

**Der radiochemische Isotopengenerator  $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$** INHALTSVERZEICHNIS**A: Theoretischer Teil**

	Seite
1. Einführung	2
2. Mathematische Formulierung der Kinetik	3
3. Nukleare Charakteristiken des Paares $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$	5
4. Trennung des Bariums vom Cäsium	6
5. Bestimmung der Halbwertszeit von $^{137\text{m}}\text{Ba}$	6
6. Szintillationszählung von $\gamma$ -Strahlern	7
6.1. Prinzip der Methode	7
6.2. Allgemeine Messanordnung	8
6.3. Der NaI(Tl)-Szintillationskristall	8
6.4. Entstehung von Szintillationen	9
6.5. Messanordnung Präparat/Detektor	11
6.6. Wahl der Messanordnung	12

**B: Experimenteller Teil**

7. Herstellung eines $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ Isotopengenerators	14
8. Bestimmung der Halbwertszeit von $^{137\text{m}}\text{Ba}$	15
9. Einige Fragen für das Protokoll	16
10. Literatur	17

## A: Theoretischer Teil

### 1. Einführung

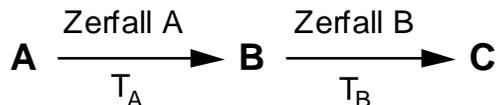
Im Bereich der natürlichen Radioelemente und deren Spaltprodukte bestehen radioaktive Familien bzw. Zerfallsketten. Unter diesen lassen sich Nuklidpaare finden, die in radiochemischer Hinsicht besonders interessant sind. Es handelt sich um Systeme, bei welchen das Mutternuklid A viel längerlebig ist als das Tochter-nuklid B. Durch eine chemische Trennung kann B isoliert und für ein Experimente verwendet werden. Nach der Trennung wird es durch Zerfall von A neu gebildet. Wenn das System der Nuklide A und B chemisch so konzipiert ist, daß die Trennung leicht wiederholt werden kann, liegt ein Radionuklidgenerator vor. Dieser liefert ein kurzlebige Nuklid mit einer Ergiebigkeit, die nur langsam mit der Halbwertszeit  $T_A$  des Mutternuklids A abnimmt. Die Generatoren dieser Art werden in der Fachsprache "isotope cows" genannt. Sie liefern an Ort und Stelle und auf einfachste Weise Radionuklide, die wegen ihrer kurzen Halbwertszeit nicht von einem Radioisotopen-Lieferzentrum bezogen werden könnten. Kurzlebige Radioisotope werden für Untersuchungen an Tieren und besonders an Menschen wegen der geringen Strahlenbelastung sehr geschätzt. Aber auch für technische Traceruntersuchungen kann ihre kurze Halbwertszeit von Vorteil sein, indem sie es erlauben, ein gleiches System wiederholt zu markieren.

Wir wollen die Voraussetzungen etwas näher betrachten, die ein Radionuklidpaar erfüllen soll, um auf das erwähnte praktische Interesse zu stoßen. Es soll also eine genetische Beziehung zwischen A und B bestehen, wobei die Halbwertszeit von A mindestens einige Tage und diejenige von B mindestens einige Minuten betragen sollte. Ferner soll das Nuklid C, das durch den Zerfall von B entsteht, stabil sein. Wenn die genannten Bedingungen erfüllt sind, bildet sich zwischen den Nukliden A und B ein transientes Gleichgewicht. Es handelt sich um einen stationären Zustand, in welchem das Nuklid A mit seiner eigenen Halbwertszeit  $T_A$  zerfällt, und B scheinbar mit der gleichen Halbwertszeit  $T_A$  (und nicht etwa  $T_B$ ) abklingt, wobei die Zerfallsraten von A und B in einem konstanten Verhältnis zueinander stehen. Dies rührt daher, daß die Atomkerne von B wohl mit der Halbwertszeit  $T_B$  zerfallen, aber durch den Zerfall der Kerne A laufend nachgebildet werden. Wird nun eine chemische Trennung von A und B vorgenommen, werden zwei Fraktionen  $F_A$  und  $F_B$  erhalten, die hinsichtlich ihrer Radioaktivität folgende Merkmale aufweisen:

Im Präparat  $F_A$ , in welchem unmittelbar nach der Trennung nur die Aktivität von A nachweisbar ist, wird das Nuklid B nachgebildet, bis das ursprüngliche laufende Gleichgewicht wieder hergestellt ist. Das Präparat  $F_B$  enthält das isolierte Nuklid B, das mit seiner eigentlichen Halbwertszeit  $T_B$  abklingt.

## 2. Mathematische Formulierung der Kinetik

Zwischen den Nukliden A, B und C besteht folgender Zusammenhang:



Ein typisches Beispiel ist der Zerfall von  $^{137}\text{Cs}$ , der über eine metastabile Zwischenstufe zum stabilen  $^{137}\text{Ba}$  führt:



Das Nuklid B wird einerseits aus A gebildet und zerfällt andererseits in das Nuklid C:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_A \cdot N_A - \lambda_B \cdot N_B \quad (1)$$

Dabei bedeuten  $N_A$  und  $N_B$  die Anzahl Atome der Nuklide A und B,  $\lambda_A$  und  $\lambda_B$  die Zerfallskonstanten. Die Gl. (1) hat folgende allgemeine Lösung:

$$A_B = A_A \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \left( 1 - e^{-(\lambda_B - \lambda_A)t} \right) \quad (2)$$

mit den Aktivitäten  $A_A = \lambda_A \cdot N_A$  und  $A_B = \lambda_B \cdot N_B$ .

Im Fall  $\lambda_B > \lambda_A$  stellt sich nach einer gewissen Zeit ein Gleichgewicht ein. Wenn der Exponentialterm in Gl. (2) weitgehend verschwunden ist, ist das Verhältnis der Aktivitäten von A und B konstant:

$$\frac{A_A}{A_B} = \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \quad (3)$$

Die Aktivität des Tochternuklids ist größer als jene des Mutternuklids. Das erscheint

auf den ersten Blick widersinnig. Wie kann die Aktivität eines Folgeprodukts jene des Edukts im Gleichgewicht übersteigen? Dabei ist aber zu berücksichtigen, daß die Tochterkerne vornehmlich zu einer Zeit entstanden, als die Zahl der Mutterkerne gegenüber der Gegenwart erhöht war. Es ist zu beachten, daß nur das Verhältnis der Aktivitäten konstant ist, nicht aber die Einzelaktivitäten. Die beiden Nuklide zerfallen parallel. Man bezeichnet das Gleichgewicht daher als "transient" oder "laufend".

Geht man von reinem Nuklid A zum Zeitpunkt  $t=0$  aus, so wächst die Aktivität von B bis zu einem Maximum schnell an. Dann nimmt sie langsam ab bevor sich das transiente Gleichgewicht einstellt. Für die Reaktionskette



werden in Fig. 1 die Aktivitäten als Funktion der Zeit wiedergegeben. Das transiente Gleichgewicht kommt graphisch durch die Parallelität der Geraden für  $t > 10$  d zum Ausdruck.

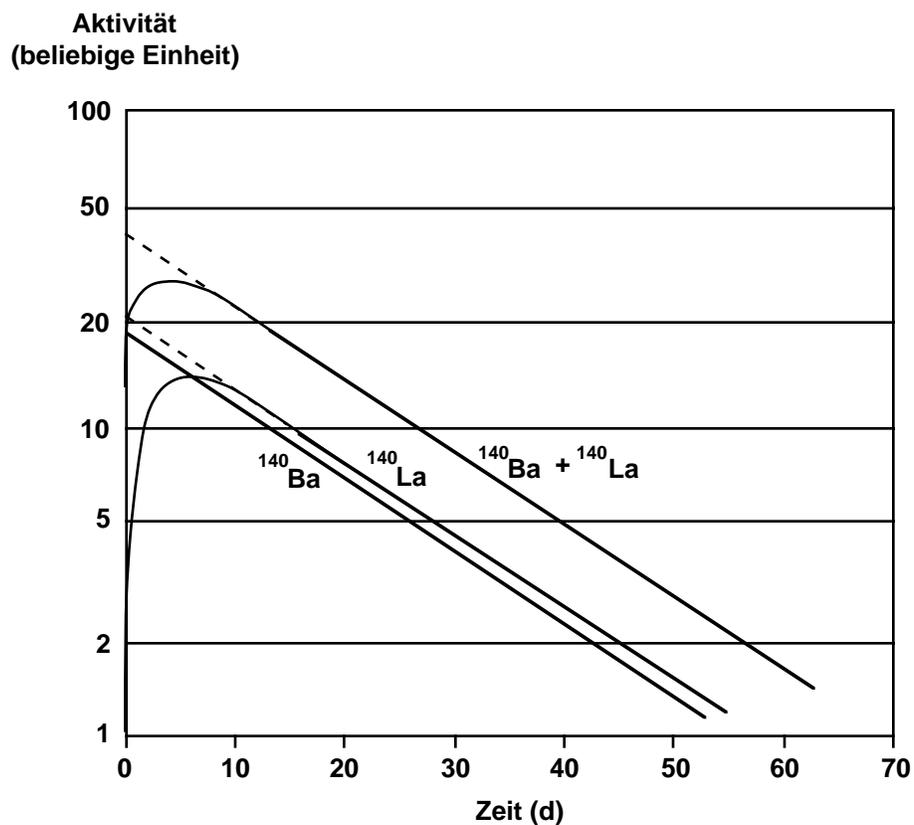


Fig. 1: Zeitlicher Verlauf der Aktivitäten von  ${}^{140}\text{Ba}$  und  ${}^{140}\text{La}$  in einer Quelle mit anfänglich reinem  ${}^{140}\text{Ba}$ .

Wenn die Aktivität des Tochternuklids ihr Maximum erreicht, sind die Aktivitäten von Mutter und Tochter gleich. Wird Gl. (2) nach der Zeit differenziert und die Ableitung null gesetzt, so ergibt sich für die Zeit  $t_{(\max)}$ :

$$t_{(\max)} = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_B}{\lambda_A}\right)}{\lambda_B - \lambda_A} \quad (4)$$

Durch Einsetzen dieses Wertes in Gl. (2) erhält man die Beziehung:

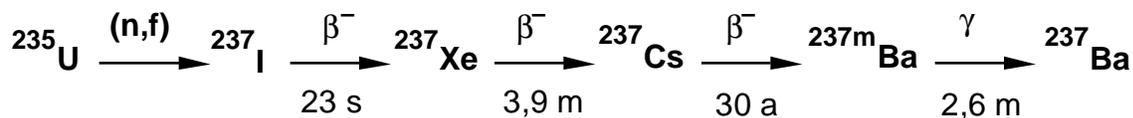
$$A_B = A_A \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \left(1 - e^{-\ln\left(\frac{\lambda_B}{\lambda_A}\right)}\right) = A_A \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \left(1 - \frac{\lambda_A}{\lambda_B}\right) = A_A \quad (5)$$

Falls  $\lambda_B \gg \lambda_A$ , kann in den Summen  $\lambda_A$  gegen  $\lambda_B$  vernachlässigt werden. Gemäß Gl. (3) sind die Aktivitäten im Gleichgewicht gleich. Die Aktivität der Tochter hängt im Gleichgewicht nur von den Eigenschaften der Mutter ab. Man bezeichnet dieses Gleichgewicht als säkular.

In der Praxis kann eine Isotopenkuh nach je zwei bis fünf Halbwertszeiten des Tochternuklids "abgemolken" werden.

### 3. Nukleare Charakteristiken des Paares $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$

$^{137}\text{Cs}$  und  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  entstehen bei der Kernspaltung des Urans als Mitglieder der Filiationskette:



Die Charakteristiken der von  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  emittierten Strahlungen zur Wahl der Meßbedingungen können dem Zerfallsschema (Fig. 2) entnommen werden.  $^{137}\text{Cs}$  ist ein reiner  $\beta^-$ -Strahler mit zwei Zerfallsenergien, die in MeV unmittelbar neben der relativen Zerfallshäufigkeit vermerkt sind. Der Isomerübergang erfolgt zwischen  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  (m = metastabil) und  $^{137}\text{Ba}$  unter Emission eines Photons von 0,662 MeV. Durch Verwendung eines  $\gamma$ -Szintillationsdetektors bei gleichzeitiger Abschirmung der  $\beta^-$ -Strahlung des  $^{137}\text{Cs}$  ist es also leicht möglich, das  $^{137\text{m}}\text{Ba}$

selektiv zu erfassen.

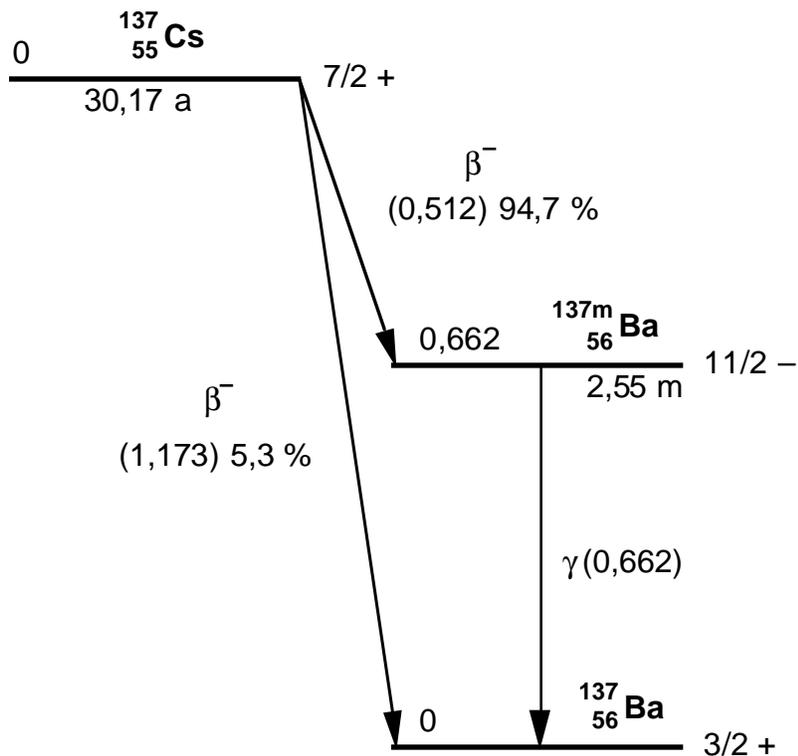


Fig. 2: Zerfallsschema des Nuklidpaares  $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$

#### 4. Trennung des Bariums vom Cäsium

Die Trennmethode beruht auf der Fixierung des Cäsiums an einer Säule gepackt mit Dowex 50-Kationenaustauscherharz und auf der Extraktion des Bariums als Komplex mit einer Lösung von Komplexon III (Ethylendiamintetraessigsäure, in der Form ihres Dinatriumsalzes). Das Verfahren wurde durch Hayes und Butler [7] beschrieben. Es zeigt sich, daß es ohne Schwierigkeiten möglich ist, 10 bis 20 Extraktionen durchzuführen, bevor das Cäsium in der Elutionslösung erscheint. Die Komplexonkonzentration und der pH-Wert der Extraktionslösung sind von besonderer Bedeutung. Letzterer ist wichtig, weil die Protonen mit den Metallionen bei der Bildung von verschiedenen stark protonierten EDTA-Komplexionen in Konkurrenz treten und somit die Ionengleichgewichte wesentlich beeinflussen.

#### 5. Bestimmung der Halbwertszeit von $^{137\text{m}}\text{Ba}$

Eine einfache Methode besteht darin, die Aktivität der Quelle in Funktion der Zeit zu bestimmen. Wenn das Präparat nicht zu schwach und isotopenrein ist, wird nach der Durchführung von Zählverlustkorrekturen und dem Abzug des Nulleffektes eine Exponentialfunktion erhalten. Trägt man die Aktivität logarithmisch gegen die Zeit

auf, erhält man eine Gerade, aus deren Steigung man die Halbwertszeit berechnen kann. Aus praktischen Gründen ist es bei der Verfolgung einer kurzlebigen Radioaktivität von Vorteil, die Messungen mit gleichen Meßzeiten automatisch auszuführen. Bei der Anpassung einer Exponentialfunktion an die Meßdaten ist jeder Meßpunkt mit seiner reziproken Standardabweichung zu gewichten, um die Präzisionsabnahme der Messungen infolge des Abklingens zu berücksichtigen.

## 6. Szintillationszählung von $\gamma$ -Strahlern

### 6.1. Prinzip der Methode

Ein Szintillationsdetektor besteht aus einem NaI-Einkristall, der mit Thalliumatomen dotiert ist. Wenn ionisierende Strahlen in den Kristall eindringen, erzeugen sie Lichtblitze, die durch eine Photomultiplerröhre (PM-Röhre) (siehe Fig. 3)) registriert werden können. Für die lumineszenten Eigenschaften des Kristalls sind die Thalliumatome verantwortlich. Der Kristall und die PM-Röhre sind gegen äußere Lichteinwirkung lichtdicht abgeschlossen. Die Impulse der PM-Röhre werden durch das angeschlossene elektronische Gerät verstärkt, nach ihrer Größe sortiert und gezählt.

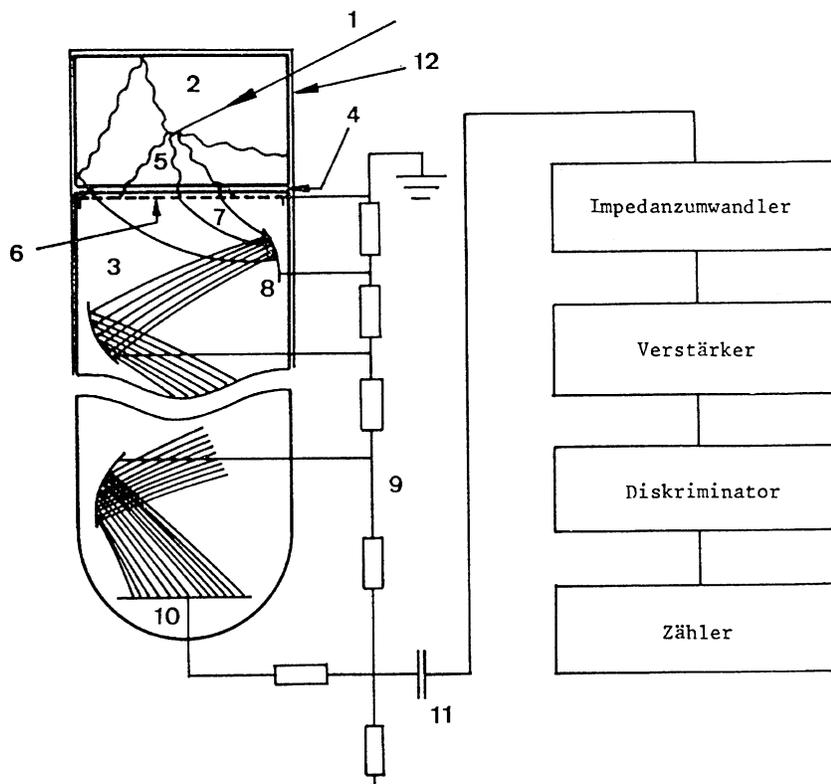


Fig. 3: Schematische Darstellung einer Szintillationszählapparatur.

## 6.2. Allgemeine Messanordnung

Die Versuchsanordnung ist in Fig. 3 schematisch dargestellt. Ein Photon (1) erzeugt im Szintillationskristall (2), der mit der PM-Röhre (3) durch die dünne Schicht (4) aus Silikonöl optisch gekoppelt ist, Szintillationen von 10 bis 1000 Photonen (5), deren Wellenlänge im nahen UV und im sichtbaren Teil des Spektrums liegt. Ein Teil der Photonen, die auf die Photokathode (6) auftreffen, lösen Photoelektronen (7) aus. Diese Elektronen werden im elektrischen Feld, das zwischen den Dynoden (8) herrscht, beschleunigt und schlagen aus diesen Sekundärelektronen heraus, die sich von Dynode zu Dynode exponentiell vermehren. Die PM-Röhren enthalten üblicherweise 7 bis 15 Dynoden, zwischen welchen ein Feld von 100 bis 200 Volt pro Stufe mittels eines Netzes von Widerständen (9) aufrechterhalten wird.

Der Vervielfachungsfaktor pro Stufe liegt zwischen 3 und 5, sodaß die gesamte Signalverstärkung den Wert  $10^5$  bis  $10^8$  erreicht. Die Elektronenpakete erzeugen an der Anode (10) einen kurzzeitigen Spannungsabfall, der über den Trennkondensator (11) als Spannungsimpuls an die angeschlossene Elektronik zur Weiterverarbeitung übertragen wird.

## 6.3. Der NaI(Tl)-Szintillationskristall

Für die Szintillationsmessung der elektromagnetischen Strahlung hoher Energie (Photonen von einigen keV bis einigen MeV) werden aus folgenden Gründen meistens Thallium-aktivierte Natriumjodid-Einkristalle [NaI(Tl)] verwendet:

- a) Die ziemlich große Dichte des Materials, und die hohe Kernladungszahl des Jods führen zu einer relativ großen Wechselwirkung zwischen der  $\gamma$ -Strahlung und dem Szintillationskristall.
- b) Durch Dotierung mit Thallium mit 0,13 mol-% Thallium(I)-Ionen werden im Kristall Gitterstörstellen geschaffen, die als Leuchtzentren wirken und über welche 10 % bis 15 % der im Kristall abgegebenen Energie als Fluoreszenzlicht abgestrahlt wird.
- c) Die Abklingzeit  $\theta$  der Fluoreszenz beträgt 0,23 ms, was für einen anorganischen Szintillator relativ kurz ist und dadurch hohe Zählraten ermöglicht.

## 6.4. Entstehung von Szintillationen

Drei Typen von Vorgängen sind an der Bildung der Szintillationen beteiligt:

- a) Primärwechselwirkung eines Photons mit dem Szintillationskristall. Die gesamte Energie des Photons oder nur ein Teil davon wird über die Mechanismen des Photoeffekts oder Compton-Effekts auf ein Elektron des Szintillatormaterials übertragen.
- b) Bremsen des Elektrons im Szintillatormaterial; Abgabe der Elektronenenergie an den Szintillator unter Erzeugung von Ionisation und Anregung.
- c) Ausbreitung als Wärme und Abstrahlung als Fluoreszenzlicht der vom Elektron an den Szintillatorkristall abgegebenen Energie.

Das Zusammenwirken dieser Prozesse schafft recht komplizierte Verhältnisse, von denen man eine gründliche theoretische Vorstellung für die Praxis der Szintillationsspektrometrie besitzen sollte. Für die Integralzählung der  $\gamma$ -Strahler ist dies jedoch nicht erforderlich. Die Wechselwirkung der  $\gamma$ -Strahlung mit Materie ist in der Unterlage P20 ausführlich beschrieben. Hier wird nur kurz darauf eingegangen.

### 6.4.1. Wechselwirkung der $\gamma$ -Strahlung mit Materie

Die Primärwechselwirkung eines eindringenden Photons mit dem NaI-Kristalls erfolgt in der Form von 3 Effekten, dem Photoeffekt, dem Comptoneffekt und dem Paarbildungseffekt, der hier von nur untergeordneter Bedeutung ist und nicht in Betracht gezogen wird (vgl. P20). Beim Photoeffekt wird praktisch die gesamte Energie des Photons auf ein inneres Elektron der K-Schale in 80% und der L-Schale in 20% der Fälle eines Jodatoms des NaI-Kristalls übertragen. Beim Comptoneffekt handelt es sich um eine unelastische Kollision zwischen dem Photon und einem quasi freien Elektron aus einer äußeren Schale eines Jodatoms. Ein Teil der Energie  $E_0$  des Photons wird auf das Elektron übertragen, und es entsteht gleichzeitig ein neues Photon der Energie  $E$ . Der Anteil  $(E_0 - E)$  der Energie, die an das Elektron abgegeben wird, hängt von  $E_0$  und von den Kollisionsparametern ab, und kann jeden Wert zwischen 0 und einem Maximalwert  $E_{e,max} = E_0(2a/(2a+1))$  annehmen, wobei  $a = E_0/m_0c^2$  die Energie des Primärphotons ist. Während beim Comptoneffekt die Wechselwirkung zwischen Photon und Materie von der atomaren Zusammensetzung der letzteren weitgehend unabhängig ist, wächst der Photoeffekt mit der

vierten bis fünften Potenz der Kernladungszahl der Atome. In dieser Beziehung kommt den Jodatomen des NaI-Kristalls eine große Bedeutung zu.

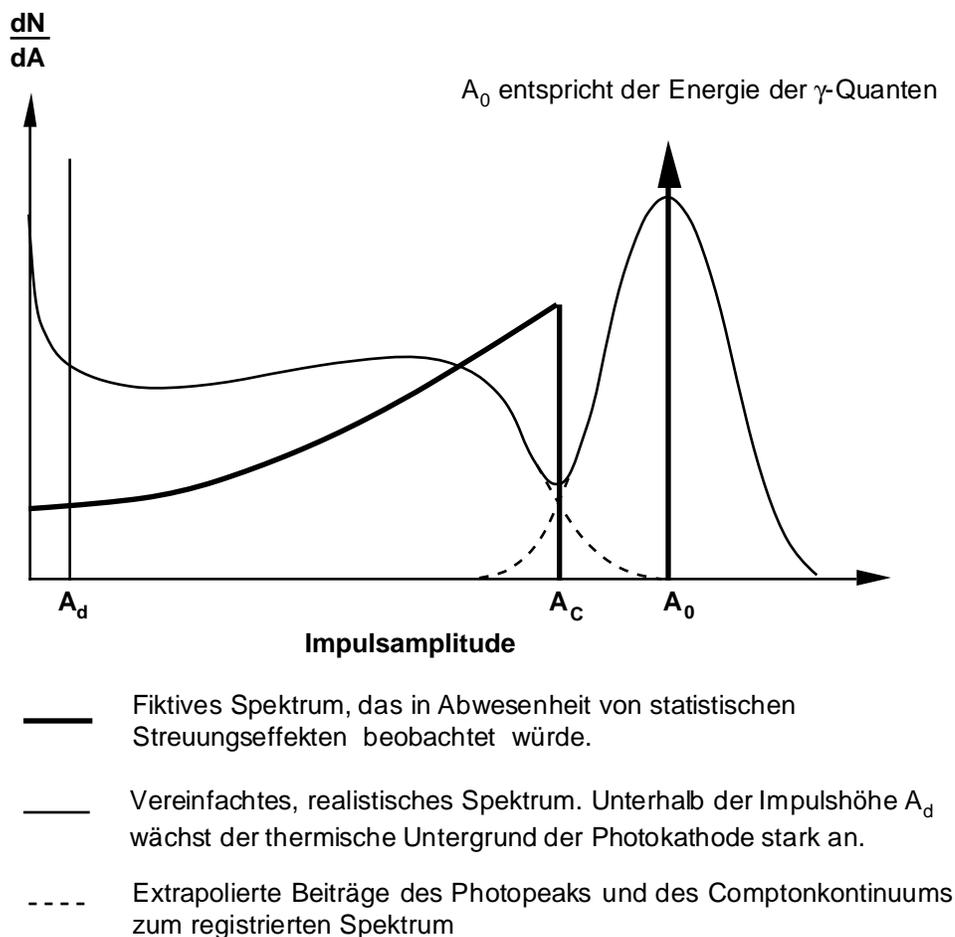


Fig.4: Schematische Darstellung eines  $\gamma$ -Spektrums

In Fig. 4 wird die Entstehung des Impulshöhen-Spektrums erläutert. Die dick ausgezogene Kurve zeigt ein fiktives Spektrum der Impulsamplituden, die ohne statistische Linienverbreiterungen zu erwarten wären. Die Wechselwirkungen mit totaler Absorption der Energie im Szintillationskristall führt zu Impulsen der Höhe  $A_0$ . Sie werden vor allem durch den Photoeffekt erzeugt, können aber auch durch Comptonkollision mit anschließender Absorption der neugebildeten Photonen durch Photoeffekt zustandekommen. Beide Prozesse treten praktisch gleichzeitig auf und summieren ihre Effekte in einem einzigen Impuls. Im fiktiven Spektrum würde das zu einer  $\delta$ -Funktion bei  $A_0$  führen. Das kontinuierliche Comptonkontinuum hätte eine scharfe Begrenzung bei der Amplitude  $A_C$ , der sogenannten Comptonkante, die der Energie  $E_{e,max}$  entspricht.

In Wirklichkeit fallen die Amplituden der beobachteten Impulse nicht derart scharf aus. Durch Linienverbreiterungen verschwinden die Diskontinuitäten. Dies ist im

wesentlichen auf zwei Ursachen zurückzuführen: Einerseits sind die erörterten Effekte beträchtlichen statistischen Schwankungen unterworfen. Andererseits treten wegen der endlichen Dimension des Szintillationskristalls Energieverluste auf, die zu einem Überschuß an Impulsen kleinerer Energien führen. Schließlich wird ein reelles Spektrum auch noch durch die große Zahl sehr kleiner Impulse charakterisiert, die von den Elektronen thermischen Ursprungs aus der Photokathode der PM-Röhre herrühren. Wenn das Spektrum zwei oder mehrere  $\gamma$ -Linien aufweist, überlagern sich die Effekte zu einem entsprechend komplexen Impulshöhenspektrum. Für die einfache Integralzählung ergibt sich kein prinzipieller Unterschied. Bei zwei oder mehreren Nukliden können die Einzelbeiträge allerdings nur durch  $\gamma$ -Spektrometrie getrennt ermittelt werden.

### 6.5. Messanordnung Präparat/Detektor

Für die  $\gamma$ -Spektrometrie und die  $\gamma$ -Integralzählung fällt die Gestaltung der Meßsonde etwas unterschiedlich aus. Im ersten Fall wünscht man vor allem ein hohes Auflösungsvermögen. Das erfordert die Verwendung von verhältnismässig großen, kompakten Kristallen. Bei der integralen  $\gamma$ -Zählung hingegen wird in erster Linie eine möglichst hohe Messausbeute angestrebt. Es genügt, wenn ein Photon nur einen Teil seiner Energie im Szintillationskristall abgibt, solange es nachgewiesen und gezählt wird. Dementsprechend wird der Diskriminierpegel etwa bei  $A_D$  in Fig. 4 eingestellt, um alle Impulse oberhalb des Untergrundes zu erfassen.

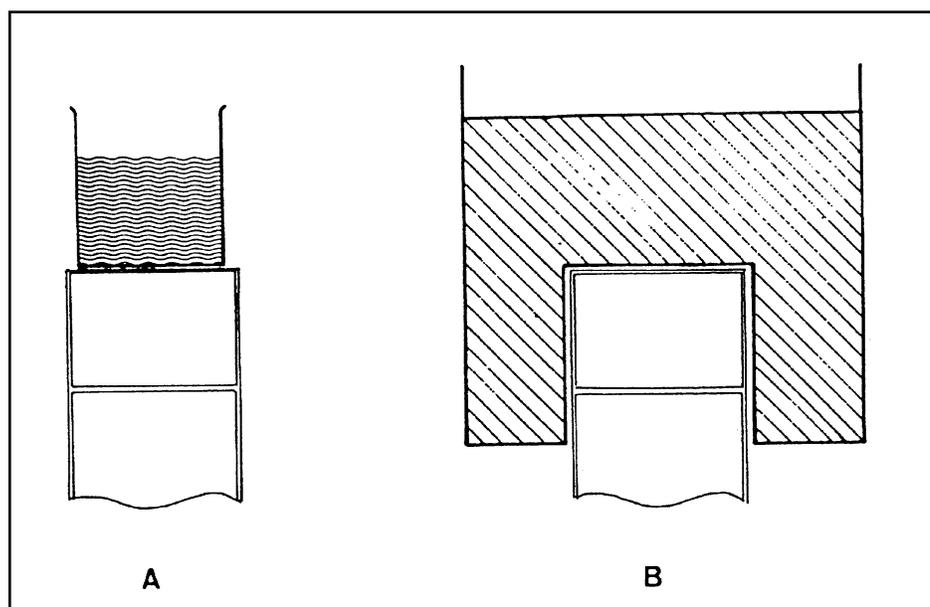


Fig. 5A und 5B: Messanordnung für große Präparate.

Zwei Kristalltypen werden für die Integralzählung am meisten verwendet: massive Zylinder wie in Fig. 5, deren Höhe halb so groß bis gleich groß ist wie der Durchmesser, und Bohrlochkristalle, Fig. 6, die axial eine zylindrische Vertiefung zur Aufnahme der Präparate aufweisen. Massive Kristalle werden für relativ ausgedehnte Präparate wie Filterscheiben, Chromatographiesäulen und größere Flüssigkeitsmengen eingesetzt. Die Messausbeute hängt stark von der Geometrie der Messanordnung ab. Es ist daher stets für eine streng reproduzierbare Lage und Zusammensetzung des Präparates zu sorgen, falls Vergleichswerte zwischen verschiedenen Messungen erhalten werden sollen. Eine Korrektur der Messausbeute durch Kalibration ist schwierig und aufwendig. Für große Präparate eignet sich die Anordnung nach Fig. 5B. Für radiochemische Messungen ist der Bohrlochkristall besonders geeignet. Die Messausbeute ist hoch und die Messgeometrie sehr gut reproduzierbar.

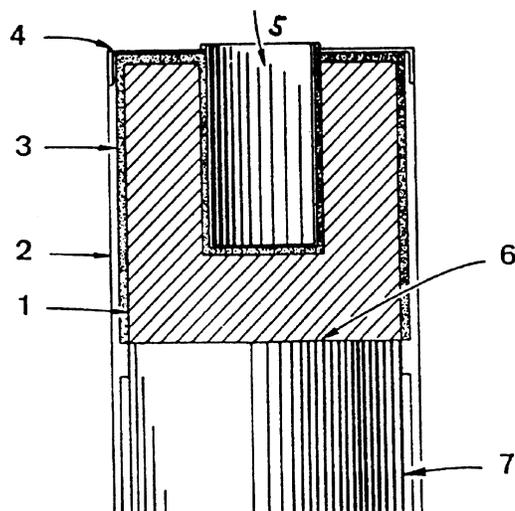


Fig. 6: Bohrlochkristall-Messsonde.

Zu Fig. 6: (1) Kristall, (2) Aluminiummantel, (3) Reflektor aus Aluminiumoxid, (4) Aluminiumdeckel, 0,4 mm Dicke, (5) Bohrloch, Aluminiumwände, 0,25 mm Dicke, (6) optische Kopplungsschicht (Silikonöl), (7) Photomultiplier-Röhre.

## 6.6. Wahl der Messanordnung

Für die Wahl bzw. die Beurteilung einer Messanordnung hinsichtlich der Messausbeute ist folgendes zu beachten: Die Messausbeute einer punktförmigen Quelle kann summarisch durch einen Gesamtausbeutefaktor ausgedrückt werden, der als Produkt von partiellen Ausbeutefaktoren beschrieben werden kann (Gl. (7)):

$$F_{\text{tot}} = \frac{\omega}{4\pi} \cdot F_A \cdot F_W \quad (7)$$

wobei  $\omega$  den Raumwinkel darstellt, der von der Quelle aus gesehen vom Detektor beansprucht wird.  $F_A$  ist ein zusammengesetzter Faktor. Er berücksichtigt die Absorption der Strahlung im Präparat selbst und zwischen Präparat und empfindlichem Volumen des Detektors, sowie die Streuung der Strahlung im Präparat und an der Materie der umliegenden Gegenstände (Ständer, Abschirmung, usw.).  $F_W$  gibt die Wahrscheinlichkeit an, daß ein Photon, dessen Bahn durch das aktive Volumen des Detektors verläuft, nachgewiesen wird.  $F_A$  und  $F_W$  hängen von der Richtung der Photonenbahn innerhalb des wirksamen Raumwinkels ab und sind über alle Richtungen im betreffenden Winkel zu mitteln.  $F_W$  wird für eine gegebene Bahn durch die Gl. (8) gegeben,

$$F_W = 1 - e^{-kd} \quad (8)$$

wobei  $k$  der totale lineare Absorptionskoeffizient der  $\gamma$ -Strahlung im Detektormaterial und  $d$  die Dicke der Detektorschicht für die betrachtete Bahn darstellen. Für eine 2 cm dicke Schicht beträgt  $F_W$  in Natriumjodid 97,5 % für Photonen von 0,1 MeV und 36 % für Photonen von 1 MeV. Für die Messausbeute im Fall eines reellen Präparates ist  $F_{\text{tot}}$  für jeden Punkt nach Gl. (7) zu berechnen und über das ganze Präparatevolumen zu mitteln. Alles in allem kann je nach der Energie der Strahlung mit einer Meßausbeute von 20 % bis 80 % für eine kleine Probe in einem Bohrlochkristall von 5 x 5 cm gerechnet werden.

Die Zusammensetzung der Proben spielt keine sehr große Rolle. Im Bereich sehr kleiner Energien der Primärstrahlung ( $E < 20$  keV) sinkt die Messausbeute wegen der Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in den Präparaten und zwischen diesen und dem aktiven Volumen des Detektors sowie wegen der reduzierten Nachweisempfindlichkeit des Detektors für Szintillationen, die aus weniger als 5 bis 10 Photonen bestehen. Die zu messende Strahlung wird außerdem in Richtung abnehmender Energien immer mehr durch den Untergrund der thermischen Elektronen überdeckt, was dem erfaßten Energiespektrum eine natürliche Grenze auf der Seite der kleinen Energien setzt.

Die Meßapparatur ist stets mit einer angemessenen Abschirmung der Meß-Sonde gegen Fremdstrahlungsquellen zu schützen. Baumaterialien, insbesondere Beton, enthalten immer Spuren von Radioelementen, die den Nullwert eines Szintillationsdetektors beträchtlich erhöhen. Für hohe Anforderungen ist eine allseitige Abschirmung aus radioaktivitätsarmem Blei von 7 bis 10 cm Dicke von Vorteil. In den meisten Fällen genügt eine frontale und seitliche Abschirmung des Szintillator-

kristalles mit 3 cm bis 5 cm Blei. Der Nulleffekt bewegt sich dann in der Größenordnung von 200 Impulsen pro Minute für einen Kristall von 5 x 5 cm bei einem Diskriminierniveau von 100 keV (bezogen auf die Energie der Primärstrahlung).

Die meisten Radioisotope emittieren neben und  $\gamma$ -Strahlung auch  $\beta$ -Teilchen. Weil die Detektorhülle sehr dünn und für  $\beta$ -Strahlen nicht allzu kleiner Energie recht durchlässig ist, kann auch ein Teil der  $\beta$ -Teilchen registriert werden, was zu unsaubereren Meßbedingungen führt. In solchen Fällen ist es vorteilhaft, die  $\beta$ -Strahlung durch das Einlegen passender Absorber zwischen Präparat und Detektor abzuschirmen.

---

## B: Experimenteller Teil

### 7. Herstellung eines $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$ Isotopengenerators

#### 7.1. Material

Chromatographiersäule mit Hahn, 19 cm Länge (effektiv auffüllbarer Teil) und 12 mm Innendurchmesser.

#### 7.2. Chemikalien

Lösung A : 0,05 %-ige wässrige Komplexon III-Lösung, pH 11,0 bis 11,5 mit einer verdünnten KOH-Lösung eingestellt.

Lösung B : 10 %-ige wässrige KCl-Lösung, zur Konversion des Dowex-Kationenaustauschers in die Kalium-Form.

Lösung C : wässrige  $^{137}\text{Cs}/^{137\text{m}}\text{Ba}$  -Tracerlösung

#### 7.3. Vorbereitung der Säule

##### Gießen:

Die Säule wird mit einem sehr kleinen Pfropfen Glaswatte versehen und mit einer 60 mm hohen Schicht von Dowex-Kationenaustauscherharz, suspendiert in destilliertem Wasser, aufgefüllt. Es ist darauf zu achten, daß eine homogene, blasenfreie Füllung erhalten wird. Das Harz muß ständig von einer kleinen Flüssigkeitsschicht überdeckt sein.

Konversion in die Kalium-Form:

30 ml der KCl-Lösung werden auf die Säule gegeben. Anschließend wird mit destilliertem Wasser gewaschen, bis die austropfende Flüssigkeit bei Prüfung mit Universal-Indikatorpapier neutral reagiert.

Tracer-Zugabe:

Der Hahn wird so lange geöffnet, bis der Meniskus der überstehenden Flüssigkeitsschicht unmittelbar über der Harzschicht steht. Nun werden 500 µl Tracerlösung mit einer Oxfordpipette vorsichtig auf die Säule gegeben. Den Meniskus wieder unmittelbar über die Harzschicht bringen. Anschließend wird die Säule mit 10 ml Komplexon-Lösung gewaschen. Das Eluat wird in einem 50 ml Erlenmeyerkolben aufgefangen und zur Seite gestellt. Den Hahn schließen, wenn die Flüssigkeitsschicht über dem Austauscherelement noch 2-3 mm beträgt. Die Säule steht dann nach ca. 15 Minuten für die  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ -Extraktion bereit.

**8. Bestimmung der Halbwertszeit von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$** 

4,0 ml Komplexon-Lösung werden in die Ionenaustauschersäule eingefüllt, und der Hahn ganz geöffnet. Das Eluat wird in einem Radioaktivitätsmeßglas aufgefangen und die Extraktion unterbrochen, wenn der Flüssigkeitsspiegel die Harzoberfläche erreicht. Die radioaktive Probe wird so schnell wie möglich ausgemessen. Als Meßdauer wird eine Zeit von 30 Sekunden pro Meßpunkt gewählt. Gleichzeitig mit Beginn der ersten Messung wird eine Stoppuhr gestartet. Die Meßreihe wird 25 Minuten fortgesetzt, indem man zu jeder vollen Minute eine neue Messung startet. Das Vorgehen dient der Kontrolle des Eluates auf eventuell ausgewaschenes  $^{137}\text{Cs}$ , was die Zählrate auf einem konstanten Wert halten würde.

Trägt man den Logarithmus der Anzahl Impulse gegen die Zeit auf, liegen die Punkte etwa auf einer Geraden. Der Nulleffekt der Zählapparatur wurde bereits gemessen und sollte bei allen Werten abgezogen werden. Die Auswertung kann mit dem Programm "Cricket Graph" erfolgen. Die Halbwertszeit des  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  lässt sich aus der Steigung der Geraden berechnen.

**8.1. Bemerkungen zur Radioaktivitätsmessung**

Für die durch den Zerfall von  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  bedingten Zeitkorrekturen wurde jeweils als Zeitpunkt einer Messung die Anfangszeit der betreffenden Messung gewählt. Dies ist zulässig, da alle Meßzeiten (einzelne Meßpunkte) gleich lang gewählt wurden.

Es ist indessen zu beachten, daß im allgemeinen eine weitere Zeitkorrektur vorzunehmen ist, wenn die Dauer  $\Delta t$  einer Messung nicht viel kleiner ist, als die Halbwertszeit des verwendeten Nuklides. Man kann leicht zeigen, daß dann als Zeitpunkt einer solchen Messung die Zeit  $t_k$  gilt, die durch die folgende Beziehung gegeben wird (9):

$$t_k = \frac{t_1 + t_2}{2} - \frac{1}{6} (\Delta t)^2 \lambda \pm \dots \quad (9)$$

mit  $t_1, t_2$  Anfangs- und Endzeit der Messung  
 $\lambda$  Zerfallskonstante des Radionuklides

## 9. Einige Fragen für das Protokoll

zu 4. Warum lassen sich  $\text{Ba}^{2+}$ -Ionen von  $\text{Cs}^+$ -Ionen auf einer Kationentauschersäule mit Komplexon III-Lösung quantitativ trennen?

zu 7.3. Nach der Zugabe der  $^{137}\text{Cs}$ -Aktivität wird die Chromatographiesäule zuerst mit 10 ml Komplexon III-Lösung eluiert. Warum ist dieses Eluat für Traceruntersuchungen ungeeignet?

zu 7.3. Warum wartet man 15 Minuten zwischen den  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ -Elutionen?

## 10. Literatur

- [1] R.D.Evans, The atomic nucleus, Mc Graw-Hill 1955.
- [2] Schwarzenbach und Flaschka, Die komplexometrische Titration, Enke (1965).
- [3] F.C.Nachod, ed., Ion exchange, Academic Press (1949).
- [4] O.Samuelson, Ion exchangers in analytical chemistry, Wiley (1952).
- [5] J.Inczédy, Analytische Anwendungen von Ionenaustauschern, Akadémiai Kiado, Budapest (1964).
- [6] B.Trémillon, Les séparations par les résines échangeuses d'ions, GauthierVillars (1965).
- [7] R.L.Hayes and W.R.Butler, Growth and decay of radionuclides, a demonstration, J.Chem.Educ. 37 (1960)590.
- [8] M.W.Greene,R.F.Doering,M.Hillman, Milking systems: Status of the art, Isotopes Radiat.Technol. 1 (1963/64)152.
- [9] M.Brucer, 118 medical radioisotope cows, Isotopes Radiat.Technol. 3(1965/66)1.
- [10] T.Kawashima, A barium-137m generator, Int.J.applied Radiat. Isotopes 19 (1968) 816.