

Das Gamma-Spektrum des Karlsruher Referenz-Cäsium-137

Bernd Laquai 6.5.2021, Update 10.5.2021

Wie bereits in dem Dokument zum Karlsruher Referenzcäsium beschrieben (<http://opengeiger.de/GeigerCaching/KarlsruherReferenzcaesium.pdf>), findet man in Karlsruhe am Hirschkanal vor dem KIT Campus Nord (ehemals Kernforschungszentrum Karlsruhe) deutlich mit Cäsium-137 kontaminierte Erde. Da die in der Erde enthaltene Aktivitätskonzentration an Cäsium-137 strahlenschutzrechtlich unbedenklich ist, stellt eine Probe von ca. 500g getrockneter Erde vom Ufer des Hirschkanals eine ideale Referenzquelle für die Citizen Science Gammaskopie dar. Man kann sie jedoch auch als Übungsmaterial für forensische Analysen verwenden (siehe auch „nuclear forensics“ im Internet), weil nämlich zusätzlich noch geringe Spuren von Americium zu finden sind und möglicherweise auch noch andere Radionuklide, die mit hoher Wahrscheinlichkeit bei „Vorfällen“ in der ehemaligen Wiederaufarbeitungsanlage von Brennelementen (WAK) auf dem Campus in die Umwelt gelangt sind. Das ist allerdings nur mit sehr guten Gammaskopie Anlagen nachweisbar. Mit normalen Anlagen und einfacher Bleiabschirmung sieht man „nur“ die markante Cs137 Linie bei 662keV.

Um das Gammaskopie Spektrum des reinen Cäsium-137 vollständig zu verstehen, sollte man sich zunächst das Zerfallsschema anschauen. Das Cäsium zerfällt in 5.6% der Fälle direkt über einen β^- -Zerfall ins stabile Barium-137 und in 94.4% der Fälle in ein metastabiles (isomer angeregtes) Barium-137m. Dabei beträgt die Halbwertszeit 30.17 Jahre. Das metastabile Barium-137m zerfällt mit einer Halbwertszeit von nur 2.55 Minuten schließlich in 85.1% der Fälle unter Aussendung der charakteristischen Gammastrahlung von 662keV. Was jedoch oft unerwähnt bleibt, ist die Tatsache, dass in den restlichen 14.9% der Fälle das metastabile Barium durch sogenannte innere Konversion unter Abgabe von Röntgenstrahlung mit 32keV in das stabile Barium übergeht. Dabei führt die Anregungsenergie des Ba137m dazu, dass ein Hüllenelektron aus der inneren K-Schale abgegeben wird. Wenn dann dieses Loch von einem Elektron der äußeren L Schale aufgefüllt wird ($K\alpha$), entsteht gleichzeitig eine Röntgenstrahlung, die eine Energie von etwa 32keV hat.

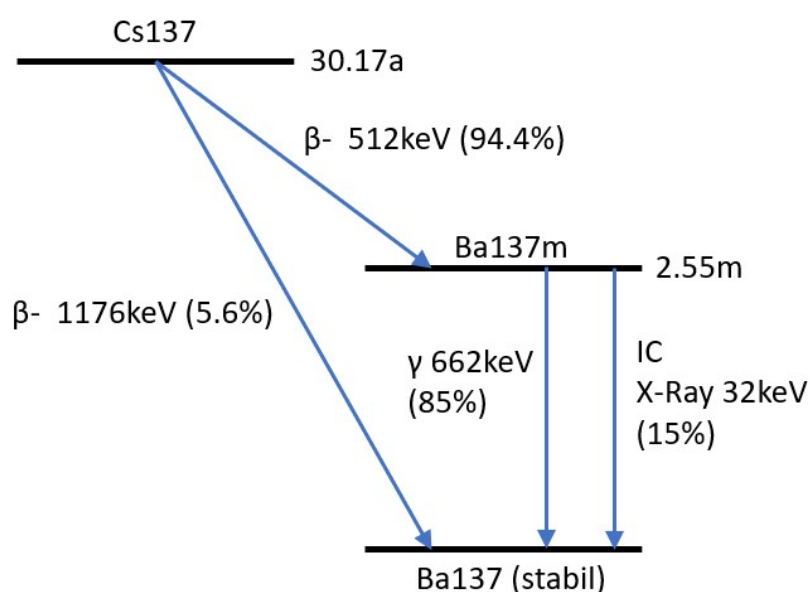


Abb. 1: Zerfallsschema Cäsium-137

Die Gestalt eines Gammaspektrums des Cäsium-137 hängt dann noch von den Materialien ab, die zur Abschirmung verwendet werden und vom Material der Schutzhülle des Szintillationskristalls (meist Aluminium). Ganz schematisch kann man das Gammaspektrum von den hohen zu den niedrigen Energien hin so beschreiben:

Bei 662keV sieht man den Photopeak, der dadurch entsteht, dass die gesamte Energie eines Gamma-Quantums, das in den Szintillationskristall eindringt, in eine Elektronenanregung umgesetzt wird (Photoeffekt), die schließlich an den Thallium-Aktivierungszentren in UV-Licht umgewandelt wird. Mit abnehmender Energie ist zunächst ein Tal erkennbar, das als Compton-Tal bezeichnet wird, in dem nur das Hintergrundrauschen sichtbar ist. Dann folgt die Compton-Kante bei 432keV. Diese Energie ist die maximale Energie, welche durch Streuung eines Gamma-Quantums (Photon) an einem Elektron des Szintillationskristalls an das Elektron abgegeben werden kann. Dies tritt ein, wenn der Streuwinkel genau 180° beträgt (Senkrechtstoß). Das Gamma-Quant verlässt dann den Kristall in umgekehrter Richtung (Rückstreuung). Wenn der Streuwinkel geringer ist, wird weniger Energie an das Elektron abgegeben, bis schließlich bei einem Streuwinkel von 0° (Vorwärtsstreuung) keine Energie mehr an ein Elektron abgegeben werden kann und das Photon ohne Wechselwirkung den Kristall verlässt. Da die Energie, die bei der Streuung an ein Elektron im Kristall abgegeben wird, anschließend in UV-Licht umgewandelt wird, das die Pulshöhe (bzw. Fläche) bestimmt, erscheint die ursprüngliche Energie des Gamma-Quantums fälschlicherweise bei einer entsprechend reduzierten Energie im Spektrum. Die niedrigste Energie entsteht also beim Streuwinkel 0° , wenn das Photon praktisch ohne Energieabgabe den Kristall verlässt. Diese minimale Anregungsenergie eines Elektrons durch den Streuprozess liegt beim Photon mit der Anfangsenergie von 662keV bei 180keV. Dieser Streuprozess wird als Compton-Streuung bezeichnet.

Gamma-Quanten, die nicht oder nur sehr schwach gestreut wurden und den Kristall wieder verlassen haben, werden oft von der Aluminium-Umhüllung des Kristalls oder von der Bleiabschirmung wieder zurück in den Kristall gestreut. Daher entsteht an der Stelle der maximalen Energie der Compton-gestreuten Photonen, bzw. der minimalen Energie von Compton-Elektronen, zusätzlich der Rückstreu- oder Backscattering Peak. Diesen Peak kann man dadurch unterdrücken, dass man beispielsweise die Bleiabschirmung innen noch mit einigen mm Kupfer und dann mit Plexiglas als Abschirmung gegen die Rückstreuung auskleidet und die Aluminiumumhüllung des Kristalls so gut es geht weglässt.

Was nun auch passieren kann ist, dass die Gamma-Quanten bzw. Photonen die Bleiabschirmung zur Fluoreszenz anregen. Dabei werden Elektronen durch die Gamma-Energie aus inneren Hüllen herausgeschlagen (Photoeffekt im Blei) und die entstandenen Lücken mit Elektronen aus den äußeren Schalen wieder aufgefüllt. Dabei müssen die Elektronen aus den äußeren Schalen aber Energie in Form von Röntgenstrahlung abgeben. Wenn Elektronen von der L-Schale die Lücken in der K-Schale auffüllen ($K\alpha$ -Übergang), dann entstehen beim Blei Röntgenlinien bei 72 und 75keV. Meist verschmelzen sie zu einem Peak.

Bei den meisten selbstgebauten Gamma-Spektrometrie-Anlagen ist danach zu den niedrigeren Energien hin Schluss. Dann beginnt meist der Bereich des elektronischen Rauschens des Verstärkers bzw. des Photomultipliers und diese Pulshöhen haben dann nichts mehr mit dem Geschehen im Szintillationskristall zu tun. Das Beste ist, diese kleinen unkorrelierten Pulshöhen ohne Informationsgehalt mit der Rauschbegrenzung der Auswertesoftware auszublenden.

Bei wirklich guten Anlagen kann man jedoch bei den ganz niedrigeren Energien noch den Röntgen-Peak des Ba137 aus dem Zerfall des Cs137 über die innere Konversion sehen. Er taucht ganz am linken Rand des Spektrums bei 32keV auf.

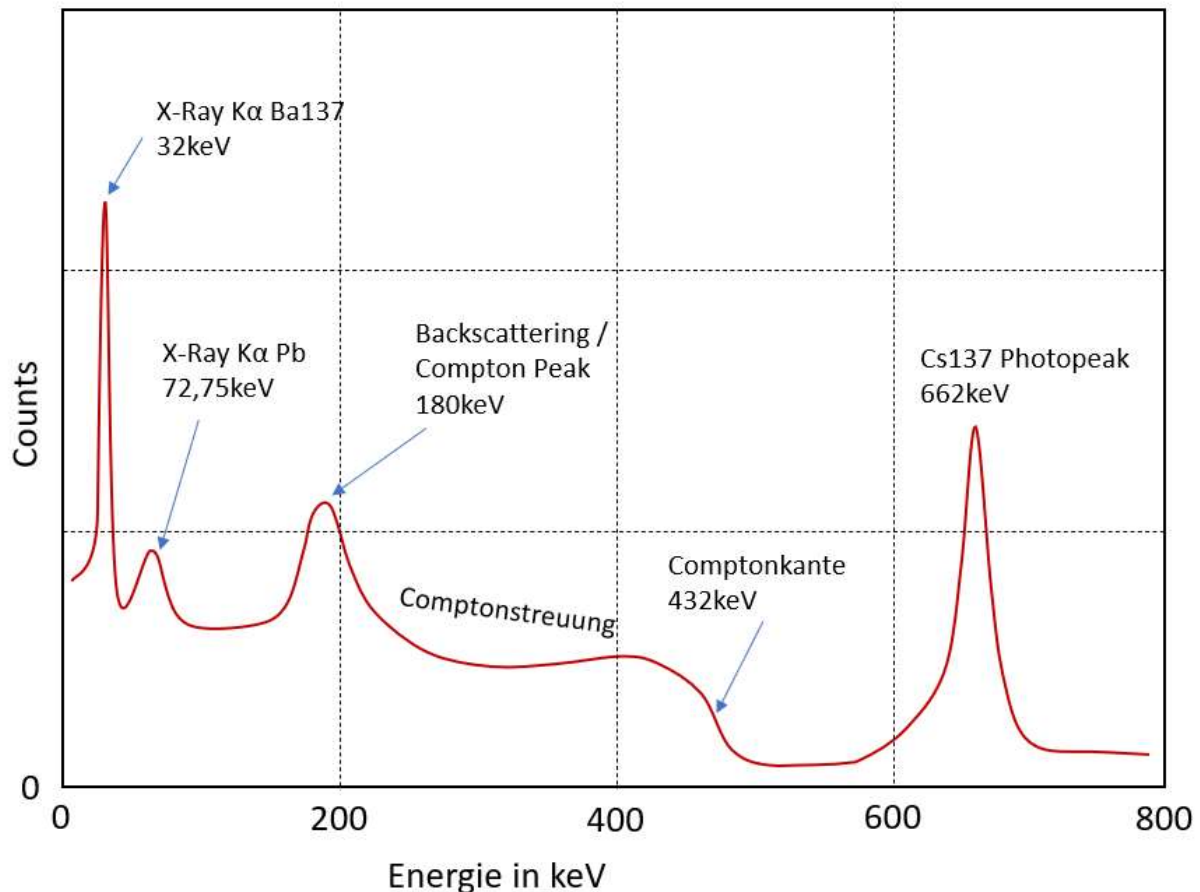


Abb. 2: Idealisiertes Gamma-Spektrum des Cs137

Da in einer Probe des Karlsruher Referenz-Cäsiums auch noch eine sehr geringe Menge Americium 241 enthalten ist, welches in 35.9% der Zerfälle eine Gamma-Energie von 59keV abgibt, kann man bei einer sehr guten Anlage auch noch den Am241 Peak bei 59keV erkennen. Bei weniger guten Anlagen verschmilzt dieser Peak unter Umständen mit dem Röntgen-Fluoreszenz Peak der Bleiabschirmung bei 72 bzw. 75keV.

Im Nachfolgenden sind die besten Gammaspektren von Anwendern aus der Community gezeigt, die eine Probe mit etwa 500g der Erde vom Ufer des Hirschkanals, die das Karlsruher-Referenzcäsium enthält, untersucht haben. Dabei kamen vor allem NaJ Szintillationskristalle zum Einsatz. In einem Fall wurde aber auch eine spezielle Sonde (RAP47 von SE International) verwendet, die für geringere Energien ausgelegt ist, wie sie beispielsweise bei der Röntgenfluoreszenz-Analyse auftreten. Diese Sonde verwendet eine CsJ Scheibe mit 1 Zoll Durchmesser und einer Dicke von nur 1mm. Damit sieht sie den Am241 und den Ba137 Peak sehr gut, jedoch den 662keV Peak wieder etwas schlechter.

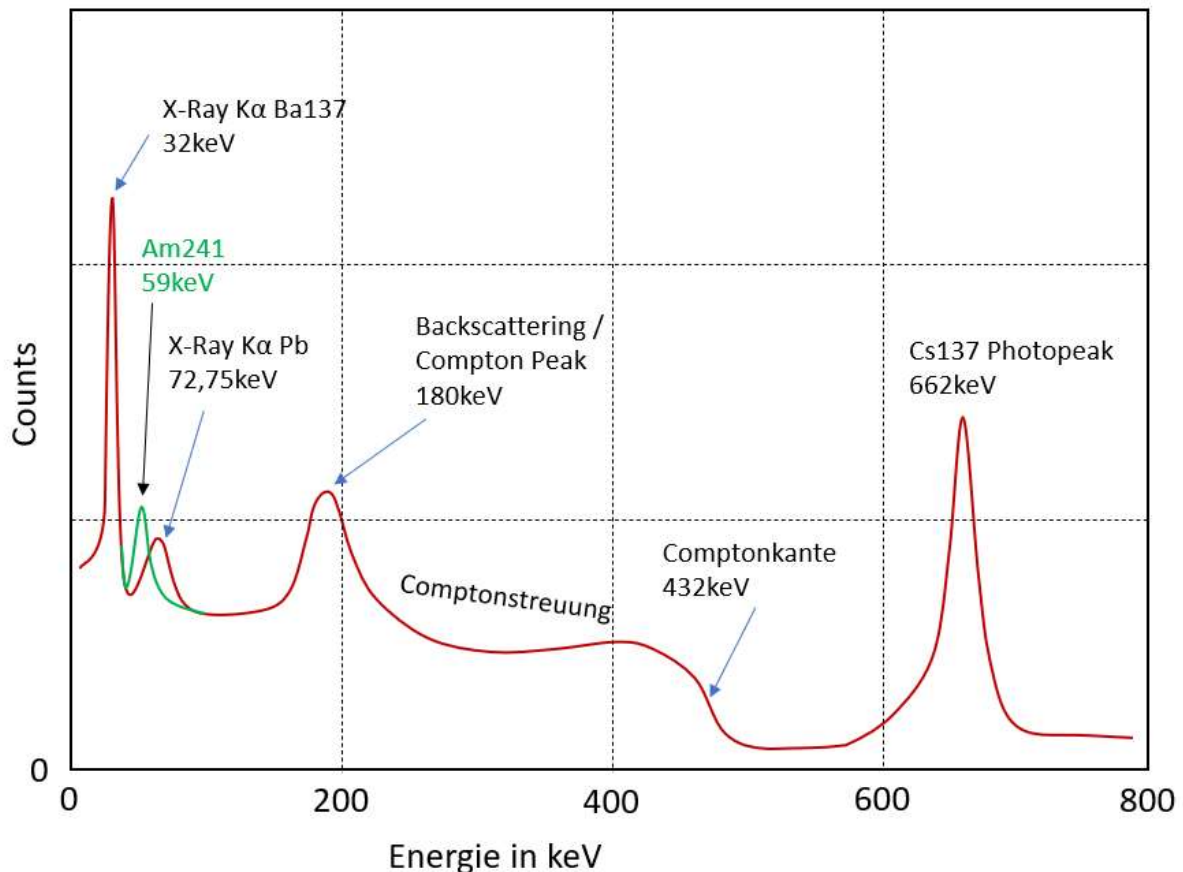
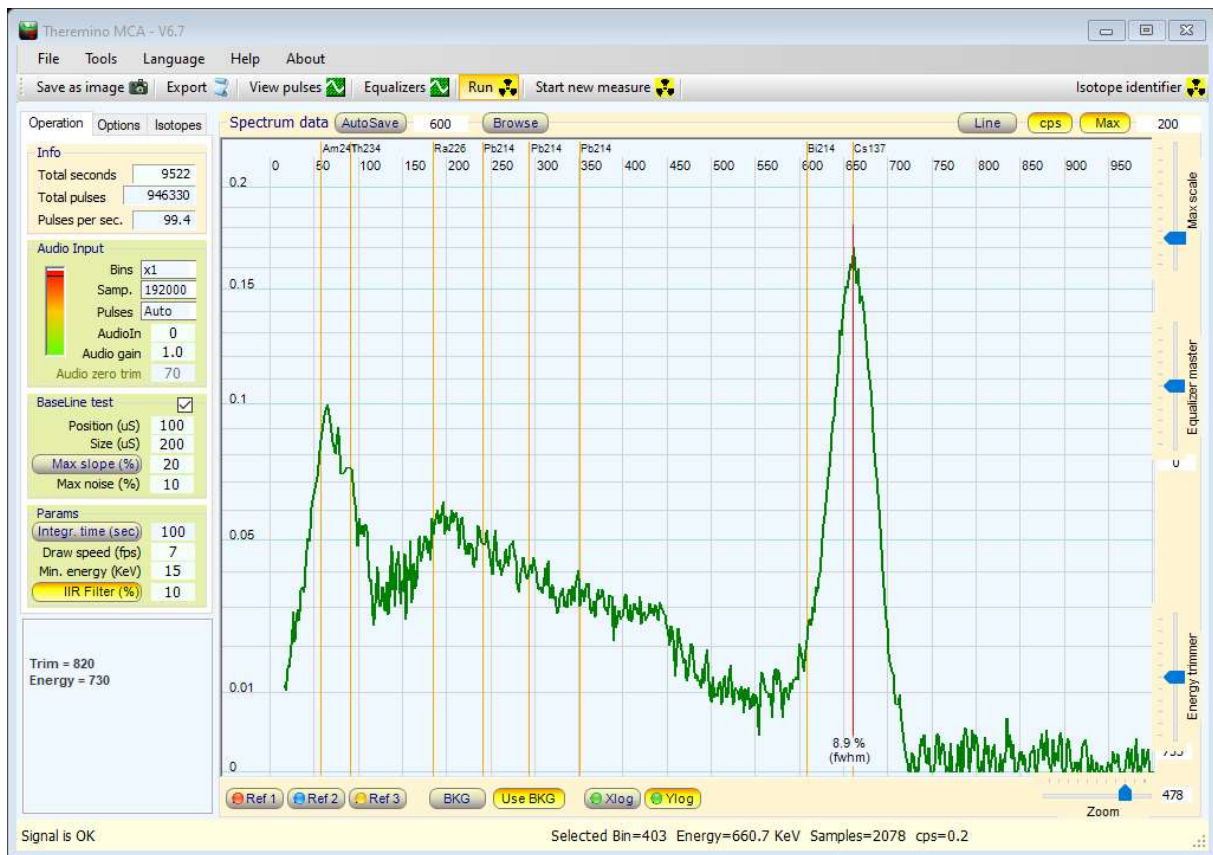


Abb. 3: Idealisiertes Gamma-Spektrum des Karlsruher-Referenz Cäsium

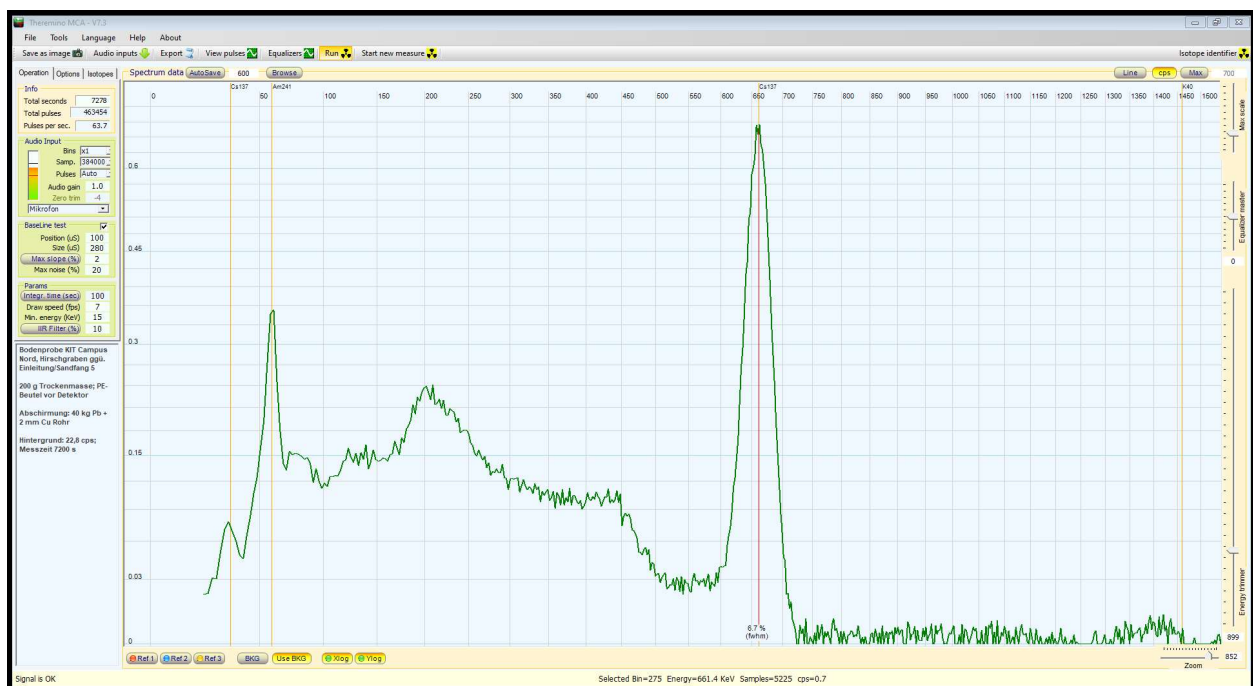
Alle im weiteren gezeigten NaI Spektren aus der Community zeigen die 662keV Linie des Cs137 sehr deutlich. Die richtig guten Anlagen unterdrücken die Röntgenfluoreszenz des Bleis mit Hilfe einer aufwändigeren Schirmung, und zeigen sogar die Röntgenstrahlung des Ba137 bei 32keV und eben auch eine Am241 Linie, welche auf die Kontamination der Erde mit Americium schließen lässt. Dieses Am241 entsteht durch Zerfall des Plutonium-241, das z.B. bei der Wiederaufarbeitung aus abgebrannten Brennstäben herausgelöst wird. Dieses Am241 könnte daher aus der ehemaligen Wiederaufarbeitungs-Anlage Karlsruhe (WAK) stammen. Dann wiederum ist es auch wahrscheinlich, dass auch Plutonium-241 vorhanden ist, ein reiner Beta-Strahler, der so gut wie keine Gamma-Strahlung abgibt.

Damit zeigt sich auch ganz deutlich, dass Nuklear-Forensik aus der Citizen Science Community heraus durchaus möglich ist und einen enorm wertvollen Beitrag zur Sicherheit der Gesellschaft leisten kann. Ein großer Dank geht an alle Interessierten, die bisher mit ihren Analysen beigetragen haben.

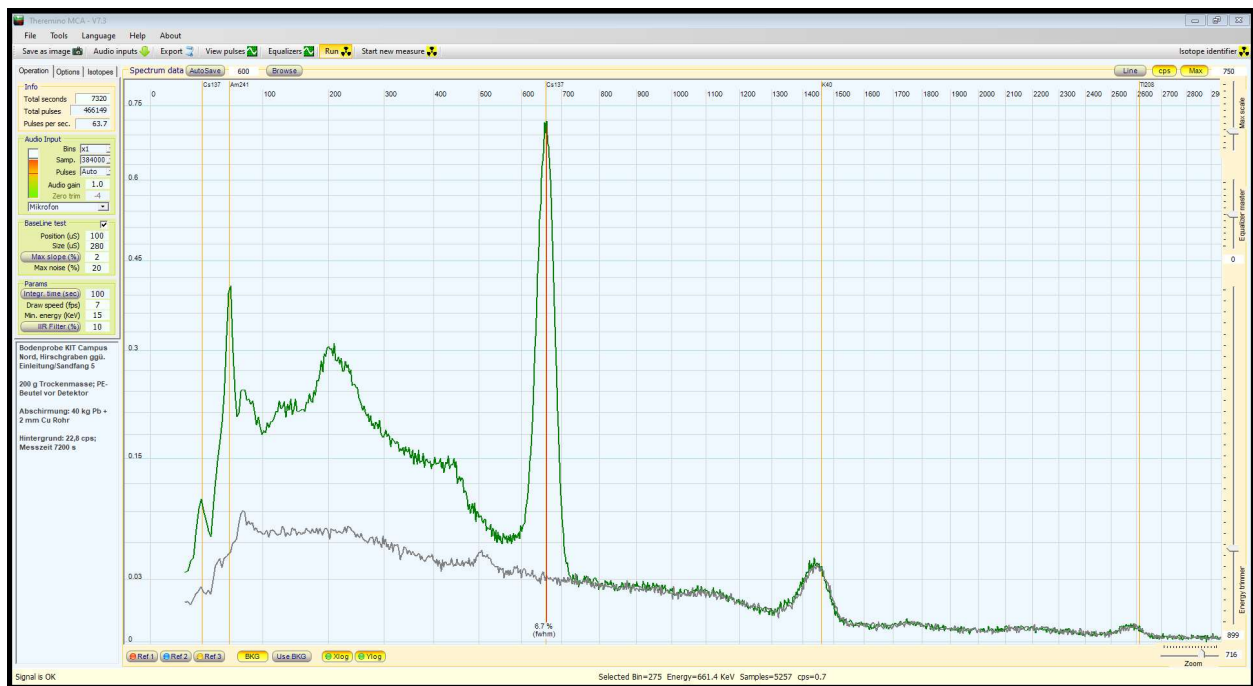
Gamma-Spektroskopie-Anlage 1



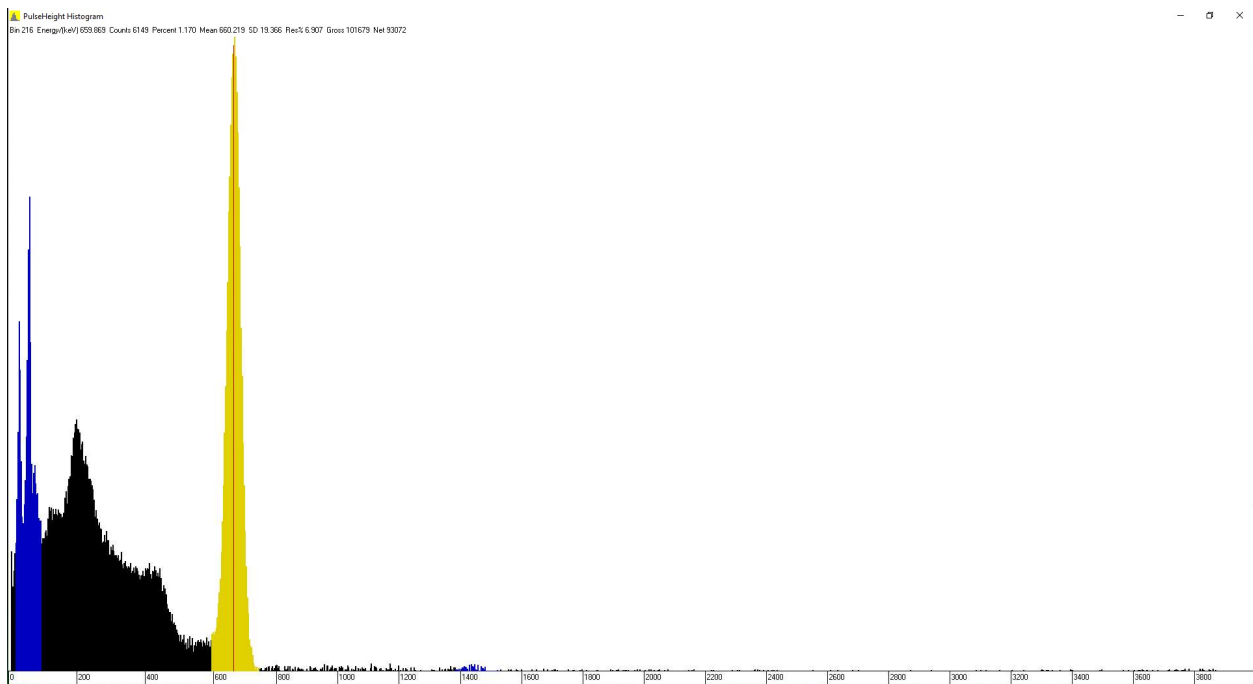
Gamma-Spektroskopie-Anlage 2



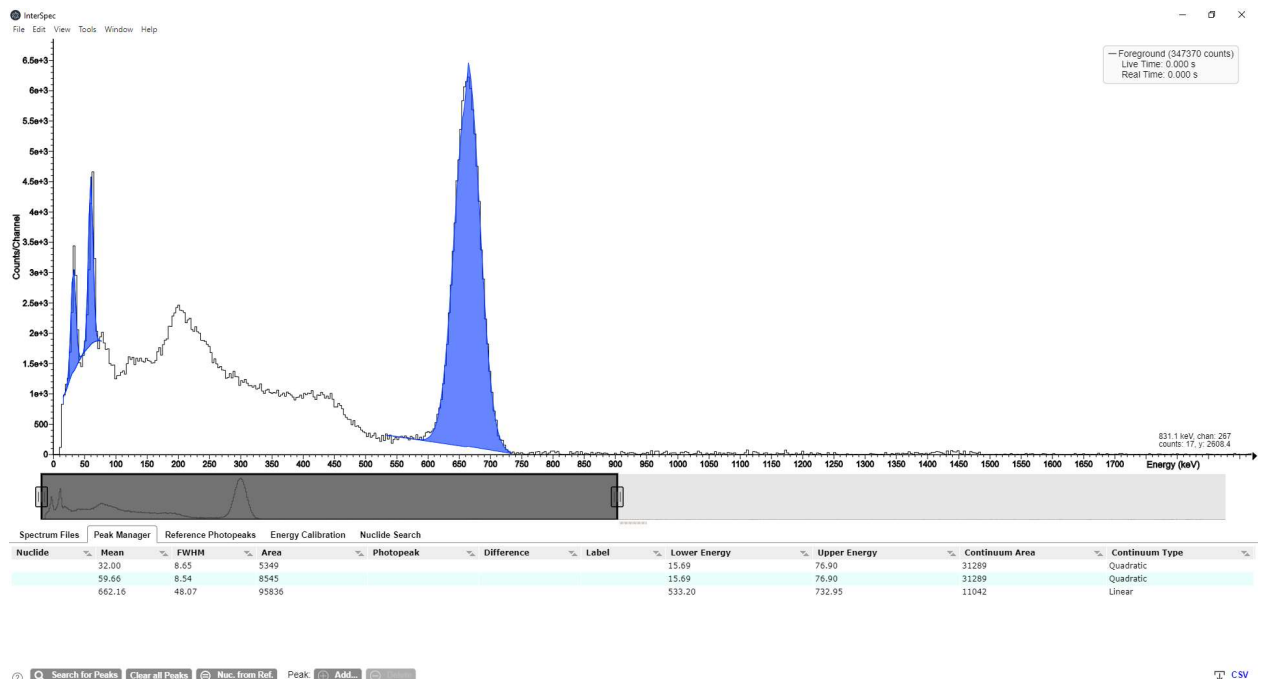
Theremino Auswertung



Theremino Auswertung Probe (grün) und Hintergrund (grau)

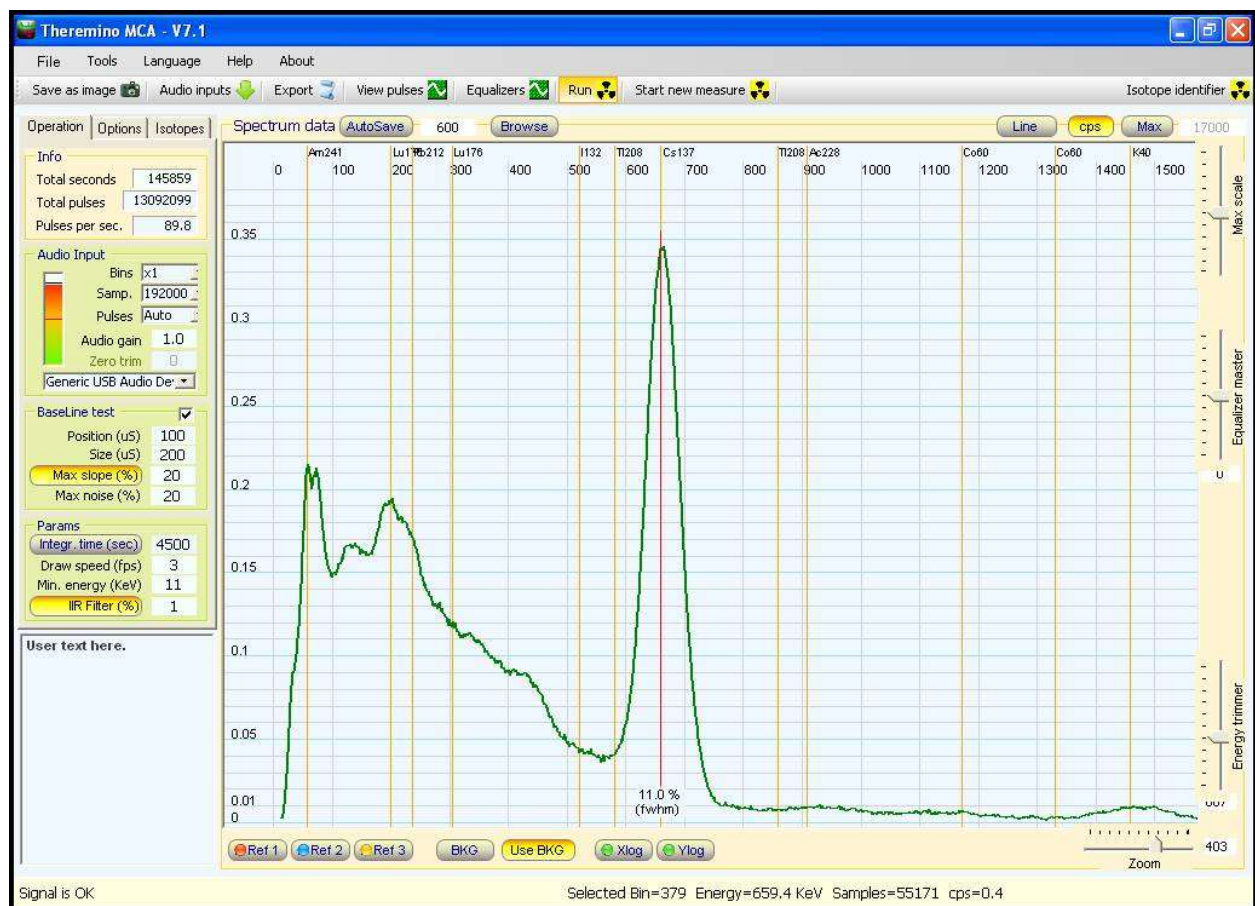


Pra Auswertung

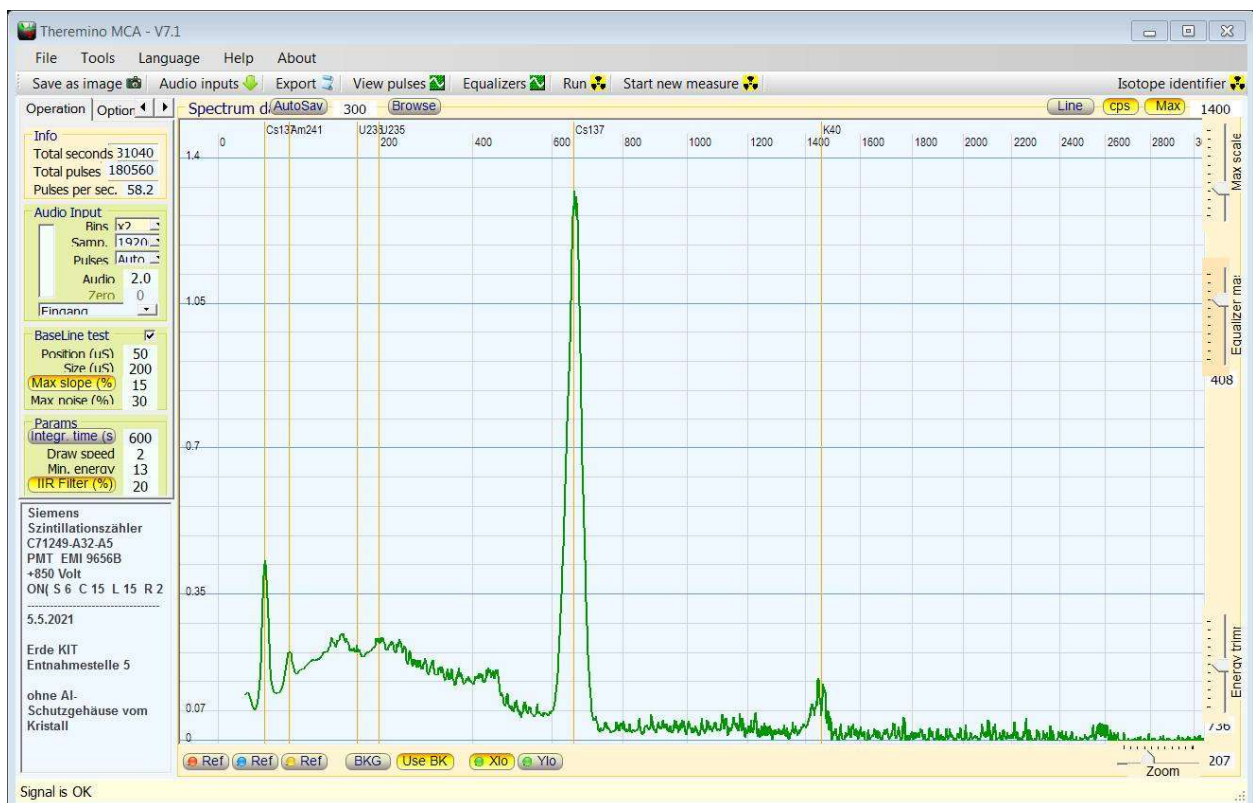
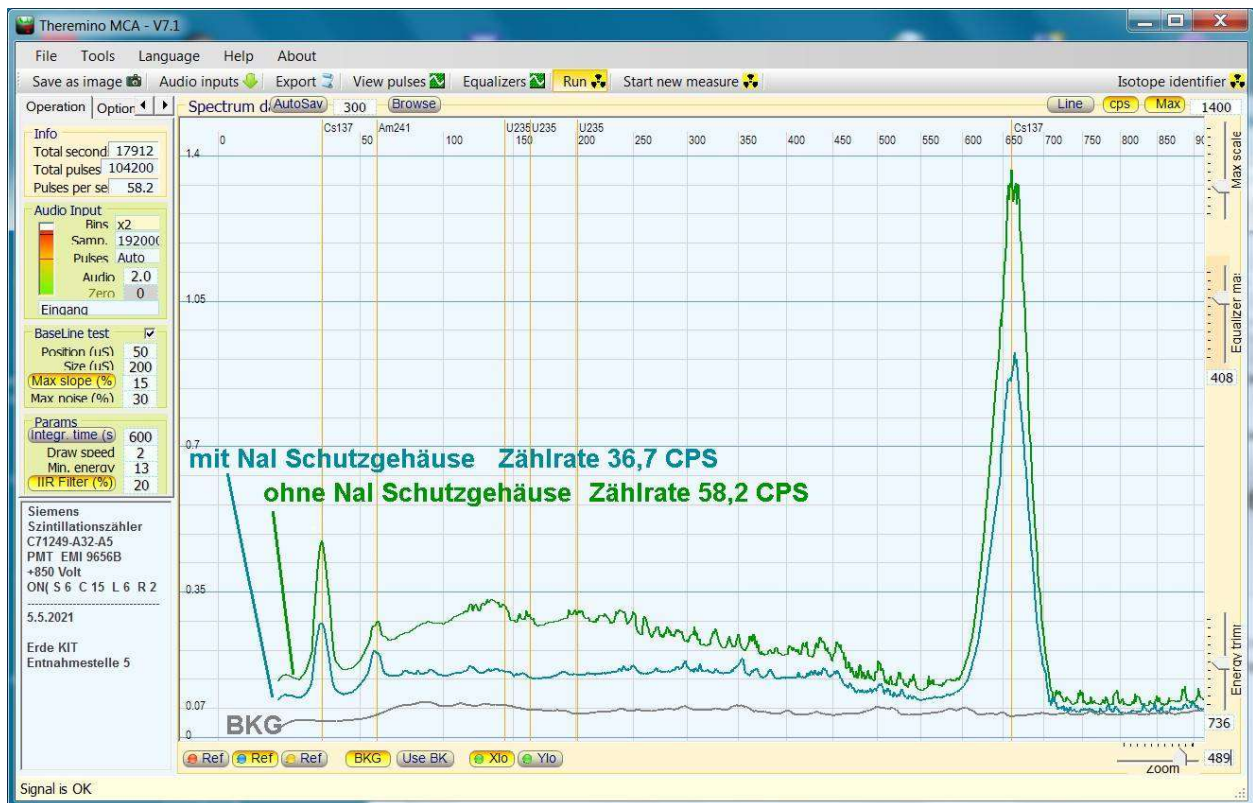


Postprocessing mit Interspec

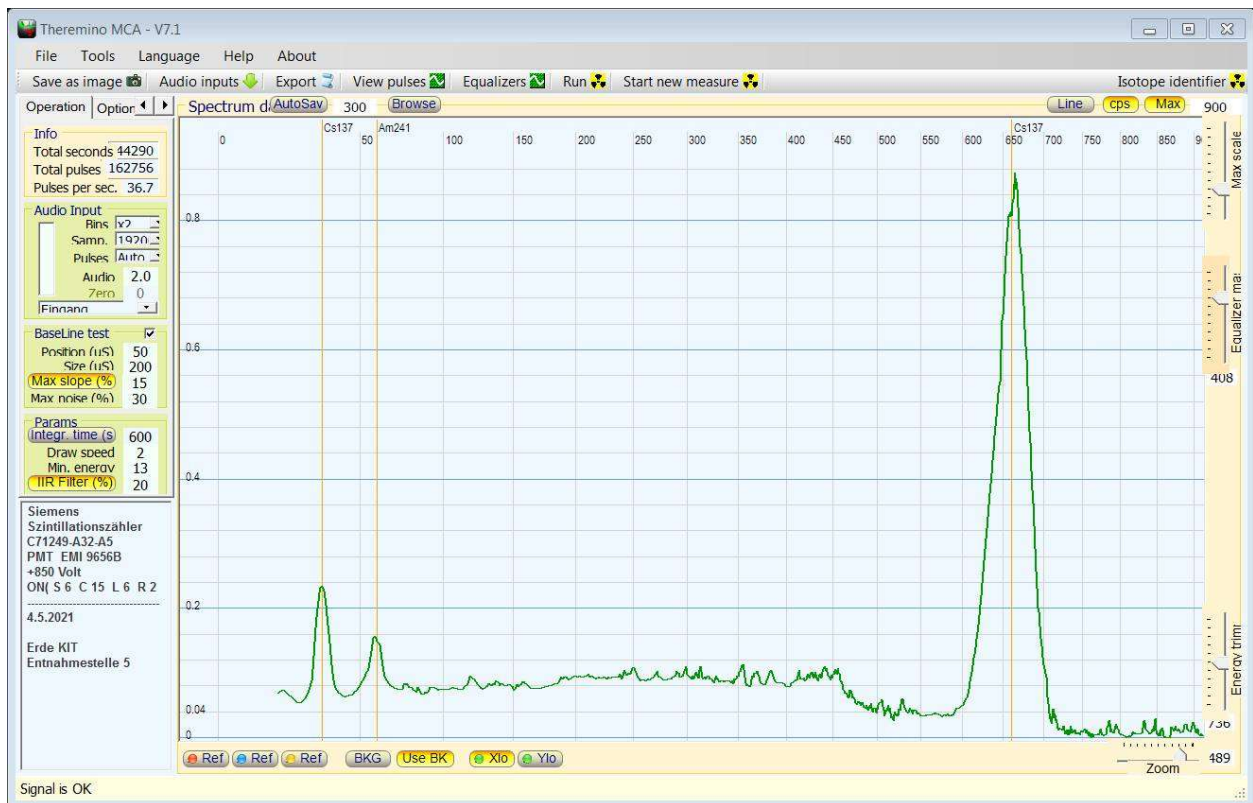
Gamma-Spektroskopie-Anlage 3



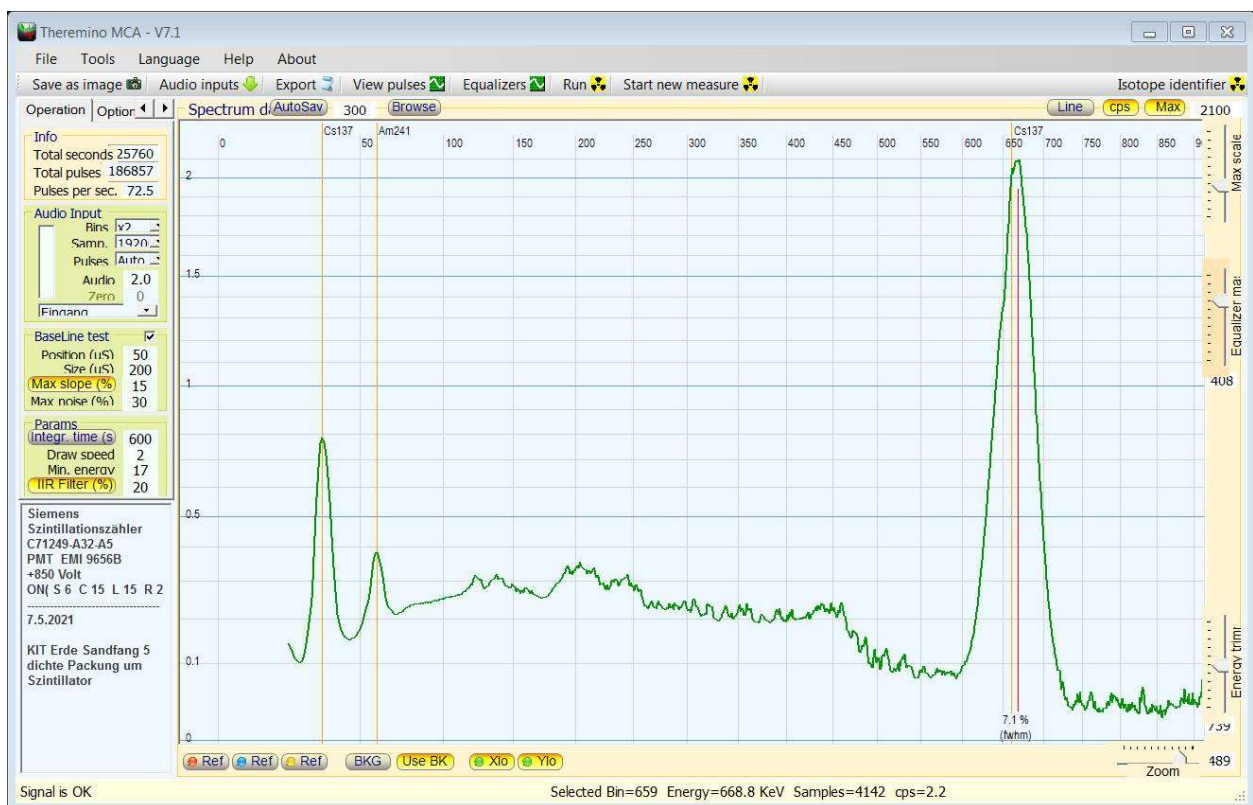
Gamma-Spektroskopie-Anlage 4



Ohne Alu-Schutzgehäuse, volle Breite des Spektrums



Mit Alu-Schutzgehäuse



Bestimmung der Halbwertsbreite, xlog-ylog Darstellung

Gamma-Spektroskopie-Anlage 5



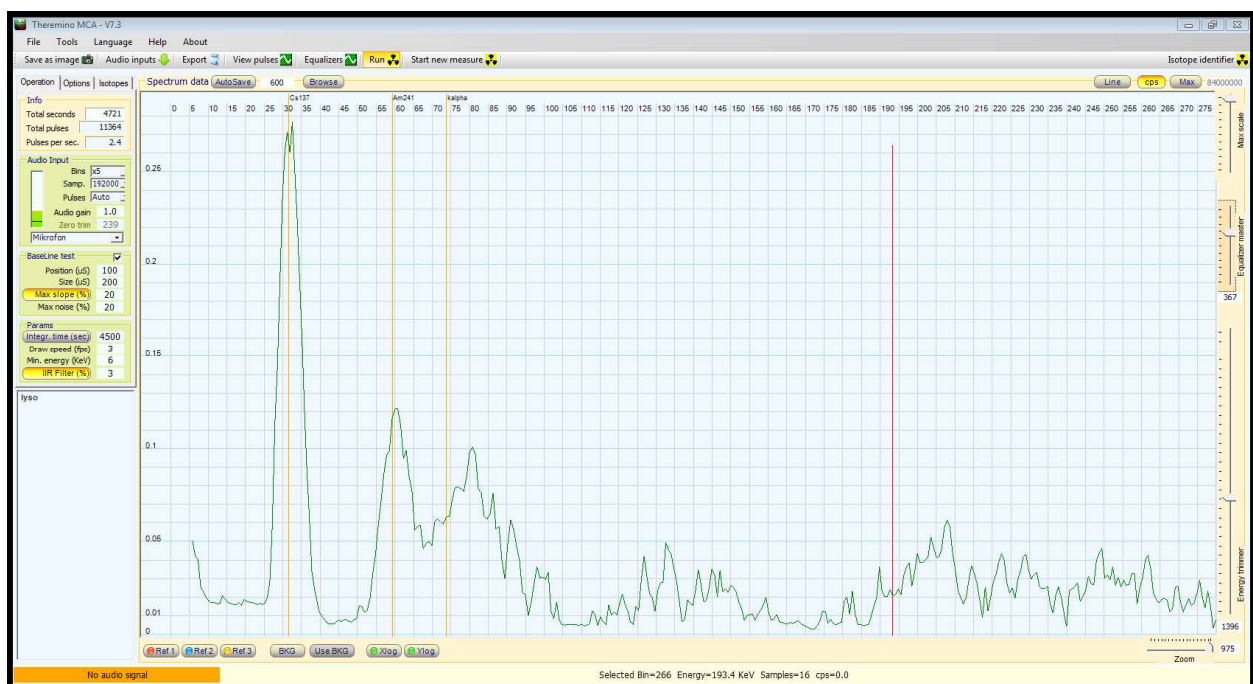
NaI-Detektor mit Bleiabschirmung



RAP47 low-energy Sonde CsI (TI), 1mm dicke Szintillatorkristall-Scheibe, Karlsruher Referenz-Cäsium

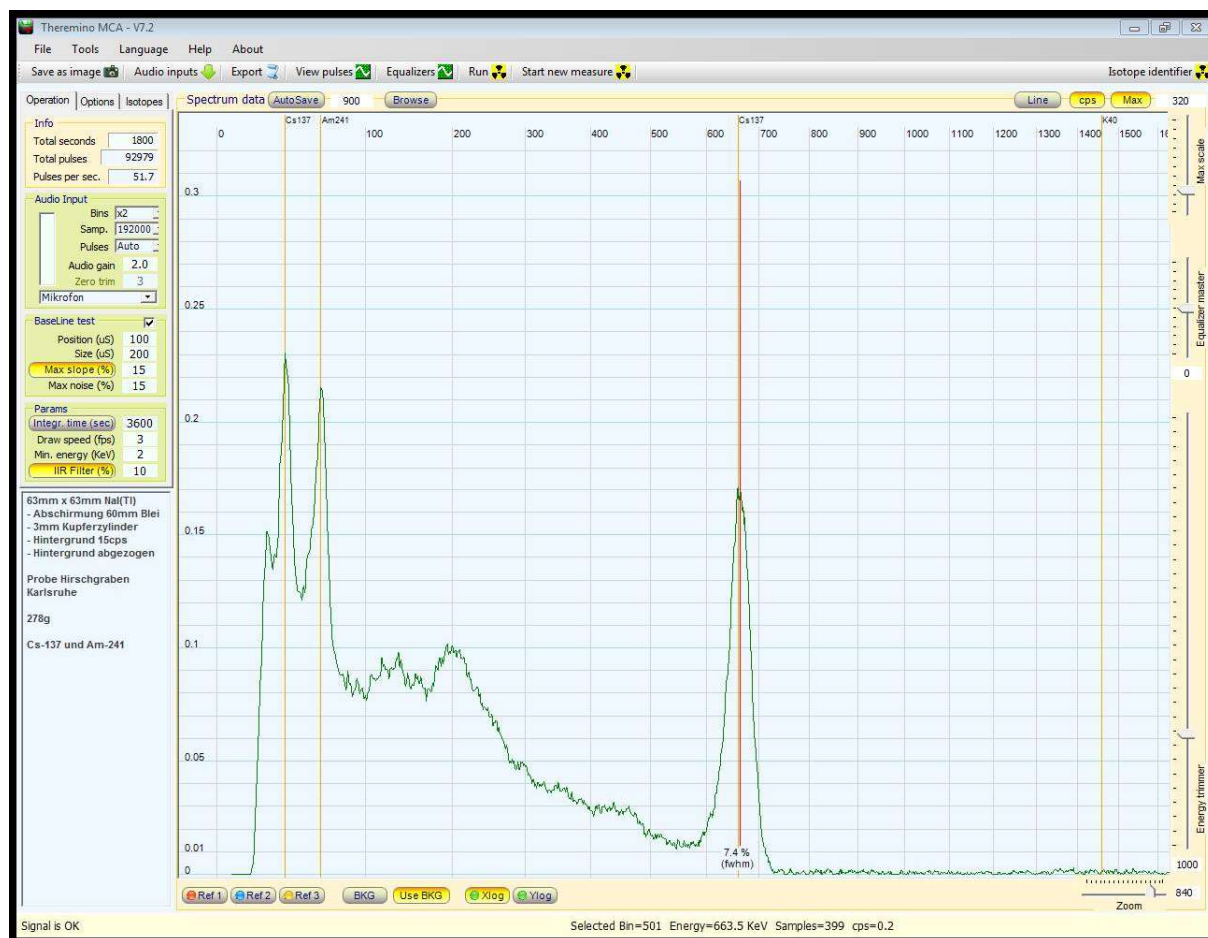


Zum Vergleich: Spark-Gap Röhre mit Cs137 Vorionisation als Probe, RAP47 low-energy Sonde

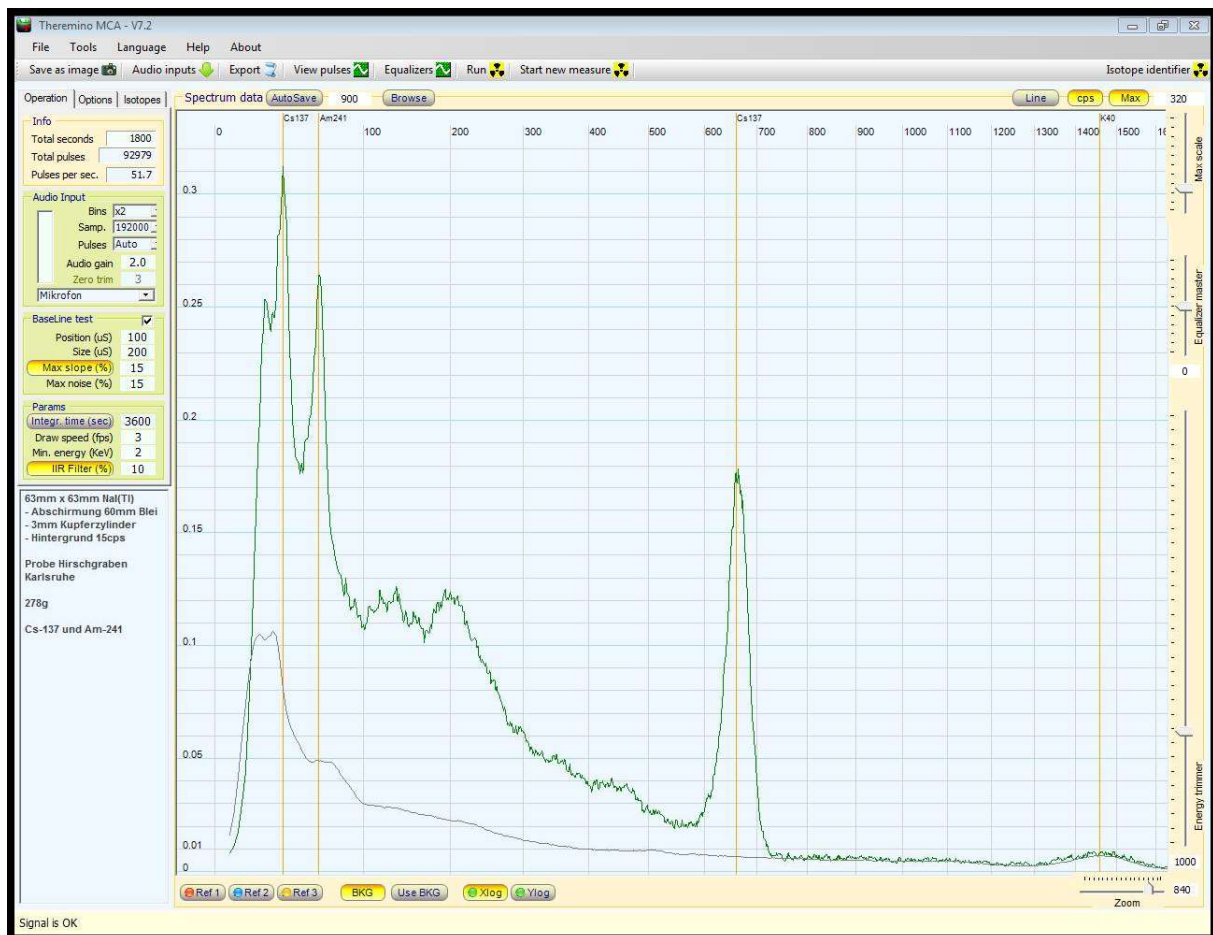


Karlsruher Referenz-Cäsium, RAP47 low-energy Sonde, Zoom In

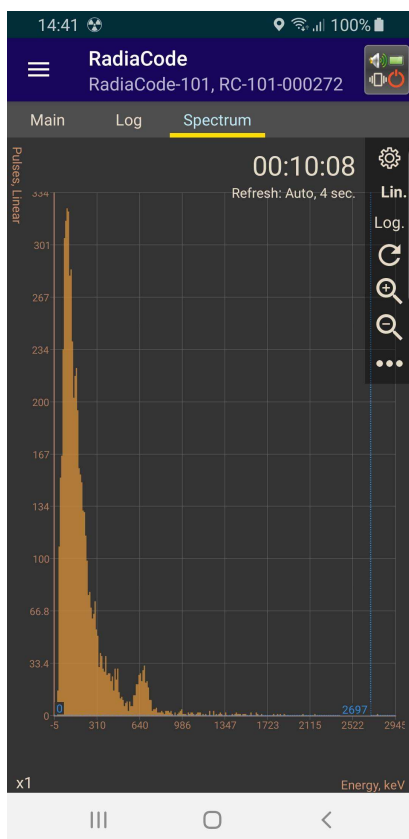
Gamma-Spektroskopie-Anlage 6



Probe ohne Hintergrund



Probe(grün) mit Hintergrund(grau)



Messung der Probe mit RadiaCode-101 Handmessinstrument (CsJ mit Si-Photomultiplier)