird und so die

Lebensdauer eines Zählrohres stark begrenzt. Halogenzählrohre dagegen haben oft sehr lange Lebensdauer garantien vom Hersteller, so z. B. Endfensterzählrohr FHZ 80 mehr als 3×10^9 Impulse. Der Löschmechanismus kann hier leider nicht weiter dargelegt werden, es sei jedoch auf die vorzüglichen Bücher von *Keller* [17] und *Richter* [18] verwiesen. Tritt ein ionisierendes Teilchen in das empfindliche Zählrohrvolumen ein, so kann es ein Restgasmolekül ionisieren (Primärionisation). Die freiwerdenden Elektronen erfahren im elektrischen Feld eine so starke Beschleunigung, daß sie ihrerseits zur Ionisation befähigt werden. (Sekundärionisation u.s.f.) Dieses führt schließlich zur Koronarentladung entlang der Drahtelektrode, was als Spannungsabfall von der nachgeschalteten Zähl-einrichtung registriert wird. Bevor das Stadium der kontinuierlichen Gasentladung erreicht ist, reißt die Entladung durch einen in Serie geschalteten hochohmigen Schutzwiderstand ab.

Die Zählrohre sind in den verschiedensten Formen⁷⁾ auf dem Markt, je nach Verwendungszweck, jedoch alle weisen gegenüber Gammaquanten eine im Vergleich zu anderen Teilchen stark verminderte Ansprechempfindlichkeit (1%) auf, auch ist allen gemeinsam, daß sie sich gegenüber Temperaturschwankungen weitgehend indifferent verhalten. (Weitere Versuche: Teil I: 6.1. und Abb. 4!)

Es bleibt noch anzumerken, daß man die hohen Preise der Lehrmittelfirmen durch selbstgebastelte Fassungen umgehen kann, wenn man direkt beim Hersteller kauft.

3.2.2. Der Methandurchflußzähler

Der großflächige Methandurchflußzähler hat sich besonders bei der Betaaktivitätsbestimmung bewährt und stellt eine Fortentwicklung des Gei-

⁷⁾ Glimmerfensterzählrohre: BF Vertriebsges.: FHZ 12, FHZ 80
VALVO GmbH Hamburg, Postfach 993: Nr. 18505; 18503
Becherglaszählrohre:
FHZ 83 (100 ml)
VALVO 1081 (100 ml)
1802 (10 ml)
Eintauchzählrohre aus Glas: VALVO 1080
Durchflußzählrohre zur kontinuierlichen Überwachung der Aktivität durchströmender Flüssigkeiten: VALVO 18510
Diese Aufzählung erhebt keinerlei Anspruch auf Vollständigkeit. Abb. 4 zeigt einige der angeführten Zählrohre.

gerschen Zählrohres dar, nur wird das Zählgas bei Atmosphärendruck kontinuierlich erneuert.

3.2.3. Der Szintillationszähler (Abb. 4)

Schon der Pionier der Radioaktivität, *Rutherford*, benützte bei seinen bahnbrechenden Streuungsexperimenten von Alpha-Teilchen an dünnen Metallfolien Zinksulfidschirme zum Strahlungsnachweis. Eine originalgetreue Nachbildung steht in der Abteilung Kernphysik des Deutschen Museums [15]. Das mühevoll Auszählen der einzelnen Lichtimpulse unter dem Mikroskop in der Dunkelkammer, nimmt heute ein sogenannter Photosekundärelektronenvervielfacher ab, mit dem ein bis zu 10^9 -facher Verstärkungsfaktor erreicht werden kann. Deshalb darf man bei angelegter Hochspannung einen PSEV niemals dem vollen Tageslicht aussetzen, da er sonst sofort irreparabel geschädigt werden würde! Interessante Experimente mit Szintillationszählern sind in dem empfehlenswerten Band der Praxis-Schriftenreihe Physik von *Gunter Lind* enthalten [19]. Heute verwendet man als Szintillatoren meist thalliumdotiertes Natriumjodid, jedoch kommen auch organische Verbindungen (Transstilben) zur Anwendung. Es gibt auch sogenannte Bohrlochkristalle, in die man ein Reagenzglas mit Probe einführen kann, was einer 4π -Zählung nahekommt. Der Szintillationszähler bietet den Vorteil noch winzigste Aktivitäten aufspüren zu können. Damit werden Schulversuche zur Pflanzenphysiologie etc., die ja gemäß der 1. u. 2. Strahlenschutzverordnung mit kleinen Aktivitäten auskommen müssen, möglich.

3.2.4. Der Halbleiterzähler

Der Strahlungsdetektor, der dabei ist, den Szintillationszählkopf weitgehend zu verdrängen (weil man letztere wie auch die dazugehörigen Zählgeräte günstig von Instituten bekommen kann, wo sie ausrangiert werden — ... siehe 3.1.1.) ist der Kristallzähler, der aus der stürmischen Halbleiterentwicklung hervorging. Es handelt sich gewissermaßen um einen Kondensator, bei dem Ge bzw. Si die Rolle des Dielektrikums übernehmen. Legt man an den Kristall eine Spannung an, so fließt ein rein thermisch bedingter Dunkelstrom, welcher durch Kühlung mittels eines Kryostaten unterdrückt werden kann. Einfallende Strahlung generiert zusätzlich Elektronen und Defektelektronen (positive „Löcher“).

Die Elektronen wandern im elektrischen Feld in Richtung Anode, die positiven Löcher zur Kathode. Der dadurch entstehende Stromstoß kann von empfindlichen Peripheriegeräten energetisch ausgewertet werden. Genauere Funktionserklärungen sind nur mit dem Bändermodell der Festkörperphysik möglich, weshalb auf die einschlägige Literatur [20] und die vorzügliche Broschüre „Halbleiterzähler“ der Fa. VALVO verwiesen sei. Ein Halbleiterzähler eignet sich wie der Szintillationszähler besonders zur Aufzeichnung des Energiespektrums von Strahlern. Hervorzuheben ist außerdem die geringe Auflösungszeit, also die Zeit, bis ein neuer Impuls von ca. 10^{-8} Sekunden registriert werden kann. (Beim Geiger-Müller-Rohr etwa 10^{-4} Sekunden.) Leider kann man ihn im Unterricht noch nicht einsetzen, da die erforderlichen Verstärkeranlagen sehr hohe Kosten verursachen.

4. Bezugsquellen von Prüfstrahlern

Abb. 5 zeigt eine ganze Reihe von Strahlungsquellen, die man ohne große Kosten, meistens als Muster von Firmen erhalten kann. Sie zeigen zwar nur schwache Aktivität, haben sich aber als Prüfstrahler als sehr nützlich erwiesen. Hervorragend eignen sich Thoriumschweißelektroden, die zur Verminderung der Eigenemission beim Erwärmen 1—4% thoriert sind.⁸⁾

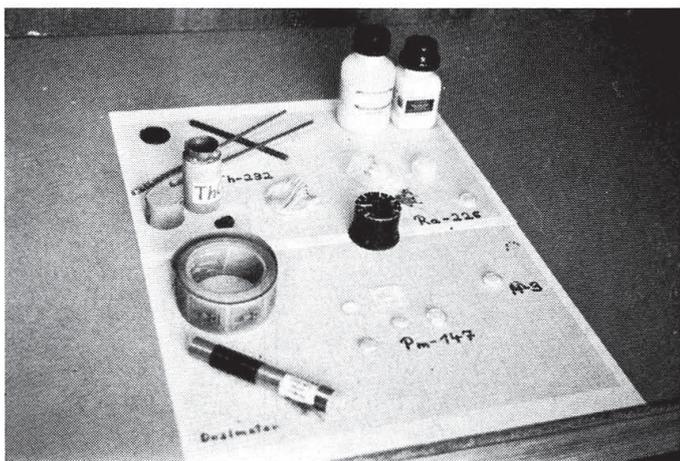


Abb. 5. Leicht zugängliche Prüfstrahler: H-3, Pm-147, Ra-226-Leuchtmuster, Th-232-Glühstrumpf, Schweißelektroden (thoriert), Thoriannit, Uhrzeiger, Instrumentenskalen, Uranyl- und Thoriumnitrat. Außerdem Füllhalterdosimeter und Markierungsetiketten (Photo: Verfasser)

⁸⁾ Von Fall zu Fall als kostenloses Muster bei: Gesellschaft für Wolframindustrie, 8220 Traunstein

Promethium-147 ist als Muster bei Leuchtfarbenfirmen⁹⁾ zu erhalten. Das gleiche gilt für Tritium und Radium-226. Bei einem Uhrmacher sind oft noch alte radioaktive (Ra-226) Uhrzeiger erhältlich, mit denen sich schöne Versuche anstellen lassen, beispielsweise bei der Autoradiographie oder als Strahler in der kontinuierlichen Nebelkammer [21]. Glühstrümpfe von Campinggaslampen sind in jedem Kaufhaus für wenig Geld erhältlich, sie enthalten 1—2% Thorium. Skalen von alten Meßinstrumenten und Uhren weisen ebenfalls Aktivität auf und manchen Zündern von Leuchtstofflampen ist zur Herabsetzung der Zündspannung radioaktives Krypton beigemischt.

Jede Mineralienbörse ist eine wahre Fundgrube genehmigungsfreier Strahler, so z. B. Thorannit oder Pechblende, die man im Labor unter den nötigen Vorsichtsmaßnahmen aufarbeiten kann [1]. Viele Uran- und Thoriumsalze sind als analytische Reagenzien zu beziehen, nur muß man darauf achten, daß die Freigrenze niemals überschritten wird.

5. Technik der Probenmessung

5.1. Statistik und Fehlerbetrachtung

Die Radioaktivität ist ein stochastischer Prozeß, d. h. man kann über ein einzelnes Ergebnis gar keine, sondern nur über die Gesamtheit aller Emissionsereignisse eine statistische Aussage machen. Die Stochastik läßt sich wunderschön zeigen, wenn man den Ausgang eines Strahlenmeßgeräts mit dem Vertikaleingang eines Oszillographen verbindet (Abb. 6). Man erkennt bei einem derartigen Oszillogramm, oder auch nur bei der akustischen Impulsüberwachung, daß ihre Abfolge vollkommen unregelmäßig erfolgt. Es läßt sich feststellen, daß unter gleichen Bedingungen durchgeführte Aktivitätsmessungen um einen Mittelwert schwanken:

$$\bar{N} = \frac{\sum_{v=1}^n N_v}{n} = \frac{N_1 + N_2 + \dots + N_n}{n} \quad (1)$$

Die genaue Häufigkeitsverteilung dieses Phänomens führt zur *Gaußschen* Verteilungskurve. Das bedeutet, unter Vernachlässigung mathematischer Herleitung, daß 68,3% der Messungen in den

⁹⁾ W. Maier, Radium-Chemische Industrie, Postfach 126, Schwenningen; Radium-Chemie AG, CH-9053 Teufen

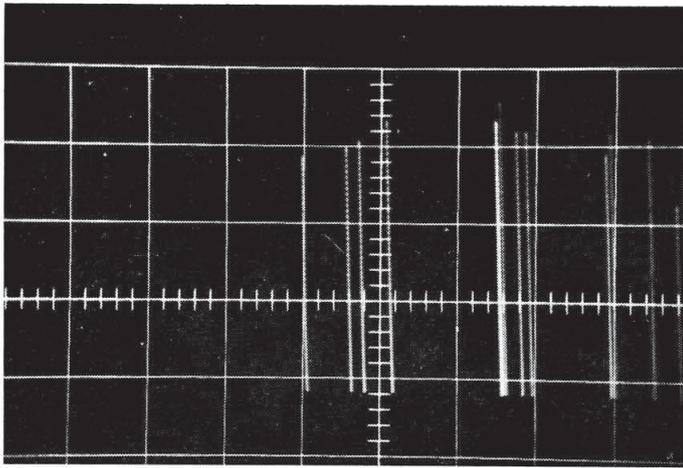


Abb. 6. Oszillogramm zur Demonstration der statistischen Impulsverteilung (Photo: Verfasser)

Bereich einer sogenannten Standardabweichung vom Mittelwert fallen, bei 2 Standardabweichungen sind es schon 99,5% und im Bereich von drei 99,7%.

$$\sigma_{St} = \pm \sqrt{N} \quad (2)$$

Für große Meßraten gilt somit:

$$R_M = \frac{N}{t} \pm \sqrt{\frac{N}{t^2}} \quad (3)$$

Bei kleinen Impulsraten müssen auch die Schwankungen des Nulleffekts für die Beurteilung des Meßergebnisses herangezogen werden.

Grundsätzlich gilt: Nutzrate = Meßrate – Nullrate

$$R_N = (R_M - R_0) \pm \sigma_{St} \quad (4)$$

Somit folgt aus (2):

$$R_N = \left(\frac{N}{t_1} - \frac{N_0}{t_2} \right) \pm \sqrt{\frac{N}{t_1^2} + \frac{N_0}{t_2^2}} \quad (5)$$

(Es ist nicht notwendig, zur Bestimmung von R_M und R_0 die gleichen Meßzeiten zu verwenden.)

Die Standardabweichung sollte bei allen genauen Messungen und vor allem bei dem Vergleich von Meßergebnissen herangezogen werden.

Will man die Meßzeit bei vorgegebenem Fehler ermitteln, so kann man sich bei einer ungefähr bekannten Impulsrate mit folgender Beziehung helfen [2]:

$$t_M = \frac{100^2}{N \cdot F^2} \quad (6)$$

Der Fehler F ist in Prozent in obige Formel einzusetzen. Für weitere statistische Untersuchungen sei neben den Praktikumsbüchern der Radiochemie vor allem auf das Buch von G. Gottschalk [22]

verwiesen, das übrigens in keiner naturwissenschaftlichen Fachbücherei fehlen sollte.

5.2. Die Messung eines Präparats

Zum 1. 1. 78 wird eine neue Aktivitätseinheit per Gesetz eingeführt. Das Curie, das seit dem radiologischen Kongreß 1910 in Brüssel auf Radium-Radon bezogen war und in neuerer Zeit allgemein die Aktivitätseinheit für $3,7 \times 10^{10}$ Teilchen pro Sekunde bedeutete, ist damit abgeschafft [23, 24]. Die neue SI-Einheit für Aktivität ist die reziproke Sekunde und erhält den Namen Becquerel (Bq) nach dem Entdecker der Radioaktivität [25]. Zur relativen Aktivitätsbestimmung sind folgende Punkte zu beachten:

- a) Bei Versuchsreihen jede Messung unter gleichen Bedingungen durchführen!
- b) Bei kleinen Zählraten Nulleffekt beachten!
- c) Bei hohen Impulsraten macht sich die Totzeit eines Detektors bemerkbar und Korrekturrechnungen müssen ausgeführt werden. (s. Versuch 2)
- d) Bei Fensterzählrohren, deren Glimmerfenster nicht mit Graphit vom Hersteller lichtdicht verschlossen wurden, ist zu beachten, daß UV-Lichtquanten (Neonröhren) erhebliche Störfaktoren sein können.
- e) Immer auf der gleichen Unterlage messen, da Betastrahlung an verschiedenen Materialien unterschiedlich zurückgestreut werden kann.
- f) Mißt man niedrige Impulsraten bei großflächigen Strahlern, so kann man diese durch Unterlegen von Materialien hoher Ordnungszahl, durch den Rückstreueffekt bis um 80% anheben. Am besten eignet sich eine Nickelplatte¹⁰⁾. (Von dieser Methode macht man vor allem bei der Untersuchung von Radiochromatogrammen Gebrauch.)
- g) Immer gleichen Meßabstand einhalten. Schon wenige Zehntel eines Millimeters können die Impulsrate entscheidend verändern!
- h) Ein Geigerzähler bringt nach Ruhepause nie mehr genau die gleichen Ergebnisse wie zuvor, deshalb sind solche Ergebnisse nur relativ zu vergleichen. Dies gilt vor allem für Röhrengeräte.
- i) Niederschläge werden in Probeschälchen getrocknet. (Am besten mit Alkohol, Aceton und einer Infrarotlampe, damit kein störender Flüssigkeitsrest zurückbleibt.)

¹⁰⁾ Muster auf Anfrage von: Vereinigte Deutsche Nickelwerk AG, 5840 Schwerte

k) Die Aktivität ist nicht proportional der Schichtdicke, da sich die sogenannte Selbstabsorption bemerkbar macht. Deshalb sind die Schichten so dünn wie möglich zu wählen. Die andere Alternative stellt eine sehr dicke Schicht dar, diese weist dann Aktivitätskonstanz innerhalb eines größeren Intervalls auf.

l) Niemals die Spannung eines Detektors zu hoch einstellen! Kommt es dennoch zu einer Gasentladung, so sind die Zählrohre mindestens eine Woche zur vollständigen Regeneration nicht zu benutzen um wieder reproduzierbare Ergebnisse zu erhalten.

m) Niemals die kritische Spannung eines Szintillationszählers überschreiten, da hierbei sehr rasch irreparable Schäden auftreten können.

n) Der ideale Schulmeßplatz ist in Abb. 7 wiedergegeben. Das Präparat ruht in Probeschälchen und gegebenenfalls wird Nickel zur Ausnützung des Rückstreuereffekts unterlegt. Eine verstellbare Hebebühne, deren genaue Höhe über ein fixiertes Lineal angepeilt werden kann, vervollständigt den Meßplatz, ebenso ein schweres Stativ, das den zugentlasteten Detektorkopf trägt.

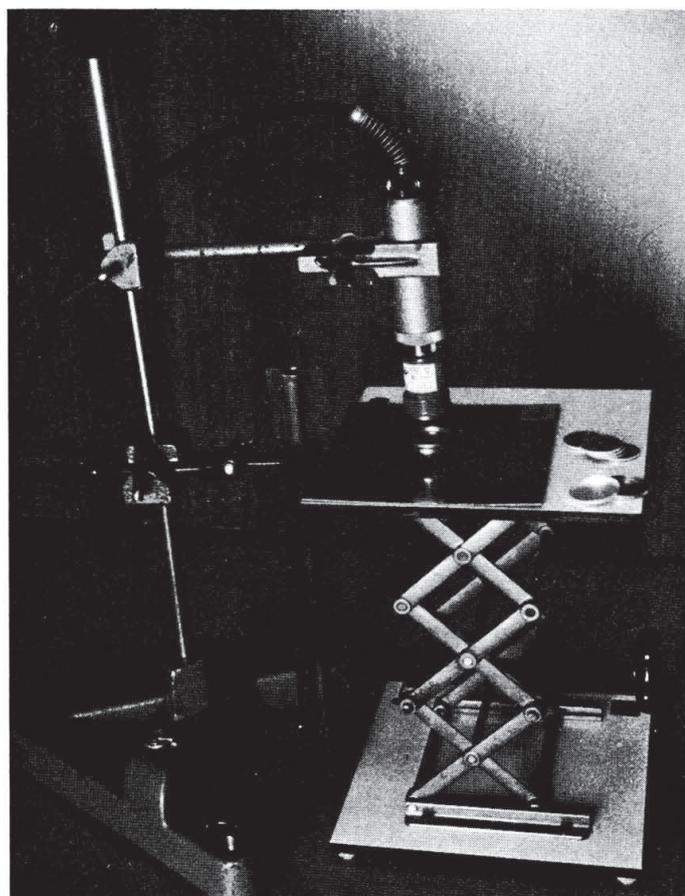


Abb. 7. Idealer Schulstrahlenmeßplatz: Präparat in Probeschälchen auf Nickelrückstreuplatte und verstellbarer Hebebühne; fixiertes Lineal zur Höhenpeilung (Photo: Verfasser)

6. Versuche zur Einübung der Meßtechnik

6.1. Die Bestimmung des Plateaus von Geiger-Müller-Zählrohren

Durch folgende Versuche sollen die nötigen Fertigkeiten der Strahlenmeßpraxis erarbeitet sowie die nötige Theorie dargeboten werden, die zur Durchführung der in Teil II beschriebenen radiochemischen Experimente unbedingt vorausgesetzt wird. Die Experimente sind z. B. zum Einarbeiten von Kollegiaten gedacht.

Zwischen der Impulsrate und der Zählrohrspannung herrscht beim Geigerschen Rohr ein charakteristischer Zusammenhang. Bei einer festgelegten Einsatzspannung beginnt die Registrierung. Die Zählrate schnellst empor, um dann je nach Typ über einige Hundert Volt hinweg unmerklich anzusteigen. Wir befinden uns im sogenannten Plateaubereich. Danach steigt die Zählrate bis zur Gasentladung (**Vorsicht!**) rasch wieder an!

Die Plateaulänge und -steilheit charakterisieren die Güte und das Alter eines Zählrohres. Abb. 8 und 9 zeigen die Charakteristik eines Zählrohres. Im ersten Fall mit geringer Plateausteilheit, im zweiten dagegen mit einem kaum ausgeprägten Plateau. So handelt es sich in der Tat bei Abb. 8 um die Charakteristik eines neuen, bei Abb. 9 um die eines zehn Jahre alten, stark gealterten Rohres.

Auch steigt die Einsatzspannung eines Zählrohres im Laufe der Zeit an. Die Arbeitsspannung wählt man meist in der Mitte des Plateaus, da sich hier

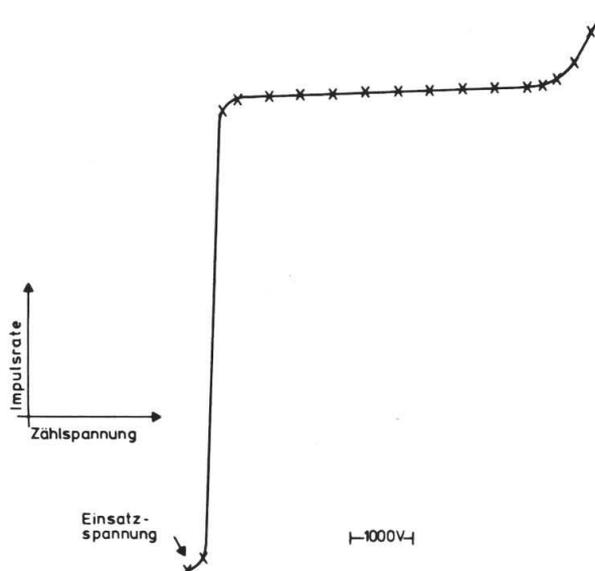


Abb. 8. Zählrohrcharakteristik eines neuen VALVO 18505-Endfensterzählrohres: scharfer Einsatz, geringe Plateausteilheit, ausgeprägtes Plateau

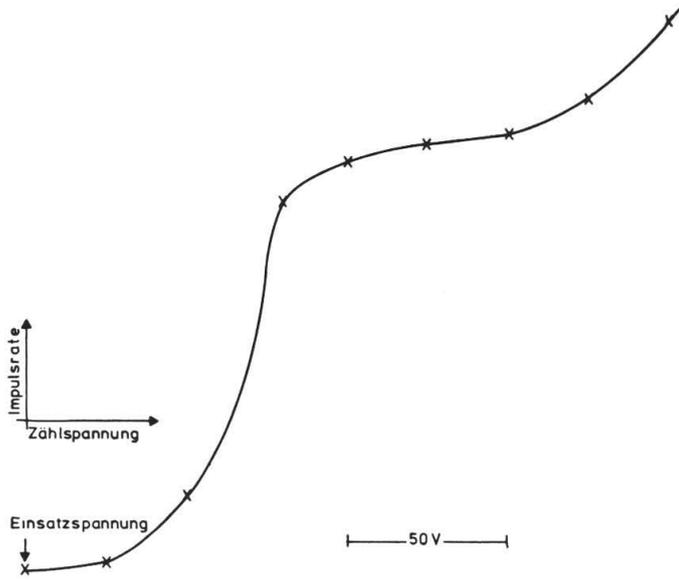


Abb. 9. Zählrohrcharakteristik eines stark gealterten FHZ-12-Endfensterzählrohres: unscharfer Einsatz, kurzes Plateau mit großer Steilheit

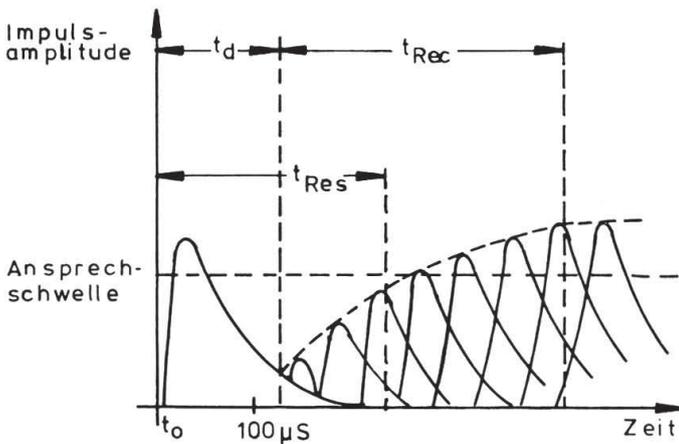


Abb. 10. Wichtige Zeiten am Geiger-Müllerrohr: t_d = Totzeit; t_{Res} = Auflösungszeit; t_{Rec} = Erholungszeit

geringe Spannungsschwankungen kaum auswirken können.

Versuch: Man erhöht schrittweise die Detektorspannung bis die ersten Impulse registriert werden. Als Strahlungsquelle kommt einer der in 4. beschriebenen Prüfstrahler in Betracht. Nachdem die Einsatzspannung bestimmt ist, wird im Abstand von zunächst 20, später dann 50 Volt die Meßrate bestimmt. Pro Einzelmessung sind dabei im Plateau etwa größenordnungsmäßig 10^4 Impulse aus Gründen der Genauigkeit erforderlich.

6.2. Bestimmung der Totzeit eines Geiger-Müller-Zählrohres

Nach einem Impuls ist der Detektor für eine gewisse Zeit für weitere Teilchen unempfindlich, man spricht von der sogenannten Totzeit. Die Verhältnisse werden sehr gut durch Abb. 10 veranschau-

licht: Nur über der Ansprechschwelle des Verstärkers liegende Impulse werden registriert. In der Totzeit (t_d) kann kein weiterer Impuls registriert werden, da die Spannung zusammenbricht, um sich erst nach Ausbreitung der entstehenden Raumladungswolke langsam erneut aufzubauen.

t_{Rec} (to recover!) ist die Erholungszeit, die vergeht, bis sich eine neue Entladung einstellt.

t_{Res} (to resolve) ist diejenige Zeit, die vergeht, bis der Verstärker wieder Impulse wahrnimmt; diese müssen über der Ansprechschwelle liegen (Abb. 10) [4].

Für die Meßpraxis hoher Impulsraten ist es sehr wichtig, den Abstand zwischen resolving- und dead time (Totzeit) möglichst zu verkleinern, was mit elektronischen Verstärkern gut gelingt.

Es gilt: Bei jedem gezählten Impuls geht die Zählzeit von t_d verloren. Bei beobachteter Impulshäufigkeit N/sec wird $N \cdot t_d$ Sekunden nicht registriert.

Die tatsächliche Zählzeit beträgt somit: $1 - N \cdot t_d$ Sekunden.

Damit gilt:

$$\frac{N_{\text{tats.}}}{n_{\text{gemess.}}} + \frac{1}{1 - n t_d} \Rightarrow N_{\text{tats.}} = \frac{N_{\text{gemessen}}}{1 - n t_d} \quad (7)$$

Kennt man also die Totzeit, so kann man die tatsächliche Impulszahl angenähert errechnen.

Versuch: Legt man zwei starke Quellen (Prüfstrahler, s. 4.) unter das Zählrohr, so erhält man eine Impulszahl, die kleiner ist als diejenige, welche man erhält, wenn man die Ergebnisse der Einzelmessungen der Strahler addiert.

Durch die hohe Impulsrate sind Verluste durch die Totzeit eingetreten, die etwa im Bereich von $2 - 5 \cdot 10^{-4}$ s beim Geigerrohr liegen und spannungsabhängig sind.

Man mißt Quelle I und erhält N_I , legt Quelle II dazu und erhält $N_{I/II}$ und nimmt schließlich Quelle I fort, damit wird N_{II} erhalten.

Nun muß für die *tatsächlichen* Zählraten gemäß (7) gelten:

$$N_I + N_{II} = N_{I/II} \quad (8)$$

Bringt man diese Brüche auf gleichen Nenner, so erhält man durch Grenzwertbildung in erster Näherung:

$$\frac{N_{I/II}}{1 - n_{I/II} t_d} = \frac{N_I}{1 - n_I t_d} + \frac{N_{II}}{1 - n_{II} t_d} \Rightarrow t_d = \frac{N_I + N_{II} - N_{I/II}}{2 N_I N_{II}} \quad (9)$$

Damit ist die Totzeit ermittelt. Ihr reziproker Wert gibt an, wieviel Impulse man mit dem Rohr maximal pro Zeiteinheit zählen darf, ohne Totzeitverluste durch Gleichung (7) korrigieren zu müssen [32].

6.3. Volumbestimmung durch Isotopenverdünnungsanalyse

Oft ist es von Interesse, unbekannte Flüssigkeitsvolumen zu bestimmen, die selbst nicht direkt zugänglich sind. So z. B. die Ausdehnung unterirdischer Gewässer, wobei man bei der Verwendung von Isotopen nicht mehr auf die unsichere Farbstoffmethode angewiesen ist (Fehler: Adsorption des Farbstoffs oder Zerstörung durch Mikroorganismen).

Besonders in der Medizin hat die Totalkörperwasser- und Blutvolumenbestimmung große Bedeutung, z. B. bei genauer Dosierung besonderer Medikamente.

Versuch: Gibt man dem unbekanntem Volumen V_X ein definiertes Meßvolumen V_M zu, dessen Aktivität bekannt ist (R_{NI}), wartet die Durchmischung ab bzw. führt sie herbei, entnimmt V_M und mißt erneut (R_{NII}), so gilt:

$$\frac{V_M}{V_X + V_M} = \frac{R_{NII}}{R_{NI}} \quad (10)$$

Daraus folgt:

$$V_X = V_M \cdot \left(\frac{R_{NI}}{R_{NII}} - 1 \right) \quad (11)$$

Wenn V_X wesentlich größer als V_M , so gilt:

$$V_X = V_M \cdot \left(\frac{R_{NI}}{R_{NII}} \right) \quad (12)$$

Es ist hierbei unbedingt notwendig, die Nullrate gemäß (4) zu subtrahieren! Man kann das Experiment z. B. mit 50 ml einer 0,5%igen Thorium- bzw. Uranyl-nitratlösung durchführen und erhält bei einem „unbekanntem Volumen“ gut reproduzierbare Ergebnisse. Es ist von Vorteil, mit destilliertem Wasser zu arbeiten, da sich dann kein schwerlösliches $\text{Th}(\text{OH})_4$ bilden kann. Auch kann man gemäß 9.2.1. (Teil II!) Blei-212 mit seinen 10,6 Stunden Halbwertszeit verwenden, was der Praxis, die solche Messungen ausschließlich mit kurzlebigen Isotopen durchführt, näherkommt. Das Blei wird mit 2 M Salpetersäure von der Platinelektrode abgelöst und mit 2 ml einer Bleilösung (10 mg Pb^{+2} pro ml) geträgert. Um Störungen durch Bleihydroxid und Bleisulfat zu

verhindern, kann hier nur mit destilliertem Wasser und sauberen Gefäßen gearbeitet werden!

6.4. Bestimmung der Füllstandshöhe

Oft ist es notwendig, die Füllstandshöhe von Schmelzen oder aggressiven Lösungen zu bestimmen. Dabei kann u. a. wie folgt vorgegangen werden: Unter dem Gefäß wird ein Strahler angebracht und die Nutzrate bestimmt. Aus einem graduierten Schütteltrichter läßt man vor jeder Messung 25, später 50 ml Wasser ein. Somit ergibt sich aus Volumen- (bei gleichem Querschnitt auch Maß für die Höhe!) und Nutzratendiagramm eine Funktion des Typs:

$$I(x) = I_0 e^{-ux} \quad (13)$$

I = Intensität, $e = 2,718 \dots$, x = momentane Höhe, u = Schwächungsfaktor.

Man kann nun die Schwächungsfaktoren verschiedener Flüssigkeiten ermitteln.

6.5. Bestimmung einer kurzen Halbwertszeit

Die Bestimmung kurzer Halbwertszeiten ist im Schulunterricht zur Isotopenidentifizierung und auch bei der Untersuchung des mit Neutronenquelle aktivierten Silbers (oder anderen Metalls) wie auch zur Demonstration des Zerfallsgesetzes üblich. An vielen Schulen wird dies mit einem in einer Polyäthylenflasche eingeschlossenen Thoriumpräparat vorgenommen, bei dem man die Emanation (= Thoron = Rn-220, Halbwertszeit 54,5 sec., s. Abb. 13 Teil II) in eine Ionisationskammer mit nachgeschaltetem Meßverstärker einblasen kann. Dieses Experiment läßt sich mit einem Geiger-Müller-Zählrohr einfacher gestalten, indem man dieses mittels durchbohrtem Gummistopfen in einen Erlenmeyerkolben mit seitlichem Ansaugstutzen einbringt und Thoron einbläst. Ebenso kann man mit einem Tauchzählrohr verfahren, bzw. ein abgedecktes Becherglaszählrohr verwenden. Man startet das Zählgerät und liest auf Kommando eines Assistenten wenigstens auf die Zehnerstelle genau die fortlaufende Anzeige ab, somit braucht der Meßvorgang nicht unterbrochen zu werden¹¹⁾. Nach 10 Minuten subtrahiert man die erhaltenen Werte voneinander und zieht auch noch den mittleren verbliebenen Untergrund ab.

¹¹⁾ Verfügt man dagegen über das kleine Zählgerät von LEYBOLD (s. 3.1.4.), das den Meßwert alle 10 sec. anzeigen kann, jedoch intern weiterzählt, so ist eine Steigerung der Genauigkeit möglich

Durch Zeichnen des Aktivitäts-Zeitdiagrammes bestimmt man die Halbwertszeit zu etwa 55 sec. Auch empfiehlt es sich, halblogarithmisches Papier zu verwenden, indem dann die e-Funktion als Gerade erscheint, was eine graphische und rechnerische lineare Regression mit dem Taschenrechner SR 51 A ¹²⁾, der ein Programm zur linearen Optimierung von Geraden aufweist, erleichtert.

Es wurde versucht, eine Auswahl der notwendigen Geräte und Meßmethoden darzustellen, deren Kenntnis notwendige Voraussetzung für die Durchführung der im II. Teil folgenden radiochemischen Versuche ist.

¹²⁾ TEXAS INSTRUMENTS