

# Stabilitätsuntersuchungen an mikroprozessorgesteuerten ITRA-Schnellanalysegeräten unter besonderer Beachtung des Übertragungsverhaltens kommerzieller Szintillationssonden

V. Kliem

VEB Mansfeld-Kombinat „Wilhelm Pieck“, Forschungsinstitut für NE-Metalle, Lessingstraße 41, DDR-9200 Freiberg

*Es werden in geschlossener Form Stabilitätsuntersuchungen der kernphysikalischen Gerätehardware (Nuklidanregung, Szintillationsdetektion, Diskrimination, Meßwertaufnahme und -verarbeitung, Peakstabilisierung) vorgestellt. Breiteren Raum nimmt dabei das Detektorsystem ein, das in Form des Sekundäremissionsvervielfachers immer noch dominierend als schnelle Detektoren für mobile Schnellanalysegeräte eingesetzt wird. Nachweisbare und bisher unterschiedlich interpretierte Effekte der Gamma-Spektrometrie wie Drift und Impulsratensprünge sowie Unstetigkeiten bei der Gehaltsbestimmung werden untersucht.*

*In this paper some studies of the hardware applied in nuclear analytical methods (i.e. nuclide excitation, scintillation detection, discrimination, data processing and peak stabilization) are described, esp. the detector system. Emphasis is laid on measurements with secondary-emission multipliers which play an important role as particle detectors in rapid analyzers. Further studies have been made on detectable effects of gamma spectrometry, such as drift and pulse-rate discontinuities in the determination of concentrations.*

## Keywords

computer codes; electronic equipment; fluorescence spectroscopy; line widths; radiation detectors; scintillation counters; stability

## 1. Einleitung

Transportable Schnellanalysengeräte auf Basis der Röntgenfluoreszenzanalyse mit Nuklidanregung werden in der DDR in zunehmendem Maße für Aufgaben der Gehaltsbestimmung in Geologie, Bergbau und Hüttenwesen eingesetzt. Dabei handelt es sich zum einen um Vertreter der Geräteserie PA (PA = Physikalischer Analysator) der SDAG Wismut zur vorrangigen Bestimmung von Sn, W und Ag (PAZ, PAAG [1]). Zum anderen sind Analysengeräte der Serie ITRA (ITRA = Isotopentechnischer Röntgenfluoreszenzanalysator) des FNE Freiberg im Einsatz, die – in verschiedenen Modifikationen und Bauformen – bisher zur Elementgehaltsbestimmung von Cu, Zn, Nb, Sn und Ta sowie Fe und As entwickelt wurden [2]. Beide Typen unterscheiden sich im Hinblick auf gerätetechnische Ausstattung und realisierbare Analyseverfahren, besitzen jedoch Gemeinsamkeiten bezüglich Anregung, Detektion und Gerätestabilisierung.

Generell von Bedeutung für den Einsatz o. g. mobiler RFA-Geräte ist die Abschätzung der zu erwartenden Analysefehler in ihrer Gesamtheit, da diese bekanntermaßen Sicherheit der gewonnenen Erkenntnisse als auch ökonomische Parameter beeinflussen. Die von den Anwendern gestellten Forderungen nach schnellen, richtigen und reproduzierbaren Ergebnissen bereits „vor Ort“ bzw. in den Betriebslaboratorien zwingen zur Untersuchung und zur Reduzierung dieser Unsicherheiten. Dabei wird jedoch im Gegensatz zu umfangreichen Beschreibungen der zufälligen und systematischen Fehler, z. B. in [3], dem Stabilitätsverhalten der kernphysikalischen Gerätehardware (Röntgenfluoreszenzanregung, Detektion, Impulsverstärkung und -analyse, Meßwerterfassung und -verarbeitung) kaum Raum eingeräumt. Auf Grundlage des in

[4] vorgestellten rechnergesteuerten und verstärkungsstabilisierten Schnellanalysators ITRA-084 und vorgenommener meßtechnischer Untersuchungen sollen vergleichbare Aussagen getroffen werden. Weiterhin sollen die dem Gerätebetreiber bzw. Analytiker zumeist bekannten, jedoch nicht eindeutig klassifizierbaren Reproduzierbarkeitsfehler beim Umgang mit Szintillationssonden (Driften, Unstetigkeiten) eingeordnet werden.

## 2. Meßfehler und Stabilität

Die Einordnung der geräteabhängigen Meßfehler (Gerätefehler) in den Gesamtkomplex zeigt nachfolgende Übersicht:

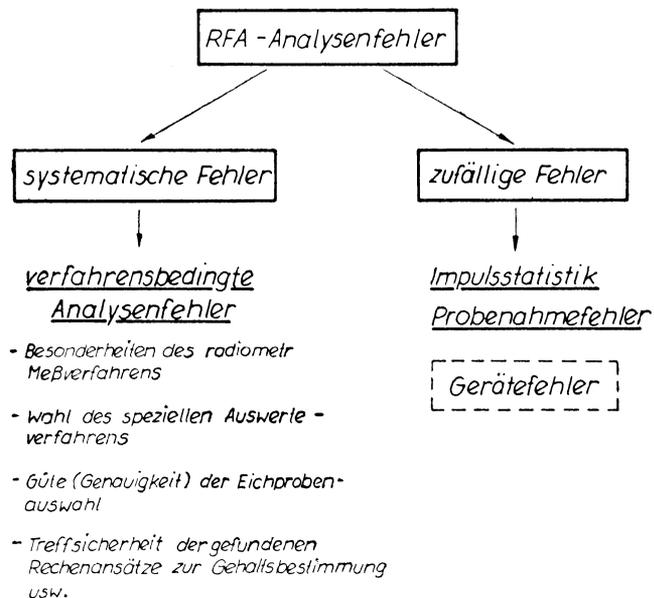


Abb. 1. Übersicht über RFA-Analysefehler

Es wird auf die Literatur verwiesen [3], ebenfalls auf die von George in [5] aufgestellte Methodik der Fehleranalyse am Beispiel einer Zinngehaltsbestimmung. Der Beitrag der Einzelkomponenten zur Gesamtabweichung ist von konkreten Bedingungen abhängig.

Der Gerätefehler wird in erster Linie durch die Stabilität der apparativen Parameter beschrieben. Dabei wird – im Gegensatz zur physikalischen Stabilität – als *technische Stabilität* die Beständigkeit und relative Unveränderlichkeit eines Systems gegenüber Zeit und Umwelt verstanden. Zu den Gerätefehlern gehören

- Detektorinstabilitäten einschließlich Impulsratenunstetigkeiten (reversibel und irreversibel)
- Geräteriften und -schwankungen einschließlich Instabilitäten der Kern- und Auswertelektronik
- Alterungs- und Ermüdungserscheinungen
- stochastische Ausfälle von Teil- bzw. Gesamtfunktionen
- Geometrieänderungen

### 3. Meßproblem, Signalweg und angewandte Regelverfahren

Über den Geräteaufbau und das funktionelle Zusammenwirken der eingesetzten mechanischen und elektronischen Baugruppen des prozessorgesteuerten ITRA-084 wurde in [4] im Detail berichtet. Dabei bedingt die Gerätekonzeption (Nuklidanregung, Kantenfilterdifferenzverfahren) entsprechend verfahrensabhängige Analysenfehler, auf die jedoch hier nicht eingegangen werden soll.

Im Gegensatz zum analogen Verfahren der Verstärkungsregelung der PA-Geräte kommt in der ITRA-084-Serie eine digitale Peakstabilisierungsvariante zum Einsatz, die über diskrete Regelschritte SEV-Verstärkungsänderungen kompensiert. Dabei wirkt die Sondenhochspannung als Stellglied. Langzeitdriften und SEV-Instabilitäten, die sich bei unstabilierten Geräten zwangsläufig als Analysenfehler auswirken müssen und Nachmessungen erforderlich machen, werden wirkungsvoll unterdrückt.

Abb. 2 gibt den Signalweg von der Nuklidanregung der zu untersuchenden Pulverprobe bis zur Meßwertaufnahme/elektrische Meßwertaufbereitung an, des weiteren diejenigen Gerätekomponenten und -parameter, die als Störgrößen im Meßzweig wirksam werden. Instabilitäten der Konzentrationsbestimmung durch die rechnergesteuerte Meßwertverarbeitung einschließlich Gehaltsberechnung sind ausgeschlossen.

Die von der Anregungsquelle emittierte Primärstrahlung durchläuft nach Wechselwirkung mit dem Probenmaterial als charakteristische Röntgenstrahlung + Streustrahlung die verfahrenstypischen Kanten-

filter. Diese werden schrittmotorgesteuert über eine drehbare Filterscheibe im Meßkopf eingefahren und über dem Szintillationsdetektor positioniert. Eine Kollimierung kann sich verfahrensbedingt anschließen. Auf die bei Anregung und Filterwechsel möglichen Störkomponenten (abklingende Quellenaktivität, Positionierungsfehler der Kantenfilter, Kantenfilterverzerrungen bei nichtparallelaufender Filterscheibe und mechanischen Getriebebeispiels, temperaturbedingte Meßkopf-Geometrieverschiebungen) wird in Abschnitt 4.1. näher eingegangen. Nach Passieren der abgestimmten Kantenfilter sind durch die einfallenden  $\gamma$ -Quanten über die bekannten Vorgänge in Szintillator und SEV elektrische Impulse am Sondenausgang abgreifbar (Abschnitt 4.2.).

Die vom Sondenausgang dem nachfolgenden Hauptverstärker zugeführte und verstärkte Impulsfolge gelangt auf den Hauptanalysator. Über extern herangeführte (temperatur- und zeitvariante) Pegel- und Kanalbreitenspannungen lassen sich seriell 4 elektronische Kanäle bilden, wobei die einzelnen Pegel und Kanalbreiten für den Analysiervorgang wiederum mit entsprechenden Zusatzfehlern bei Bildung der Diskriminatorschwellen wirksam werden. Die gleichen Verhältnisse gelten für die beiden Einkanalanalysatoren, die als Stabilisierungskanäle wirken. Über diese wird auch hier nur eine störgrößenbehaftete Regelspannung zur Fixierung der Sondenhochspannung erzeugt. Beachtet werden muß weiterhin die Stabilität des Zeitnormals zur Ableitung der Meßzeit, da dessen Drift als zufälliger Gerätefehler wirksam wird (Abschnitt 4.3.).

### 4. Stabilität des Schnellanalysators

#### 4.1. Anregungsbedingungen

Abb. 3 zeigt die Zentralgeometrie des Meßkopfes, wie sie in den bis zum jetzigen Zeitpunkt produzierten prozessorgesteuerten ITRA-Geräten angewandt wurde.

Als Nuklidquellen kommen je nach Verfahren umschlossene Strahlungsquellen  $^{241}\text{Am}$  und  $^{238}\text{Pu}$  mit Aktivitäten von 370 MBq ... 1,1 GBq sowie Eichquellen  $^{241}\text{Am}$  (ca. 400 kBq) zur Spektrenstabilisierung zum Einsatz. Diese sind mechanisch in der Quellenhalterung fixiert. Aus den Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  beider Nuklide lassen sich über das bekannte exponentielle Abklingverhalten der Aktivität  $A$  die Langzeitdriften der Quellenaktivitäten bestimmen. So ergibt sich z. B. eine 1%ige Abnahme der  $^{238}\text{Pu}$ -Aktivität nach 1,25 Jahren, eine 10%ige Reduzierung nach 13,1 Jahren.

Diese Drift führt zwangsläufig zu zeitvarianten Bestimmungsfehlern der Konzentrationsgehalte. Der Gehaltsfehler, der nach Abarbeitung eines speziellen Rechenansatzes entsteht, wirkt sich dabei insbesondere bei Gleichungsansätzen aus, deren Komponenten nicht über Differenz-

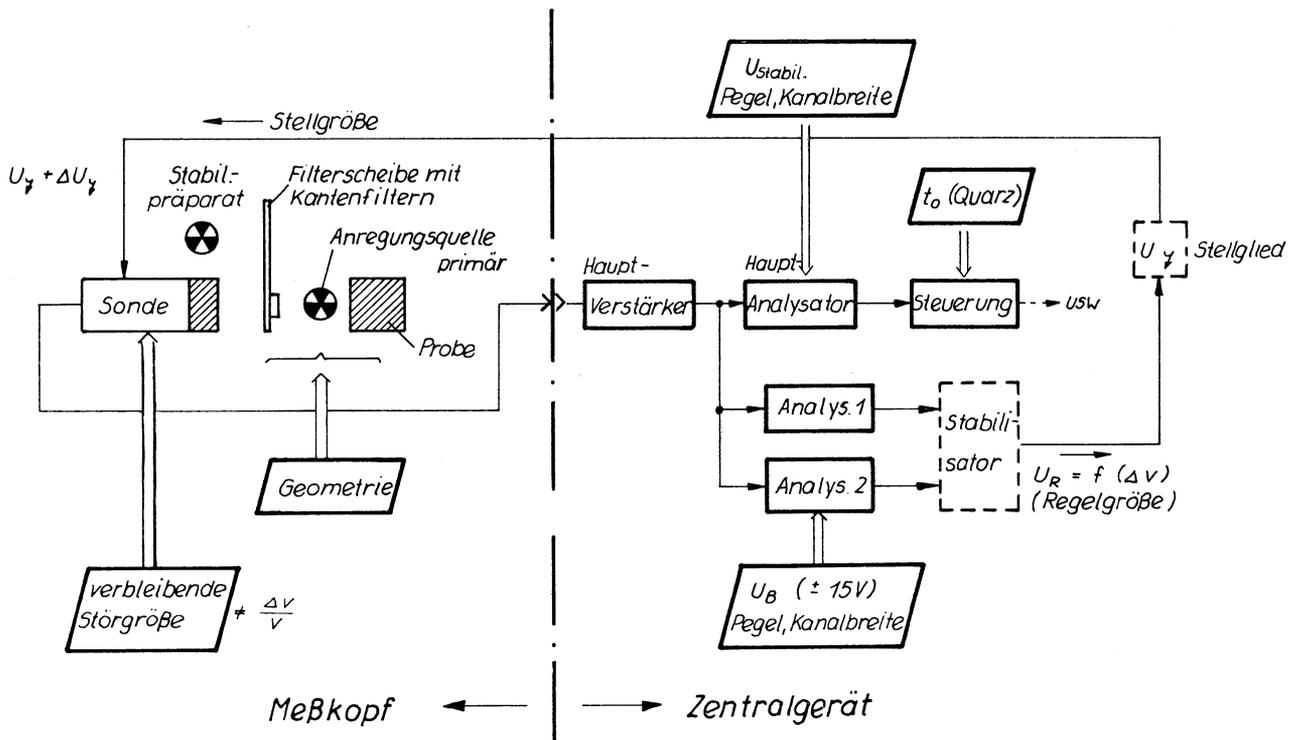


Abb. 2. Störgrößenbehafteter Signalweg im Schnellanalysator

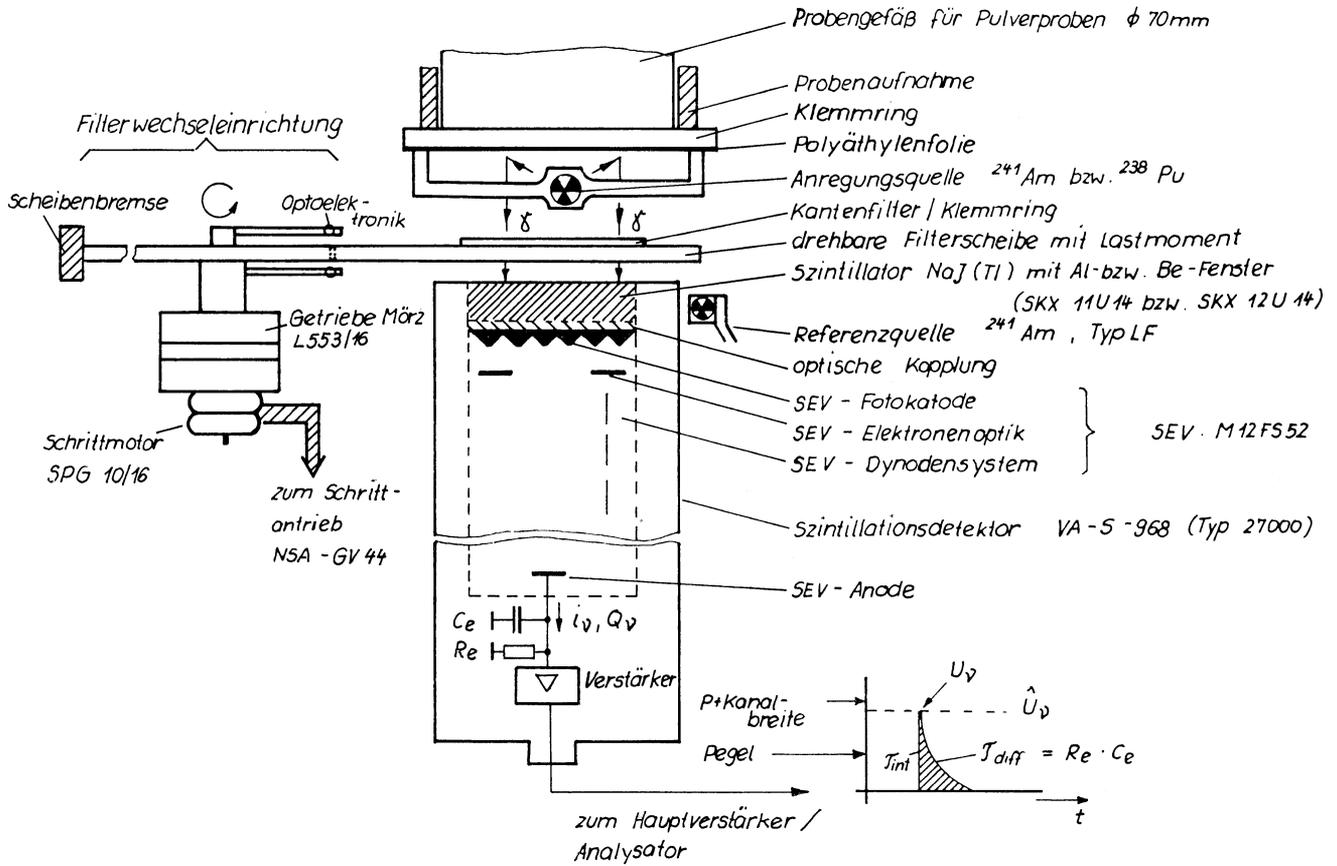


Abb. 3. Meßkopfgeometrie der ITRA-084 Schnellanalysegeräte

bildung miteinander verknüpft sind, z. B.  $I_{13}$  in

$$y = (I_{11} - I_{12}) A_1 + I_{13} \cdot A_2 + A_3 \quad (1)$$

(y: Elementgehalt in %;  $I_{xy}$ : Impulsrate bei Kanal x und Filter y;  $A_n$ : Konstante)

Die beschriebene Aktivitätsabnahme der Anregungsquelle muß durch Nacheichungen kompensiert werden. Aktivitätsänderungen der Referenzquelle sind faktisch ohne Bedeutung für die Spektrenstabilität.

Zur Bestimmung von Meßfehlern auf Grund von Kantenfilterpositionierungsfehlern wurden Langzeituntersuchungen angestellt. Dabei wurden die Impulsraten und ihre Reproduzierbarkeiten bei zyklischem Filterwechsel über ein spezielles Meßprogramm ermittelt. In Abhängigkeit von vorgegebenen Kanal- und Filterpositionen beginnt der Zählvorgang, wenn das eingefahrene Filter über eine Optoelektronik als zutreffend erkannt und seine vorgesehene Lage über dem Szintillator (Deckungsgleichheit) von einem Photopempfänger bestätigt worden ist. Mögliche Störgrößen sind dabei Abweichungen von der Deckungsgleichheit und damit sich ändernde Kantenfilter-Selektionsbedingungen durch:

- a) „schielende“ Photosensibilisatoren
- b) Nachlaufen der Kantenfilterscheibe
- c) unzulässiges Scheibenspiel

Da in den ITRA-084-Meßköpfen auf Grund einer Filterbremse ein Sofort-Stillstand der Kantenfilterscheibe erzwungen wird, beginnt der Zählvorgang immer an gleichen Kantenfilter-Szintillator-Positionen. Die absoluten Positionierungsfehler werden als systematische Fehler in den Eichvorgang des Verfahrens integriert und erscheinen als quasi verfahrensbedingte Analysenfehler. Damit sind zufällige Gerätefehler durch Instabilitäten bei der Probenanregung weitgehend ausgeschlossen.

## 4.2. Detektorstabilität

### 4.2.1. Zum Verstärkungsverhalten nicht stabilisierter Szintillationssonden

Als Meßkopfdetektoren der PA- und ITRA-Geräte werden kommerzielle Szintillationssonden VA-S-968.1 bzw. VA-S-968 (VEB MKD Dresden) eingesetzt, die sich durch die eingesetzten SEV's und damit das erzielbare Auflösungsvermögen unterscheiden. Sowohl Sonden-SEV als auch der nachgeschaltete sehr stabile Sondenvorverstärker liegen

bei beiden Gerätetypen im Verstärkungsregelkreis. Da die Stabilität des SEV die Gerätestabilität dominierend bestimmt, sollen nachfolgend diejenigen Fehlerkomponenten näher vorgestellt werden, die für die  $\gamma$ -Spektrometrie Bedeutung haben. (Aus der Vielzahl von Veröffentlichungen zum Komplex SEV und Szintillationszähler sei auf [6] und die Standardliteratur verwiesen.)

Die nach Abb. 3 auf den Szintillationsdetektor auftreffenden  $\gamma$ -Quanten der Sekundärstrahlung  $\gamma_v$  werden nach den bekannten Mechanismen (Lichtquantenanregung im Szintillator, Quantenüberführung auf die Photokathode des SEV, Photoelektronenemission, Elektronenvervielfachung und -sammlung) an der Anode des SEV als Ladungsimpulse

$$Q_v = e \cdot Z_v \quad (2)$$

wirksam ( $e$  = Elementarladung,  $Z_v$ : Elektronenanzahl an der Anode nach Vervielfältigung). Mit  $Q_v = C_e \cdot U_v$  ergeben sich analysierbare Spannungsimpulse am Detektorausgang von Abb. 3 zu

$$U_v = \frac{C_e}{e} \cdot Z_v \quad (3)$$

( $R_e$ : Arbeitswiderstand,  $C_e$ : wirksame Anodenkapazität,  $\tau_{int}$ : Szintillator- und SEV-abhängige Anstiegszeitkonstante).

Die eingangsenergieabhängige Amplitude eines Einzelimpulses dieser Impulsfolge, der durch Einwirkung eines einzelnen  $\gamma$ -Quants entstehen kann, ergibt sich nach [7] zu

$$\hat{U}_v = \frac{Q_v}{C_e} = \frac{e}{C_e} \cdot Z_v = \frac{e}{C_e} \cdot \varphi \cdot B \cdot k \cdot \epsilon \cdot \eta \cdot \delta^n \quad (4)$$

$\xrightarrow{\text{Szintillator}}$        $\xrightarrow{\text{SEV}}$

Lichtausbeute  $\varphi$  (0-20%)      Lichtleitfaktor (20-80%)      Photonenanzahl  $B$       Wirkungsgrad der Photokathode (0...35%)      Überführungsfaktor zur ersten Dynode (20...100%)      Sekundär-emissionsfaktor bei  $e^-$  (4-4 für Ar17g)

Die in Gleichung (4) von Material und Konstruktion abhängigen Komponenten unterliegen dabei selbst statistischen Gesetzen (statistikbehaftete Einzelvorgänge), in deren Ergebnis die *Impulsfolge*

$$\text{Imp}(t) = \sum_v^{\infty} U_v(t) \quad (5)$$

mit einer Verteilungsfunktion der Amplitude  $\hat{U}_v$  bewertet ist. Sie stellt das Maß für das energetische Auflösungsvermögen des Detektors (Linienverbreiterung) dar (starke Szintillationen: große Photonenzahl  $\sim$  Photoelektronenzahl  $\hat{=}$  Gaußsche Fehlerverteilung; schwache Szintillationen: geringe Photonenzahl  $\hat{=}$  Poissonverteilung). Die Photonenzahl  $k$  (Helligkeit des Szintillatorblitzes) entspricht der absorbierten  $\gamma$ -Energie.

In Gleichung (4) liegt der Schlüssel zum Verständnis der Detektorstabilität. Es wird sichtbar, daß unter den theoretischen Idealbedingungen *nur statistisch wirkender Einzelvorgänge* (temperatur- und zeitstabiles Verhalten der in Gleichung (4) enthaltenen Komponenten)

- 1) nur streng statistikverteilte Impulshöhen
- 2) nur (anregungs-) quellenkorrelierte Impulsraten

am Ausgang der Szintillationssonde auftreten können. Mißt man gemäß Abb. 3 den Anodenstrom  $i_a$  als Summe der spannungsabhängigen Stromstöße  $i_a = \sum_{v=1}^{\infty} i_v = \sum_{v=1}^{\infty} \frac{U_v}{\text{Re}}$  und berechnet den Katodenphotostrom  $i_K$  aus Katodenempfindlichkeit und auffallendem Lichtstrom, so erhält man mit

$$V = V_{SEV} = \frac{i_a}{i_K} \quad (6)$$

konstante und zeitstabile Verstärkungen  $V$  des Detektors.

Im Betrieb zeigen sowohl Szintillatorkristall als auch SEV von o. g. Idealbedingungen stark abweichendes Verhalten. Während im Szintillatorkristall die Lichtausbeute  $\varphi$  (energie- und teilchenartabhängig) temperaturabhängiges Verhalten aufweist (Untersuchungen zur temperaturabhängigen Szintillationsintensität siehe [7]), führen im SEV Schwankungen von  $\epsilon$ ,  $\eta$  und  $\delta$  zu Instabilitäten der Detektorverstärkung. Darauf soll näher eingegangen werden.

zu 1) Impulshöhe (Spektrenlage)

Aus Gleichung (4) wird die Änderung der Ausgangsimpulshöhe bzw. der Verstärkung durch Instabilitäten der Einzelfaktoren sichtbar. Die auftretenden Änderungen sind sowohl reversibel (Ermüdung) als auch irreversibel (Alterung), wobei bestimmte Effekte im SEV noch nicht eindeutig geklärt sind. Die Größe der praktisch nachweisbaren Fehler ist sowohl vom Typ des SEV als auch von einzelnen Exemplaren abhängig [8]. Zeitliche Instabilitäten (einschließlich Alterungs- und Ermüdungserscheinungen) und temperaturabhängige Änderungen der in Gleichung (4) aufgeführten SEV-abhängigen Einflußgrößen führen (zusätzlich zur Statistik) zu o. g. Verstärkungsdriften  $\frac{\Delta V}{V}$  und damit zu *Änderungen der effektiven Ausgangsimpulshöhe am Detektorausgang*, die sich in der praktischen Anwendung als *Spektrerverschiebung* auswirkt.

$$\left( \frac{\Delta V}{V} \right) / \Delta \vartheta = 1 \text{ } ^\circ\text{C} \sim 1 \dots 3\%$$

Dies führt im Analysierbetrieb zu Impulsratenänderungen (Driften, Sprünge) am Ausgang einer nachgeschalteten Auswertelektronik und damit zu u. U. (Arbeits-

punkt!) gravierenden Bestimmungsfehlern. Auch die von *Reiffel* in [9] untersuchten Impulsratenänderungen am Ausgang eines Impulshöhen-diskriminators sind auf SEV-Verstärkungsänderungen zurückzuführen (Abnahme der Quantenausbeute auf Grund von Ermüdungseffekten an der Photoemissionsoberfläche).

zu 2) Impulsrate

*Impulsratenänderungen am Detektorausgang* (bei konstanter Einstrahlung) treten mit hoher Wahrscheinlichkeit nur dann auf, wenn die Korrelation zwischen Quellenaktivität und Photonenbildung bis zum Eingang des SEV gestört ist. (Ein SEV antwortet bei Anregung mit einer diskreten Photonenfolge — verknüpft über den Quantenwirkungsgrad — mit einer adäquaten, diskreten Photoelektronenfolge. Dies führt zu einer Ladungsträgerfolge, die jedoch — s. o. — statistisch verteilt ist.) Dieses Phänomen tritt vorrangig bei irreversiblen Veränderungen im (stark hygroskopischen) NaI-Szintillator auf, wo durch Alterung, Vergiftung durch Verunreinigungen, Bläschenbildung usw. lokale Änderungen der physikalischen Eigenschaften einen Absorbereffekt bewirken. Gleiches ist nachweisbar bei Veränderung der optischen Kopplung zum SEV, z. B. durch Veränderung des Silikonölfilms bzw. Abriß.

4.2.2. Grenzen der statischen Arbeitspunktstabilisierung bei SEV's

In Auswertung der durchgeführten Untersuchungen zum Stabilitätsverhalten von Jalousie- und Boxdynoden-SEV's [10] wurden die Arbeitspunkte der Sonden-SEV M(S) 12 FS 52 neu bestimmt:

Zur Erzielung stabiler Verhältnisse soll der Dynodenquerstrom  $I_q \approx 100 I_A$  betragen, wobei für Boxdynodensysteme  $I_A \approx 10 \dots 100 \mu A$  gilt (verzerrungsfreier Betrieb). Eine Analyse der Verhältnisse in den Szintillationssonden VA-S-968 bzw. VA-S-968.1 [11] ergab, daß mit  $\Sigma R_{\text{Dynode}} \approx 23 \text{ M}\Omega$  und  $U_B = 1000 \text{ V}$  lediglich Querströme von  $I_q = \frac{U_B}{\Sigma R} = 40 \mu A$  fließen können. Damit verändern die Dynoden eingangsimpulsseitig ihre — für stabilen Sondenbetrieb notwendig konstanten — Gleichspannungspotentiale. Weiterhin sind die für Wechsellicht notwendigen Speicherkondensatoren nicht ausreichend dimensioniert, eine Optimierung des Dynodenspannungsteilers bezüglich Signal-Dunkelstromabstand fehlt. Auf Einzelheiten der Neudimensionierung kann nicht eingegangen werden. Abb. 4 zeigt das berechnete Dynodennetzwerk für spektrometrische Anwendungen. Bei einem Querstrom von  $I_q = 1 \text{ mA}$  und den angegebenen Kapazitäten sind Impulsfolgefrequenzen bis ca. 50 kHz verarbeitbar.

Mit der vorgenommenen Netzwerkänderung wurden die von außen auf den SEV wirkenden Dynodentpotentiale stabilisiert, ohne die dem Vervielfachersystem innewohnenden Einflußgrößen auszuschalten, die nach Gleichung (4) wirken. Nachfolgend seien die im Spektrometriebetrieb wichtigsten Verstärkungsinstabilitäten  $\frac{\Delta V}{V}$  und ihre wesentlichen Ursachen zusammengestellt. (Tab. 1)

4.2.3. Realisierte Verstärkungsstabilisierung

Extrem hohe Verstärkungen ( $10^5 \dots 10^7$ ) bei kleinem Eigenrauschen, hohe Ansprechempfindlichkeit bei der  $\gamma$ -Spektrometrie, geringe Abmessungen und Gewicht sowie praktikable Handhabbarkeit sind Eigenschaften, die den SEV als schnellen Detektor auszeichnen. Durch den

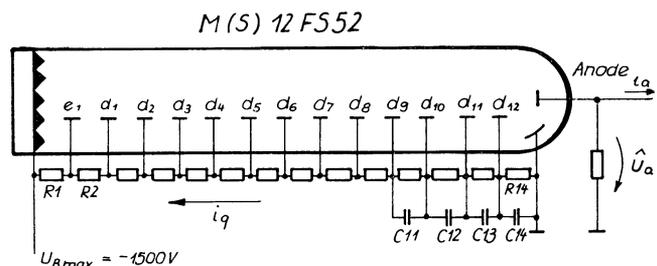


Abb. 4. Dynodennetzwerk für SEV M(S) 12 FS 52 mit statisch stabilisiertem Arbeitspunkt

Tab. 1. SEV-Verstärkungsinstabilitäten  $\frac{\Delta V}{V}$

Verstärkungsänderungen $\frac{\Delta V}{V}$ durch:	wesentliche Ursachen:
① Einlaufverhalten des Anodenstroms $i_a$	• temporäre Veränderungen der Oberflächeneigenschaften der Dynoden
② irreversible zeitabhängige Instabilitäten	• Strukturänderungen des Dynodenmaterials [12]
③ reversible zeitabhängige Instabilitäten	• Schwankungen des Sekundäremissionsfaktors $\delta$ der SEV-Dynoden, zeitabhängige Schwankungen des Überföhrungsfaktors $\eta$
④ Temperaturabhängigkeit	• Temperaturabhängigkeit der SEV-Dynoden (Photoausbeute der Katode praktisch temperaturunabhängig)
⑤ Impulsratenabhängigkeit (teilweise reversibel)	• Ermüdung der Dynoden ( $\delta$ -Abnahme) auf Grund hoher Elektronenstromdichten, intensitätsabhängige Schwankungen des Überföhrungsfaktors $\eta$
⑥ Versorgungsspannungsabhängigkeit $\frac{\Delta V}{V} \approx n \frac{\Delta U_B}{U_B}$	• betriebsspannungsabhängige Steuerung des Anodenstroms (Absaugwirkung)
⑦ Empfindlichkeitsabnahme durch Alterung, z. T. aber auch reversibel	• Abnahme des Quantenwirkungsgrades $\epsilon$ durch Verdampfung des Cs bei CsSb-Katode (mittlere Emission $\approx \frac{10^4 e^-}{\text{cm}^2 \cdot \text{s}}$ )
⑧ Dunkelstromanstieg $i_0$ durch Alterung, z. T. aber auch reversibel	• Thermische Emission der Fotokatode $i_0/\Delta\theta = 10^\circ\text{C} \approx 3 \dots 4$ $i_0/\Delta U_B = 10\% \approx 2$

Einsatz geeigneter Stabilisierungsverfahren zur Kompensation des in 4.2. beschriebenen Verstärkungsverhaltens dominiert der SEV nach wie vor als Detektor für tragbare Schnellanalysegeräte zur Konzentrationsbestimmung von Elementen ab Ordnungszahl  $Z \geq 22$ . Auf die Verfahren und konkreten schaltungstechnischen Umsetzungen der in den PA- und ITRA-Geräten angewandten dynamischen Verstärkungsregelungen wurde in [1] und [4] eingegangen, wobei deren Leistungsfähigkeit nachgewiesen wurde.

### 4.3. Auswertelektronik (Zentralgerät)

#### 4.3.1. Stabilität der kernphysikalischen Gerätekomponente

Nach Betrachtung der Anregungsbedingungen und des Detektorverhaltens soll nun die Auswertelektronik einer ähnlichen kritischen Untersuchung unterworfen werden. In Frage kommen dabei nach Abb. 2 diejenigen kernphysikalischen Baugruppen, die nach dem Hauptverstärker die weitere Impulsanalyse vornehmen bzw. beeinflussen können (Analysator, Steuerung). Weiterhin alle,

die an der Bildung der Regelgröße beteiligt sind (Einkanalanalysatoren, Stabilisator). Driften des Stellgliedes (Hochspannung) werden vom Regelverfahren über die Spektrenverschiebung als Verstärkungsänderung „interpretiert“ und ausgeglichen. Verstärker, Analysator und Steuerung sind Baugruppeneinschübe des Strahlungsmeßgerätes 20046, die Einkanalanalysatoren B 20120 und der Stabilisator noch Baugruppen des Erzeugnissystems „Analysen- und Strahlungsmeßtechnik“ (AS 75), die vom VEB Meßelektronik „Otto Schön“ Dresden für das FNE Freiberg gefertigt wurden. (In diesem Zusammenhang muß man bedauern, daß ein in der DDR-Industrie bewährtes, kerntechnisches Gerätekonzept wie das AS 75-System nicht weiterentwickelt worden ist. Kerntechnische autonome Strahlungsmeßgeräte wie 20026 und 20046 können die umfassenden Vorteile eines elektronisch/konstruktiv überarbeiteten modularen Konzepts — das inzwischen trotz großer Nachfrage auch nicht mehr gefertigt wird — nicht ausgleichen).

#### 4.3.1.1. Hauptanalysator (HA), Einkanalanalysatoren (EA)

Über extern zugeführte Gleichspannungen  $U_{\text{stabil}}$  (HA) bzw. die internen Betriebsspannungen  $\pm 15$  V (EA) werden in jeweils zwei Diskriminatoren untere (Pegel) und obere (Pegel + Kanalbreite) Ansprechschwellen erzeugt. Diese determinieren den elektronischen Kanal zur Impulshöhenanalyse. Sowohl zugeführte Gleichspannungen als auch die effektiv wirksamen Schwellenpotentiale unterliegen Schwankungen bzw. Driften. Diese Kanalinstabilitäten führen zu Intensitätsänderungen der erfaßten Linien (HA) und damit Meßfehlern bzw. ungewollten Auslenkungen der Linien (EA). Folgende Parameter, dessen Wirkungen sich addieren können, waren zu untersuchen:

1. Stabilität der externen Spannungen
2. Konstanz der Diskriminatorschwellen (betriebsspannungs-, temperatur- und zeitabhängig)
3. Rauscheinfluß (siehe 4.3.2.)

Zu 1.)

Als externe Spannungen wirken die stabilisierten Ausgänge  $U_{\text{stabil}}$  eines Doppelnetzteils (ZWG Berlin), mit dessen Stabilitätseigenschaften

$$\left. \frac{\Delta U}{U_{\text{stabil}}} \right|_{\text{max}} \leq 1,05\%$$

bei 10%igen Netzspannungsänderungen und  $\Delta\theta = 10^\circ\text{C}$  sowie gleichen Lastverhältnissen).

Zu 2.)

Nachfolgende Tabelle gibt die laut Herstellerangaben maximal zulässigen Einzel- und Gesamtfehler (worst-case) für Haupt- und Einkanalanalysatoren an.

Tab. 2. Zulässige und gemessene Gesamtfehler für Haupt- und Einkanalanalysatoren

Analysatorfehler	Hauptanalysator (20046)		Einkanalanalysatoren (20120)	
	Pegel	Kanalbreite	Pegel	Kanalbreite
a) bei Abweichung der Netzspannung um $\pm 10\%$	$\pm 5$ mV	$\pm 2$ mV $\pm 2\%$	30 mV	$\pm 25$ mV $\pm 2\%$
b) bei Änderung der Betriebstemperatur um 10 K:	$\pm 10$ mV $\pm 3\%$	$\pm 8$ mV $\pm 3\%$	10 mV	$\pm 10$ mV $\pm 2\%$
c) während einer Betriebszeit von 10 h:	$\pm 5$ mV $\pm 2\%$	$\pm 5$ mV $\pm 2\%$	20 mV	$\pm 10$ mV
d) innerhalb des Analysierbereiches:	—	$\pm 10$ mV $\pm 2\%$	—	—
e) worst-case:	$\pm 20$ mV $\pm 5\%$	$\pm 25$ mV $\pm 9\%$	60 mV	$\pm 45$ mV $\pm 4\%$
f) worst-case (Pegel u. Kanalbreite = 1 V):	50 mV	68 mV	60 mV	98 mV
g) gemessene Werte:	25 mV	35 mV	25 mV	50 mV

Die Schwellenstabilität der Diskriminatoren wurde mittels DVM an den Komparatorausgängen (Schaltkreise A 110) der 20046 bzw. B 20120-Baugruppen gemessen. Dabei werden die Angaben für Maximalabweichungen ( $f$ ) im praktischen Betrieb wesentlich unterschritten. Messungen über eine Zeit von 5 Tagen bei normalen Netzspannungsschwankungen und einer maximalen Temperaturänderung  $\Delta\theta = 12^\circ\text{C}$  erbrachten die unter (g) aufgeführten Gesamtfehler. Für die EA sind dabei die internen Betriebsspannungsschwankungen bereits enthalten. Mit Einbeziehung des unter 1.) beschriebenen Fehlers ergeben sich damit für den elektronischen Meßkanal ( $P = 1\text{ V}$ ,  $K = 1\text{ V}$ ) wirksame Gesamtfehler von  $\leq 30\text{ mV}$  (Pegel) und  $\leq 45\text{ mV}$  (Kanalbreite).

Die mit  $25\text{ mV}$  (Pegel) bzw.  $50\text{ mV}$  (Kanalbreite) meßbaren Gesamtdriften der EA führen zu zeit- und temperaturabhängigen Änderungen der Zählkanäle, die auf den Stabilisator wirken. Verbunden damit sind ungewollte Regelabweichungen (Gitter), die im praktischen Betrieb weitgehend vernachlässigbar sind (Wirkungskompensation).

#### 4.3.1.2. Steuerung

Als Störgröße, welche über die Gerätesteuerung wirksam werden kann, fungiert die Zeitbasis. Im 20046-Gerätesystem wurde ein  $10\text{ kHz}$ -quarzstabiler Grundtakt verwendet, von dem die vorwählbaren Meßzeiten abgeleitet werden. Als Arbeitsfehler der Zeitmessung wird ein Wert von  $\leq 1 \cdot 10^{-4} \pm 10\text{ ms}$  angegeben, der in der Praxis ebenfalls nicht überschritten wird. Auf Dimensionierungsfehler bei der digitalen Impulsaufbereitung des Impulshöhenanalysators (Nichteinhaltung der logischen Signal-/Übergabepegel durch passive Differenzierungen) waren sporadische Impulsratenänderungen zurückzuführen. Fehlfunktionen und Störungen ergaben sich ebenfalls durch ungenügende Abblockung der Stromversorgungsleitungen auf dieser und anderen digitalen Baugruppen. Die Fehler sind inzwischen durch entsprechende Schaltungsänderungen behoben und sollten bei Weiterentwicklungen des Strahlungsmeßgerätes 20046 beachtet werden.

#### 4.3.1.3. Stabilisator

Der Stabilisatoreinschub setzt die über digitale Zählkanäle gebildeten Steuersignale in vorzeichenbehaftete Regelschritte um. Die statistikabhängigen Abweichungen der (stabilisierten) Linien von der Sollage sind im Vergleich zu den analogen Verfahren der PA-Geräte minimiert. Driften sind ausgeschlossen.

#### 4.3.2. Meßparameter und Analysenfehler

Die für ein spezielles Meßverfahren notwendigen Vorarbeiten der Gerätekomplettierung beinhalten nach der Auswahl der Meßsonde, der Wahl der Anregungsquelle und der Kantenfilter (ITRA) die Einstellung des Sondenarbeitspunktes. Hierbei wird in bekannter Weise nach Ermittlung der verstärkungsabhängigen Übertragungskennlinien  $\text{Imp}(t) = f(U_B)$  im Interesse hoher Stabilität ein Arbeitspunkt auf dem Plateau gewählt. Die gewählte Verstärkung fixiert dabei das auszuwertende Spektrum und bestimmt ebenfalls die Lage der Stabilisierungskanäle. Dabei sollte folgendes beachtet werden:

1. Die effektive Rauschgangspannung des Hauptverstärkers verschlechtert die Nachweisempfindlichkeit und damit auch die Selektionsschärfe des Analysators.

Wird z. B. eine effektive Rauschgangspannung des Verstärkers  $\hat{U}_{\text{r,eff}}$  von  $\leq 20\text{ mV}$  (z. B. B 20112—As 75) zugelassen, so sind gemäß Spektralanalyse von stochastischen Signalen (bandbegrenztetes Rauschen) Spektralanteile mit Amplituden

$$\hat{U}_r \approx 10 U_{\text{r,eff}} \quad (7)$$

zu erwarten. Das entspricht Rauschspitzen bis zu  $200\text{ mV}$  (!), die den Impulsen aufgeprägt sein können. Unter diesen Verhältnissen wird z. B. ein elektronischer Meßkanal von  $400\text{ mV}$  Breite in Abhängigkeit von der Größe der jeweiligen Rauschspitze gesperrt. Eine oszillographische Kontrolle des Analysatoreinganges sollte insbesondere bei kleinen Impulshöhen (große Verstärkungsfaktoren) durchgeführt werden.

2. Die Lage des eingestellten elektronischen Kanals an der zu messenden Linie (Pegel) und seine Kanalbreite bestimmen entscheidend, in welchem Grade sich die unter 4.3. diskutierte Gerätefehler auf das Meßergebnis auswirken. Auch bei peakstabilisierten Geräten wirken sich infolge des driftenden HA Messungen an der Flanke des Meßpeaks und kleinen Kanalbreiten mit u. U. drastischen Fehlern aus. Abb. 5 gibt die temperaturabhängige Impulsratenstabilität des Analysators ITRA-084 an, wobei drei verschiedene Arbeitspunkte am Röntgenfluoreszenzpeak eingestellt wurden.

Pegel und Kanalbreite sollten auf die Linientäler gestellt werden (Arbeitspunkt 1), wobei der gesamte Kanalinhalt erfaßt wird.

3. Zu große Impulsraten am Detektor führen zu bekannten Zählverlusten, schneller Alterung und hohen Verstärkungsänderungen. Über die Dimensionierung der Meßkopfgeometrie sollten am Detektor folgende Impulsdichten ( $v = 1$ , Pegel:  $250\text{ mV}$ , Kanalbreite: Dis) nicht überschritten werden:

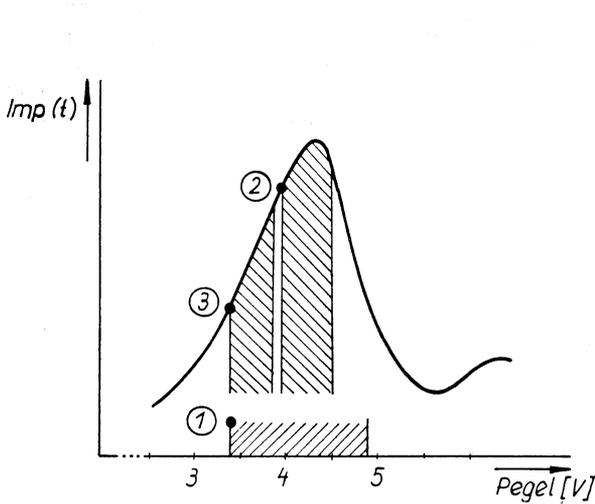
$$I_0 \leq 10^5 \text{ Imp(s)} \quad \text{für Szintillationsdetektoren } (\leq 10^4 \text{ Imp(s)} \text{ für garantiertes Auflösungsvermögen})$$

$$I_0 \leq 10^4 \text{ Imp(s)} \quad \text{für Proportionalzählrohre}$$

$$(I_0 \leq 10^2 \dots 10^3 \text{ Imp(s)} \text{ für Zählrohre})$$

#### 4.4. Verbleibende Störgrößen und optimale Betriebsweise der Geräte

Peakstabilisierte Schnellanalysegeräte können Meßfehler bei (auch kurzzeitigen) Abschaltungen vom Netz zeigen. Nach Messungen an einem PAZ-Gerät [13] und einigen ITRA-Geräten wurden bei gleichen Meß- und Umgebungsbedingungen, jedoch kurzzeitiger Stromunterbrechung, Änderungen der mittleren Impulsraten  $I_M(t)$  um einen bestimmten Betrag  $\Delta I_M(t)$  festgestellt ( $\Delta I_M(t) > \pm 3\sigma$ ). Dies führt zu einem konstanten Meßfehler bei gleicher Probe. Untersuchungen an den kernphysikalischen Gerätekomponenten und des Spektrums bestätigten deren Unveränderlichkeit bei gleicher Linienlage, so daß als Ursache für o. g. Impulsratenänderungen nur Abweichungen der Linienintensität durch Änderung der Energieauflösung (Halbwertsbreite) in Frage kommen konnten. Praktische Messungen am VKA zur Ermittlung der Halbwertsbreiten (Anregungsquelle:  $^{60}\text{Co}$ ) erbrachten Änderungen der Auflösung nach Abschaltung des Geräts bei 2 von 3 untersuchten Sonden. Mit hoher Wahrscheinlichkeit dürften dabei Änderungen des SEV-Überföhrungsfaktors  $\eta$  die ausschlaggebende Rolle spielen. In [7] gibt Neuert die durch SEV verursachte Verbreiterung der Impulshöhenverteilung



AP ① Pegel : 3,4V ; Kanalbreite : 1,5V

$$\bar{x} = \overline{\text{Imp}(t)} = 453\,000 \text{ Imp}$$

$$\Delta x = \text{Imp}(t)_{\text{max}} - \text{Imp}(t)_{\text{min}} = 9000 \text{ Imp}$$

$$\frac{\Delta x}{\bar{x}} \approx 2\% \quad \left| \Delta \vartheta = 12 \text{ grad} \right.$$

AP ② Pegel : 4,0V ; Kanalbreite : 0,5V

$$\bar{x} = 199\,000 \text{ Imp}$$

$$\frac{\Delta x}{\bar{x}} \approx 4,5\% \quad \left| \Delta \vartheta = 12 \text{ grad} \right.$$

AP ③ Pegel : 3,4V ; Kanalbreite : 0,5V

$$\frac{\Delta x}{\bar{x}} \approx 16\% \quad \left| \Delta \vartheta = 12 \text{ grad} \right.$$

$$\bar{x} = 120\,000 \text{ Imp}$$

Abb. 5a - Arbeitspunkte

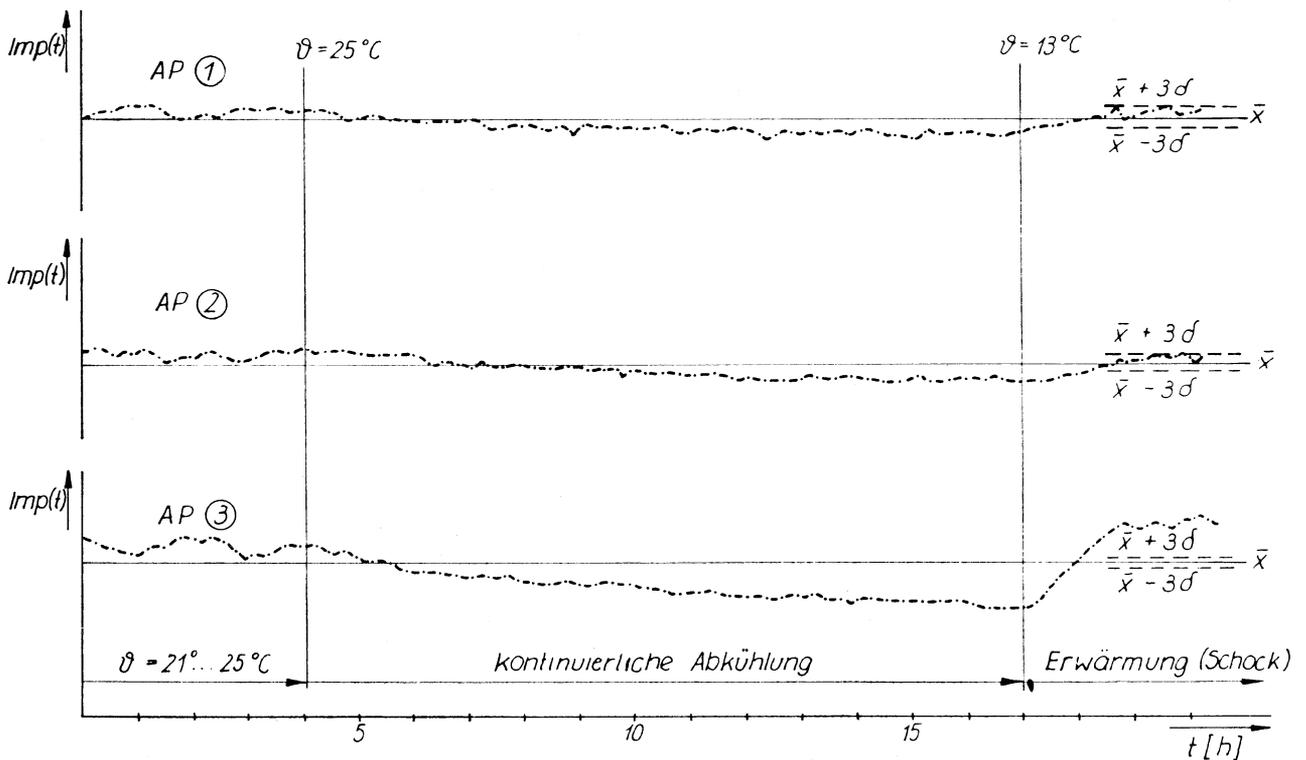


Abb 5b - Zugehörige Impulsraten  $\text{Imp}(t) = f(t, \vartheta)$

Abb. 5. Arbeitspunktabhängige Impulsratenstabilität in Abhängigkeit von der Temperatur

zu

$$W^2 = \frac{5,57}{k \cdot \varepsilon \cdot \eta} \left( 1 + \frac{\alpha}{\delta - 1} \right) \quad (8)$$

an, wobei mit  $k \sim E$

$$W \sim \frac{1}{\sqrt{E}} \left[ \frac{5,57}{\varepsilon \cdot \eta} \left( 1 + \frac{\alpha}{\delta - 1} \right) \right]^{1/2} \quad (9)$$

wird ( $W$ : relative Halbwertsbreite,  $\alpha$ : Statistik der Sekundäremission charakterisierende Konstante,  $E$ : im Szintillator absorbierte Energie).

Infolge der geringen Anzahl frei werdender Photoelektronen pro  $\gamma$ -Photoreaktion im Szintillator wird dabei das

Auflösungsvermögen in erster Linie durch die statistische Streuung der Photoelektronen bestimmt, die in das SEV-Vervielfachersystem überführt werden (NaJ(Tl)-Einkristall: 3 ... 5 Photoelektronen/keV).

Sinkt nun nach Abschaltung der SEV-Betriebsspannung  $\eta$ , verringert sich gemäß Gleichung (4) die Gesamtverstärkung des Detektors. Diese wird zwar über die Stabilisierung wieder auf den Nominalwert angehoben, wobei jedoch die *statistische Streuung* zunimmt ( $W$  steigt). Die entstandene Linienerweiterung führt zu o. g. Impulsdichteänderungen bei stabiler Gerätetechnik.

— Zur Vermeidung dieser Effekte und im Interesse stabiler Arbeitsbedingungen wird empfohlen, die

Schnellanalysegeräte ständig im eingeschalteten Zustand zu halten.

- Temperaturunterschiede während des Meßbetriebes beeinflussen die Konstanz der Meßergebnisse und deren Reproduzierbarkeit. Zur Minimierung des Temperatureinflusses auf die unter 4.3. beschriebenen Parameter sollten entsprechende Bedingungen geschaffen werden. Für die PAZ-Geräte werden Betriebstemperaturen 21 °C ... 23 °C empfohlen, für den Betrieb der ITRA-Geräte dürfen Raumtemperaturen von max. 25 °C nicht überschritten werden.
- Bei instabilen Bedingungen der Netzleitung wird der Einsatz eines automatischen Spannungsreglers Typ 1202 (VEB Statron Fürstenwalde), der Spannungsschwankungen, Kurvenverzerrungen und HF-Störungen im ms-Bereich wirkungsvoll ausregelt.

## 5. Überblick

Aufbauend auf Erfahrungen bei Entwicklung und Bau der prozessorgesteuerten ITRA-Schnellanalysatorgeräte wurde versucht, in geschlossener Form einen Überblick über den Komplex der Gerätestabilität und die zu erwartenden Meßfehler zu geben. Nachweisbare und bisher durch den Analytiker unterschiedlich interpretierte Effekte der  $\gamma$ -Spektrometrie wie Drift und Impulsratensprünge sowie Unstetigkeiten bei der Gehaltsbestimmung wurden untersucht und eingeordnet. Des Weiteren wurden Empfehlungen gegeben, meßparameter- und betriebsbedingte

Analysefehler zu minimieren. Wenn möglich, ist dabei auch auf die PA-Gerätetechnik Bezug genommen worden.

Für die fördernden Diskussionen möchte ich mich bei den Herren Dr. P. Morgenstern und W. Riedel vom Zentralinstitut für Isotopen- und Strahlenforschung der AdW der DDR – Leipzig herzlich bedanken.

Eingegangen am 27. 6. 1988

## Literatur

- [1] Meßplatz PAZ-P: Technische Unterlagen und Beschreibung. WTZ der SDAG Wismut, 1978
- [2] E. Lehmann, G. Krüger, *Isotopenpraxis* 15 (1979) 179
- [3] Autorenkollektiv, Röntgenfluoreszenzanalyse – Anwendung in Betriebslaboratorien, Leipzig: VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie 1981
- [4] V. Kliem, M. Kreher, N. Boy, *Isotopenpraxis* 22 (1986) 174
- [5] R. George, *Zeitschrift für angewandte Geologie* 29 (1983) 330
- [6] J. Kullmann, H. Hartig, *Radio, Fernsehen, Elektronik* 26 (1977) 635
- [7] H. Neuert, *Kernphysikalische Meßverfahren*, Karlsruhe: Verlag G. Braun 1966
- [8] G. Pietri, J. Nussli, *Philips Technische Rundschau* 29 (1968) 228
- [9] L. Reiffel, C. A. Stone, A. R. Brauner, *Nucleonics* 9 (1951) 13
- [10] V. Kliem, Experimentelle Ergebnisse der Untersuchungen an Sekundärelektronenvervielfachern, Laborbericht 3-83 FLIT
- [11] Szintillationssonde VA-S-968, Typ 27000 und VA-S-968.1, Typ 27001: Technische Beschreibung des VEB Meßelektronik „Otto Schön“ Dresden, 1975
- [12] H. Jung, Ph. Panussi, J. Jänecke, *Nuclear Instruments and methods* 9 (1960) 121
- [13] V. Kliem, Erprobungsbericht zum Röntgenfluoreszenzspektrometer PAZ-P der SDAG Wismut, Laborbericht 11-83 FLIT

*Isotopenpraxis* 25 (1989) 7, pp. 306 – 307

## Tagungsbericht

Das 8. Kolloquium „Technische Anwendung radioaktiver Isotope im Berg- und Hüttenwesen“, das am 26. und 27. 10. 1988 in Hetzdorf bei Freiberg stattfand, führte Fachleute aus der DDR, der ČSSR, der VRP und der UVR zusammen. In 19 Vorträgen und jeweils regen Diskussionen wurden neue und komplexe isotopentechnische Anwendungen vorgestellt und erörtert sowie Strahlenschutzprobleme und ökonomische Gesichtspunkte der Isotopenanwendung behandelt.

Von allgemeinem Interesse war die in Verbindung mit der Definition der nichtstochastischen und stochastischen Strahlenschäden erfolgte Erläuterung des Systems zur Dosisbegrenzung sowie die Begründung der primären Grenzwerte. In anschaulicher Weise wurden die für den praktischen Strahlenschutz benötigten sekundären Grenzwerte behandelt sowie die Prinzipien zur Ableitung von Richtwerten, die für unvorhergesehene Strahlenbelastungen finden, dargelegt.

Der Nutzen der Isotopenanwendung wurde am Beispiel des Radiotracer-einsatzes zur Klärung pfannenmetallurgischer Vorgänge in tschechoslowakischen Stahlwerken dargestellt. Der Nutzensermittlung liegen betriebliche Effekte, die nicht quantifizierbar sind, sodann solche, die sich konkret ausdrücken lassen und schließlich Effekte, die in der bearbeitenden Einrichtung auftreten, zugrunde. Auf dem angeführten Arbeitsgebiet ist seit Jahren das Nutzen-Aufwand-Verhältnis immer größer als 6:1.

Der Vortragskomplex über die Anwendung von Radiotracern war durch Arbeiten auf dem Gebiet der Mikro- und Makroverteilung von Legierungskomponenten geprägt. Wertvolle grundlegende Arbeiten auf dem Aluminiumsektor schafften die Voraussetzung für die theoretische Voraussage der praktischen Verteilung von Beimengungen bei Erstarrungsprozessen. Ein deutlicher Erkenntniszuwachs konnte hinsichtlich der Verunreinigungsverteilung in Aluminium durch kombinierte Anwendung radiometrischer und nichtradiometrischer Analysenverfahren demonstriert werden. Als besonders effektiv sind die Arbeiten zur Klärung der Verteilung von Legierungskomponenten und Verunreinigungen bei der Pfannenmetallurgie unter Anwendung der Gammaskopimetrie zu bewerten.

Die verschiedenen weiteren Beiträge, z. B. über die Verfolgung schneller Strömungsvorgänge, die Klärung hydrometallurgischer Abläufe, die Lösung von Materialtransport und Mischungsproblemen mit Radiotracern, zum Teil unter vorteilhaftem Einsatz von Radioisotopengeneratoren, gaben einen Einblick in die nach wie vor große Bedeutung des Einsatzes von Radiotracern zur exakten Ermittlung des Ablaufs wichtiger technischer Prozesse. Ein interessanter Beitrag auf einem „Rand“-gebiet der technischen Isotopenanwendung zeigte die Nutzung stabiler und radioaktiver Umweltisotope bei der Lösung bergbausicherheits technischer Probleme.