



Schweizerische Eidgenossenschaft
Confédération suisse
Confederazione Svizzera
Confederaziun svizra

Eidgenössisches Departement für Verteidigung,
Bevölkerungsschutz und Sport VBS
Bundesamt für Bevölkerungsschutz BABS
Labor Spiez

Natürliche Radionuklide in Bodenproben

Mess- und Auswertestrategie

Varda Furrer
Gamma Workshop BAG Liebefeld, 9.12.2024



Wie viele Peaks darf es sein?





Themen

- Uran-Radium Zerfallsreihe
- Uran-Actinium Zerfallsreihe
- Thorium Zerfallsreihe
- K-40
- Messstrategie
- Radondichte Messgeometrien
- Optimierung der Auswerteprozedur

Gamma-Energien und Emissionsintensitäten:
<http://lnhb.fr/Laraweb/index.php> (Stand 05.12.2024)



Bestimmung des Pb-214, Bi-214, Ra-226

Eingewachsene Radontöchter Pb-214 und Bi-214 (Kaskadenkorrektur!) erreichen im rad. Gleichgewicht dieselbe Aktivität wie Ra-226

@ Bi-214	3.52E+02	
@ Pb-214	3.53E+02	
@ Ra-226	3.03E+02	
@ U-235	1.60E+01	

Ra-226: gemeinsame Linie mit U-235 bei 186 keV, Software kann das Verhältnis oft nicht korrekt auflösen \Rightarrow beide A falsch

Korrektur Ra-226 / U-235 (Annahme natürliches U-Isotopenverhältnis):

1. Setze $A_{(\text{Ra-226})} = A_{(\text{Pb-214, Bi-214})}$
2. Subtrahiere die Aktivitätsdifferenz von $A_{(\text{U-235})}$: $49.5 \text{ Bq} / 16 = 3.09 \text{ Bq}$
3. Damit korrigiert sich die $A_{(\text{U-235})}$: $16.0 \text{ Bq} - 3.09 \text{ Bq} = 12.9 \text{ Bq}$
4. Bei nat. Isotopenverhältnis: $A_{(\text{U-238})}$: $12.9 \text{ Bq} \times 21.7 = 280 \text{ Bq}$

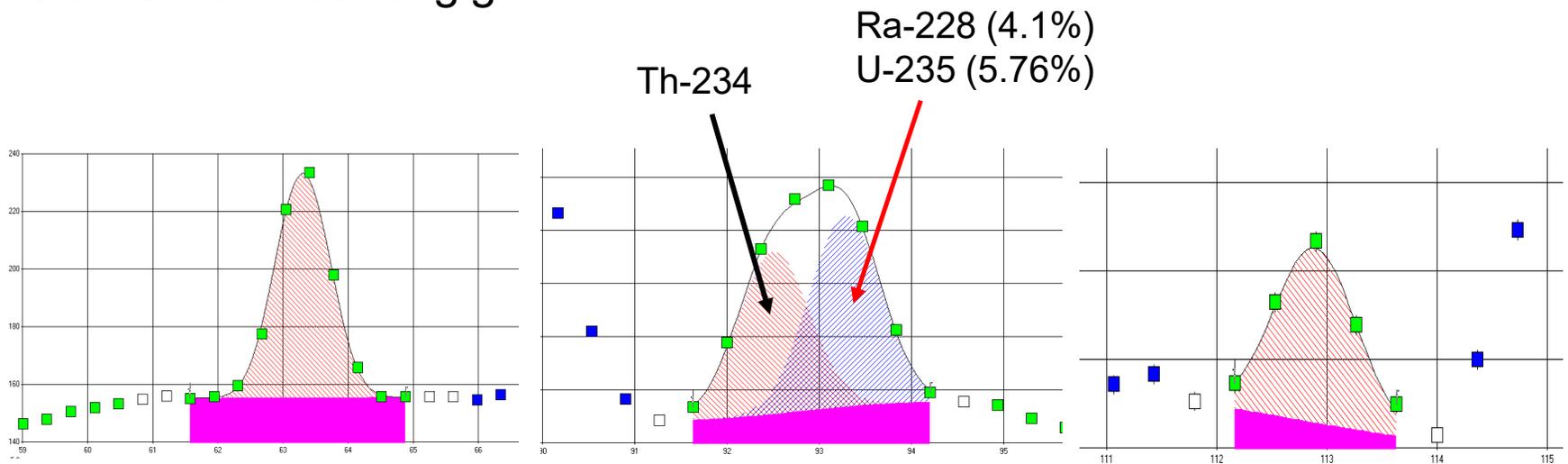


Bestimmung des Th-234

Th-234 ($T_{1/2}$ 24.1 T): in ungestörten Proben natürlicher Herkunft im radioaktiven Gleichgewicht mit U-238

63.3 keV / 3.75%	interferiert durch Th-232 (63.811 keV / 0.259%)
83.31 keV / 0.061%	stark interferiert, nicht verwenden, schwach
92.38 keV / 2.18%	
92.8 keV / 2.15%	als 92.6 keV mit 4.33% → nicht verwenden
112.81 keV / 0.215%	schwach

Starke Matrixabhängigkeit!





Bestimmung des Pa-234m

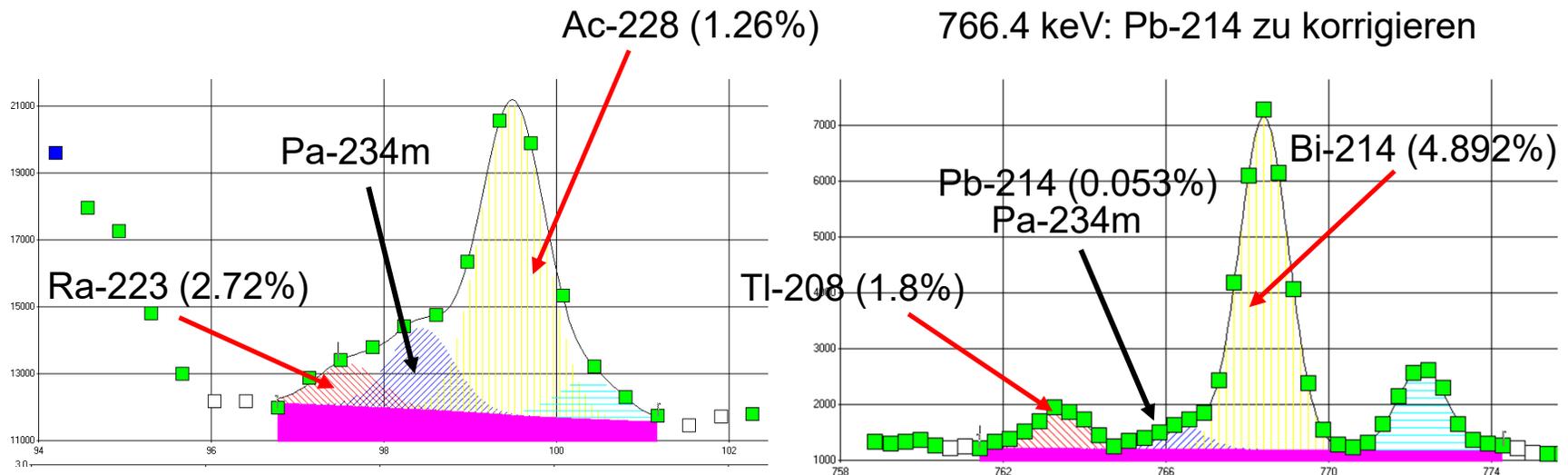
Pa-234m ($T_{1/2}$ 1.2 min): im Gleichgewicht mit Th-234 aber nur schwache γ

98.44 keV 0.3412% (X-Ray von U-238 im Gleichgewicht)

766.361 keV 0.323% (und Pb-214 0.053%) \Rightarrow nicht verwenden

1001.026 keV 0.847%

Schlechtere Nachweisgrenze als Th-234 aufgrund geringerer Intensität
Weniger Matrixabhängigkeit





Bestimmung des U-238

Idealerweise: die Linien von Pa-234m bei 1001.026 keV und 98.44 keV auswerten

Die mittlere, gewichtete Aktivität von Th-234 (höhere Matrixabhängigkeit, grössere Unsicherheit, aber tiefere NWG):

63.3 keV (Linienaktivität für Ac-228 korrigieren)

112.81 keV (schwach, sonst nur 63.3 keV verwenden)

Vergleich mit der aus den Radontöchtern Pb-214 und Bi-214 hochgerechneten U235- bzw. U-238-Aktivität

Pa-234m: 1001.026 keV enthält auch Ac-228 (Faktor 157)

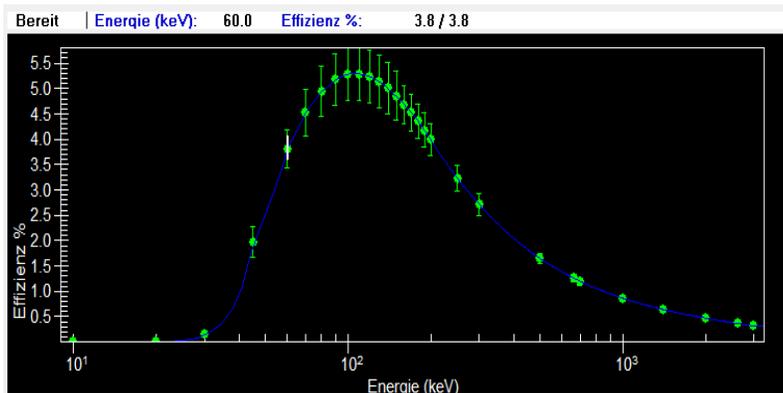
Th-234: 63.3 keV enthält auch Th-232 (Faktor 14.5)



Bestimmung des Pb-210

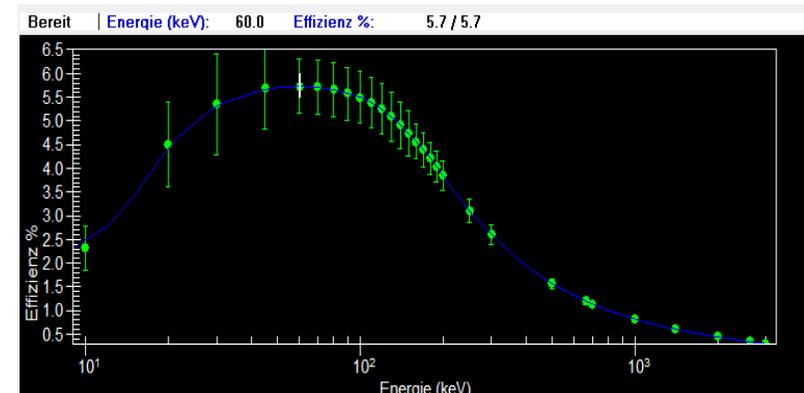
Bestimmung der Linie bei 46.539 keV (4.252%)

- Matrixeffekte sind zu berücksichtigen
- $A_{(\text{Pb-210})} \geq A_{(\text{Bi-214})}$
- idealerweise BEGe Detektoren verwenden
- Geeignete Messgeometrie (flach, grosser Durchmesser)



Schlechte Geometrie

- hohe Selbstabsorption
- kleiner Durchmesser



Gute Geometrie

- geringe Selbstabsorption
- grosser Durchmesser



Uran-Actinium Zerfallsreihe

Uran/Actinium $A = 4n + 3$						Th-231 25,5 h β^-	U-235 7,0 · 10 ⁸ a			
		Bi-215 7,4 min β^-	$\xleftarrow{\alpha}$ 97 %	At-219 56 s β^- 3 %	$\xleftarrow{\alpha}$ 0,02 %	Fr-223 22 min β^- 99,8 %	$\xleftarrow{\alpha}$ 1,4 %	Ac-227 21,8 a β^- 98,6 %	$\xleftarrow{\alpha}$	Pa-231 3,3 · 10 ⁴ a
		Pb-211 36,1 min β^-	$\xleftarrow{\alpha}$ ~ 100 %	Po-215 1,8 ms β^- 2,3 · 10 ⁴ %	$\xleftarrow{\alpha}$	Rn-219 3,96 s	$\xleftarrow{\alpha}$	Ra-223 11,4 d	$\xleftarrow{\alpha}$	Th-227 18,7 d
	Tl-207 4,8 min β^-	$\xleftarrow{\alpha}$ 99,72 %	Bi-211 2,15 min β^- 0,28 %	$\xleftarrow{\alpha}$	At-215 ~ 100 μ s					
		Pb-207 stabil	$\xleftarrow{\alpha}$	Po-211 0,52 s						

Wenig verwertbare γ -Emitter in dieser Zerfallsreihe:

U-235

Weitere: Pa-231, Th-227, Ra-223, Rn-219 \Rightarrow eher bei Uranproben

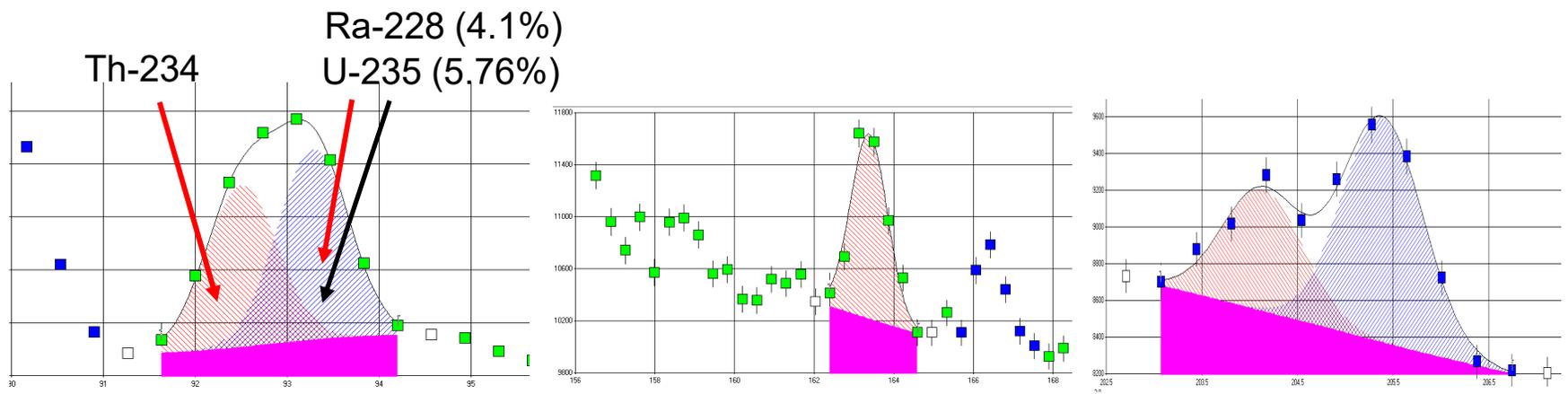
[Graphik Zerfallsreihe: Schkade, Heckel, Wershofen 2018](#)



Bestimmung des U-235

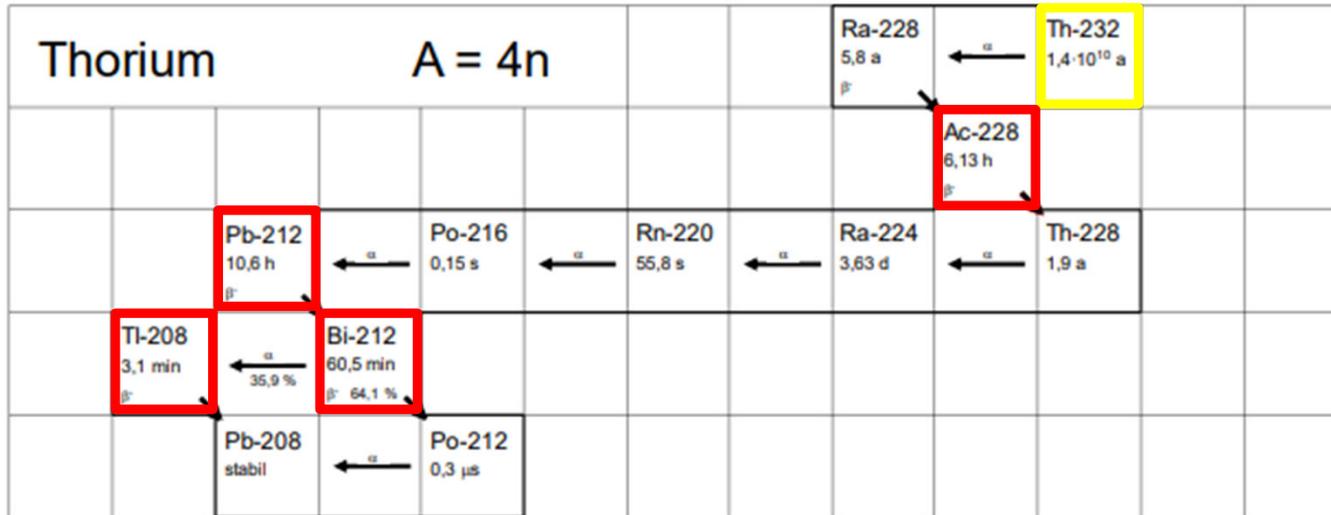
U-235	93.351 keV	5.76%	⇒ interferiert von Ra-228, Th-234
	143.767 keV	10.94%	⇒ oftmals kaskadenbelastet
	163.356 keV	5.08%	⇒ gut, sorgfältiger Peak Fit
	185.72 keV	57.0%	⇒ Wenn $A_{(\text{Ra-226})}$ bekannt
	205.316 keV	5.02%	⇒ k(I)eine Summationslinie bei 204

Berechnen der $A_{(\text{U-235})}$ aus der Linie 186 keV, wenn $A_{(\text{Ra-226})}$ bekannt





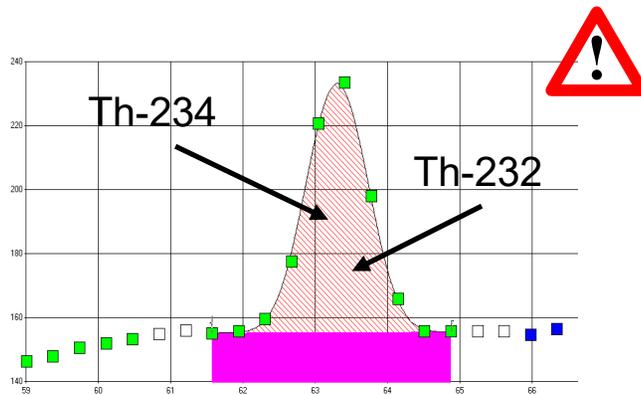
Thorium Zerfallsreihe



Th-232: γ bei 63.811 keV (0.259%) ⇒ Th-234: γ bei 63.3 keV (3.75%)

Th-232 nur rechnerisch
bestimmbar mit γ

⇒ Linie 63.811 keV / 0.259% für Ac-228 in die Nuklidbibliothek aufnehmen



Graphik Zerfallsreihe: Schkade, Heckel, Wershofen 2018



Bestimmung des Ac-228

Einfach und robust dank zahlloser y

Key: 338.32, 911.196, 968.96 keV

Aber:

Kaskadenkorrektur!

Interferierende Linien in die Nuklidbibliothek aufnehmen!

63.811 keV / 0.259% (von Th-232)

93.351 keV / 4.1% (von Ra-228)

99.505 keV / 1.26%

1000.68 keV / 0.0054%

1459.131 keV / 0.87%

Ac-228	0.99						
57.7 *@	0.4 %	8.93E+01	12.9 %	ohne			
89.9 *@	2.5 %	2.39E+02	29.7 %	1.000			
93.3 *@	4.1 %	2.04E+02	28.6 %	1.000			
99.5 *@	1.2 %	1.22E+02	10.9 %	0.800			
105.5 *@	1.5 %	8.81E+01	28.5 %	1.000			
108.9 *@	0.4 %	1.02E+02	28.6 %	1.000			
129.0 *@	2.5 %	1.18E+02	10.5 %	0.887			
153.9 *@	0.7 %	1.84E+02	10.5 %	0.896			
199.4 *@	0.3 %	1.20E+02	18.5 %	ohne			
209.2 *@	3.9 %	1.19E+02	8.8 %	0.940			
270.2 *@	3.5 %	1.04E+02	9.3 %	0.918			
328.0 *@	3.0 %	1.32E+02	8.6 %	0.917			
332.3 *@	0.3 %	1.29E+02	18.9 %	ohne			
338.3 *	11.4 %	1.31E+02	8.3 %	0.988			
340.9 *@	0.4 %	1.04E+02	11.3 %	ohne			
409.4 *@	2.0 %	1.30E+02	7.7 %	0.868			
463.0 *@	4.4 %	1.45E+02	9.1 %	0.848			
508.9 @	0.5 %			0.969			
562.5 *@	0.8 %	1.30E+02	8.2 %	0.991			
725.5 *@	0.6 %	1.60E+03	14.8 %	0.864			
727.2 *@	1.0 %	1.01E+02	12.1 %	0.900			
772.2 *@	1.5 %	1.30E+02	7.5 %	0.864			
782.1 *@	0.5 %	1.42E+02	11.4 %	0.940			
794.9 *@	4.3 %	1.29E+02	6.7 %	0.872			
830.4 *@	0.6 %	1.20E+02	14.6 %	0.865			
835.7 *@	1.7 %	1.22E+02	7.1 %	0.913			
840.3 *@	0.9 %	1.80E+02	7.4 %	0.873			
904.2 *@	0.7 %	1.01E+02	13.5 %	0.962			
911.2 *	26.2 %	1.31E+02	5.5 %	0.978			
958.5 *@	0.2 %	1.33E+02	20.1 %	frei			
964.7 *@	4.9 %	1.40E+02	5.6 %	0.956			
968.9 *	15.9 %	1.32E+02	5.3 %	0.978			
1110.6 *@	0.3 %	1.56E+02	15.0 %	1.319			
1247.1 *@	0.5 %	1.07E+02	10.3 %	0.866			
1459.1 *@	0.8 %	7.20E+00	142.1 %	0.962			
1495.9 *@	0.9 %	1.28E+02	6.7 %	0.962			
1501.5 *@	0.5 %	1.39E+02	8.0 %	0.962			
1580.5 *@	0.6 %	1.29E+02	9.5 %	frei			
1588.2 *@	3.0 %	1.34E+02	5.8 %	1.005			
1625.0 *@	0.2 %	1.37E+02	12.7 %	1.068			
1630.6 *@	1.5 %	1.46E+02	6.1 %	1.006			
1638.2 *@	0.4 %	1.33E+02	9.9 %	frei			



Bestimmung des Pb-212, Bi-212, Tl-208

Rn-220 «Thoron» $T_{1/2}$ 55.8s \Rightarrow verbleibt \approx vollständig in der Probe
 \Rightarrow Thorontöchter im radioaktiven Gleichgewicht nach wenigen Min.

Pb-212 robust

Bi-212 (Kaskadenkorrektur!) robust, weniger matrixabhängig

Tl-208 robust...

35.8% γ , Rest β

\Rightarrow Effizienzkalibration für 2614.5 keV berücksichtigen



Bestimmung des K-40

K-40 ist zu 0.0117% im natürlichen Isotopengemisch enthalten

$$A_{(K)} = 31.6 \text{ Bq/g}$$

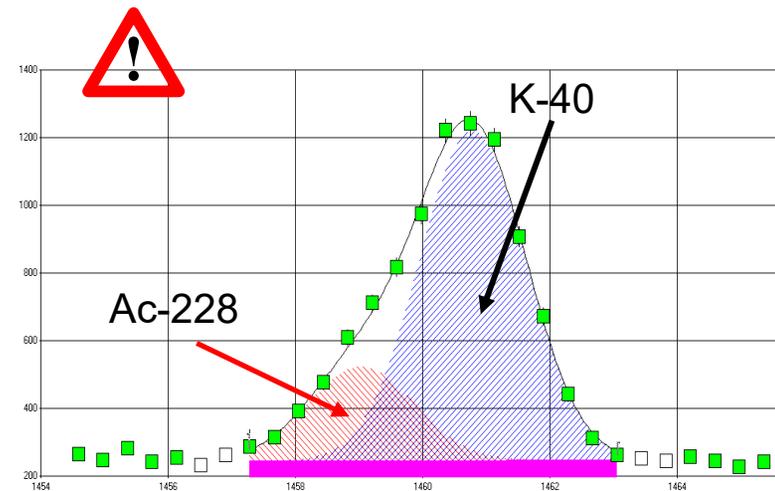
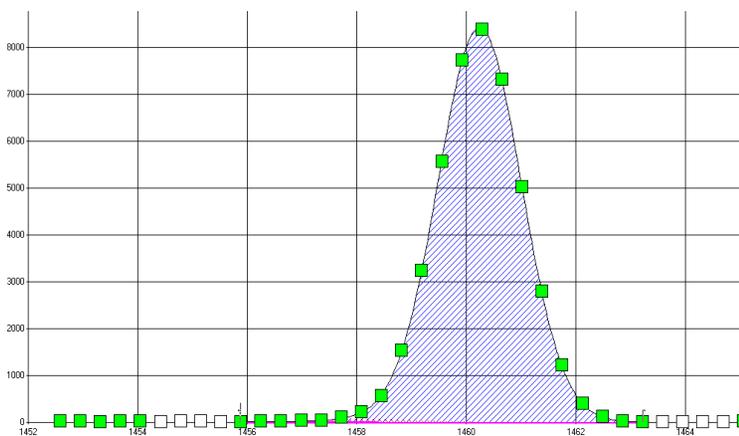
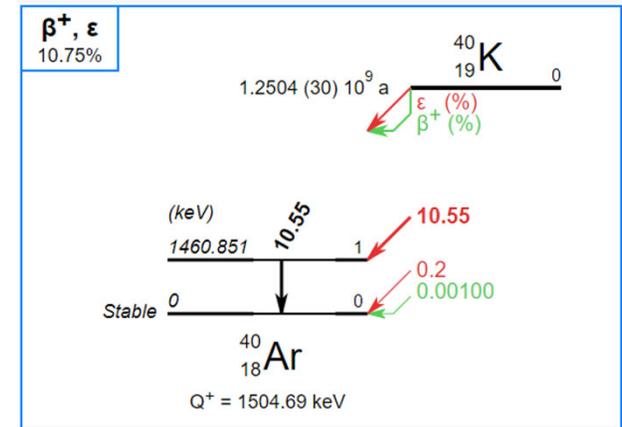
Hauptquelle des Ar in der Atmosphäre

1460.82 keV / 10.55%

Untergrund beeinflusst NWG stark

Ac-228: 1459.131 keV / 0.87%

Probe enthält Th-232: Peak nicht zur Formkalibrierung verwenden





Messstrategie

Messplatz

- Abstand zu Baumaterialien (Raummitte)
- Wenig kosmische Strahlung (tiefe Lage / Myon-Gate Detektor)
- Schwankungen des Rn-Untergrunds minimieren (Spülung durch verdampfendes LN2)

Messgeometrie

- Radondicht
- Kein Totvolumen
- BEGe- oder LEGe-Detektoren (broad energy / low energy)
- Flache Form, Durchmesser \approx zum Detektordurchmesser
- Messung mit Distanzer verringert Summationslinien und kollimiert
- Gute Modellierung der Matrix

Vergleichsmessungen

- Radiochemische Bestimmung der Uranwerte



Radondichte Messgeometrie



Kein Totvolumen in Behälter und Folie

Verformung des Behälters durch Vakuumieren berücksichtigen

Bodenproben retendieren Rn teilweise

Rad. Gleichgewicht mit Ra-226 nach $\max. 7 \times T_{1/2}(\text{Rn-222}) = 27 \text{ T.}$



Auswerteprozedur optimieren

Viele Peaks, Multipletts korrekt auflösen

- Präzise Energie- und Formkalibration des Detektors
- Peaksuche nach Halbwertsbreite und nicht nach Kanälen
- Schmales ROI Kontinuum
- Mit Gauss-Fit arbeiten und nicht mit Integration von Kanälen
- Sorgfältiger Peak-Fit aller Peaks, Multipletts auflösen
- Kaskadenkorrektur

Nuklidbibliothek

- Nicht in der Probe enthaltene Nuklide aus Bibliothek entfernen
- Enthält interferierende Linien (z.B. Ac-228 @ 1000.68, 1459.131 keV)
- Starke, aber ungeeignete Linien nicht nur «nicht berücksichtigen», sondern aus der Bibliothek entfernen, sie würden sonst immer noch die statistische Resultatunsicherheit verbessern (z.B. U-235 bei 143.767 keV)
- $T_{1/2}$ kurzlebiger Nuklide := $T_{1/2}$ des langlebigen Mutternuklids



Hilfreiches

Gammaspektrometrische Bestimmung der Aktivitäten natürlicher Radionuklide,
U.-K. Schkade, A. Heckel, H. Wershofen, Bundesamt für Strahlenschutz,
Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Juni 2018, ISSN 1865-8725

http://www.bmu.de/fileadmin/Daten_BMU/Download_PDF/Strahlenschutz/strlsch_messungen_gamma_natrad_bf.pdf

⇒ Mehr Information zur U-235 Zerfallsreihe, Liste der Gammalinien nach Energie, Zerfallsreihe und Störnukliden.



Details Analysensequenz

(Genie2000 / APEX)

1. Peak-Suche – VMS Standard Peak-Suche

Parameter für VMS Standard Peaksuche

Peaksuche Startkanal: Empfindlichkeit der Peaksuche :

Peaksuche Endkanal: Empfindlichkeit für Gauss-Form :

Maximale Anzahl von Iterationen :

FWHM basierende Zurückweisg. Verh. für FWHM-Zurückweisg.:

Fitte Einzellinien Zeige ROI Signifikanztest

Benutze feste FWHM Bericht erstellen

OK Abbruch Hilfe Ausführen

Aktuelle Schritte

- Peak-Suche - VMS Standard Peak-Suc
- Peak-Suche - 2te Ableitung
- Peak-Fläche - Summe/Nicht-Lin. LSQ F
- Interaktiver Peak Fit - Standard
- Flächenkorrektur - Std. Ug. Abzug
- Effizienzkorrektur - Standard
- Nuklid- Identifikation - vorläufige NID
- Nuklid- Identifikation - NID mit Interf. Ko
- Nachweisgrenzen - Currie NWG
- NID Nachbehandlung - LACE
- NID Nachbehandlung - Skriptmodul

FWHM-basierte Peaksuche

Präzise Energie- und Formkalibration erforderlich!

Löst Multipletts besser auf

«Non-Peaks» mit abweichender FWHM werden unterdrückt

2. Peak-Suche – 2te Ableitung

Peak-Suche mit 2. Ableitung - Einstellung

Suchbereich

Startkanal: Endkanal:

Signifikanzschwelle

Toleranz: FWHM

Energie FWHM

Resultate anhängen Bericht erstellen

OK Abbruch Hilfe Ausführen

Die zweite Peaksuche findet ggf. zusätzliche Peaks die bei der Standardpeaksuche nicht gefunden wurden und fügt diese hinzu



Details Analysensequenz

3. Peak-Fläche – Summe / nicht linearer LSQ Fit

Schmales Kontinuum
(beim interaktiven Peak-Fit
ggf. individuell sogar auf 1
Kanal reduzieren)

KEIN Einzellinien-Fit

FWHM-basierender Gaussfit
(Peakform kann vom
Spektrum abweichen, die
Fläche ist jedoch korrekt)



Details Analysensequenz

4. Interaktiver Peak Fit - Standard

Filtereinstellungen

Peakbereichs Filter

- Keine Filter
- Energie: 0 keV
- Nuklid:
- Chi-Quadrat: 0
- FW/Verhältnis: 0
- Multipletts

Darstellungsskalierung: Linear

ROIs im VKA-Fenster zeigen

Nuklidbibliothek:

OK Abbruch Hilfe Ausführen

Falls schwache Peaks nicht gefunden wurden (vgl. die Linienaktivitäten im Bericht), die Region im interaktiven Peak-Fit manuell via Filter > Energie > ... keV ansteuern

5. Flächenkorrektur – Std- Ug. Abzug

Einstellungen für Standarduntergrundabzug

Untergrundabzug

- Ja Unterg. Datei: Wählen...
- Ben. gespeicherten Untergrund

Toleranz: 1.00 FWHM

Energie FWHM

95% Signifikanztest

Bericht erstellen

OK Abbruch Hilfe Ausführen

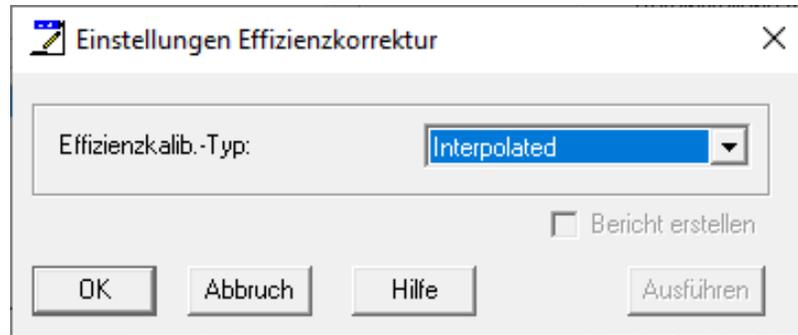
Aktuellen Untergrund wählen

Bei grossen Wasserproben einen Untergrund mit kompletter Geometrie aufnehmen



Details Analysensequenz

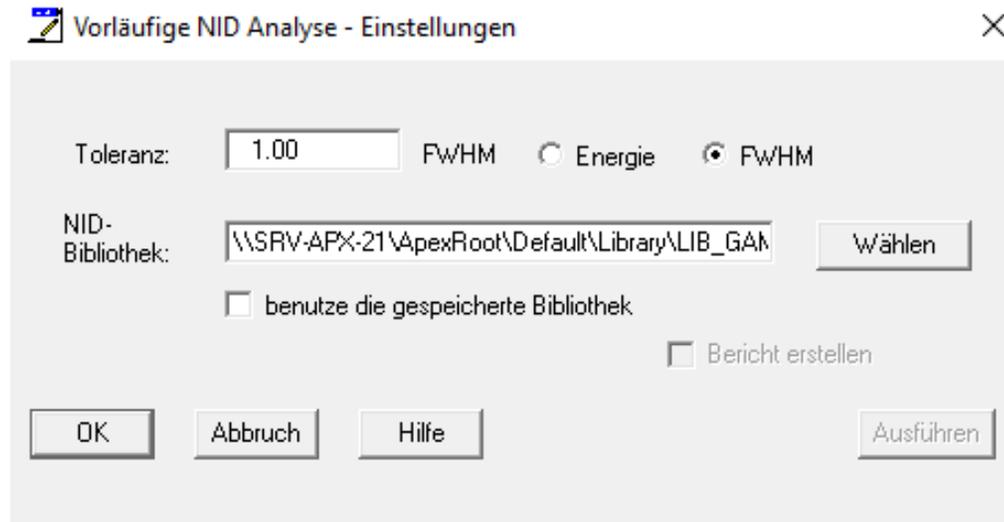
6. Effizienzkorrektur – Standard



Interpolierte Effizienzkalibration durchführen

- Viele Energiestützpunkte verwenden, speziell bei tiefen keV bis klar über das Effizienzmaximum
- Unsicherheit kann nur bei interpolierter Effizienzkalibration für jede Gammaenergie korrekt berechnet werden

7. Nuklid-Identifikation – vorläufige NID



Die Nuklidbibliothek für vorläufige NID sollte nur zusätzliche Nuklide enthalten, die nicht bereits in der definitiven Nuklidbibliothek enthalten sind



Details Analysensequenz

8. Nuklid-Identifikation – NID mit Interf. Korrektur

NID mit Interferenzkorrektur - Einstellungen

NID Bereich
Startkanal: 15 Endkanal: 65535

Nuklidbibliothek: \\SRV-APX-21\ApexRoot\Default\Data\NLB Wählen...

benutze die gespeicherte Bibliothek
 NWG-Test durchführen Zerfall während der Messung nicht korrigieren

Toleranz: 1.00 FWHM
 Energie FWHM

Schwelle für NID-Index: 0.30
NWG Vertrauensfaktor: 5.00 %

Kaskadenkorrektur
Koinzidenz-bibliothek: \\SRV-APX-21\ApexRoot\Default\Data\coi_lib.clt Wählen...

Geometrie-Datei: Wählen...

Kaskadenkorrektur durchführen Verwende gespeicherte Geometrie-Daten
 Ben. ISOCS/LABSOCS Gesamteffizienzen Bericht erstellen

OK Abbruch Hilfe Ausführen

Nuklidbibliothek mit empfohlenen Linien verwenden.

Nicht in der Probe enthaltene Nuklide aus der Bibliothek entfernen, ebenso starke Linien die nicht ausgewertet werden sollen (damit sie nicht unnötig die Nachweisgrenze des effektiven Resultats senken)



Details Analysensequenz

9. Nachweisgrenzen – Currie NWG

The screenshot shows a dialog box titled 'Einstellungen Nachweisgrenze (NWG)'. It contains several input fields and checkboxes. The 'Vertrauensfaktor' is set to 5.00%. There are checkboxes for 'Benutze variable ROI-Breiten' (unchecked), 'Benutze variable NWG-Konstanten' (unchecked), and 'Kaskadenkorrektur durchführen' (unchecked). The 'Kaskadenkorrektur' section includes fields for 'Koinzidenzbibliothek' (set to '\\SRV-APX-21\ApexRoot\Default\Data\coi_lib.clt') and 'Geometrie-editor-Datei'. There are 'Wählen...' buttons for both. At the bottom, there are 'OK', 'Abbruch', 'Hilfe', and 'Ausführen' buttons, along with a 'Bericht erstellen' checkbox.

10. NID Nachbehandlung - LACE

The screenshot shows a dialog box titled 'LACE Analyseinstellungen'. It contains two checkboxes: 'Zeige Ergebnisse' (checked) and 'Bericht erstellen' (unchecked). At the bottom, there are 'OK' and 'Abbruch' buttons.

LACE zeigt bei Genie 3.4
leider nicht wirklich
brauchbare Resultate zur
Linienkonsistenz



Danke für die Aufmerksamkeit!



Die Präsentation wird an die Teilnehmenden des Workshops verteilt und enthält auch zusätzliche Infos zu einer angepassten Analysensequenz