

EUR 1400.d

**REPRINT
TEIL 2**

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

**PRÄZISE ABSOLUTMESSUNG DER AKTIVITÄT
VON TRITIUM—II**

Eigenschaften und Konstruktion von Internal-Gas-Zählrohren
für Absolutmessungen, insbesondere von tritierten
Wasserstoff-Methan-Zählgasen

von

A. SPERNOL und B. DENECKE

1964



Gemeinsame Kernforschungsstelle
Forschungsanstalt Geel - Belgien

Zentralbüro für Kernmessungen - ZBKM

Sonderdruck aus
THE INTERNATIONAL JOURNAL OF
APPLIED RADIATION AND ISOTOPES
Band 15 - 1964

HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Atomgemeinschaft (EURATOM) ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, dass die Euratomkommission, ihre Vertragspartner und alle in deren Namen handelnden Personen :

- 1° — keine Gewähr dafür übernehmen, dass die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind oder dass die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;
- 2° — keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

This reprint is intended for restricted distribution only. It reproduces, by kind permission of the publisher, an article from "THE INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPES", Vol. 15 - 1964, 195-211. For further copies please apply to Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England).

Dieser Sonderdruck ist für eine beschränkte Verteilung bestimmt. Die Wiedergabe des vorliegenden in „THE INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPES“, Vol. 15 - 1964, 195-211 erschienenen Aufsatzes erfolgt mit freundlicher Genehmigung des Herausgebers. Bestellungen weiterer Exemplare sind an Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England), zu richten.

Ce tiré-à-part est exclusivement destiné à une diffusion restreinte. Il reprend, avec l'aimable autorisation de l'éditeur, un article publié dans «THE INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPES», Vol. 15 - 1964, 195-211. Tout autre exemplaire de cet article doit être demandé à Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England).

Questo estratto è destinato esclusivamente ad una diffusione limitata. Esso è stato riprodotto, per gentile concessione dell'Editore, da «THE INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPES», Vol. 15 - 1964, 195-211. Ulteriori copie dell'articolo debbono essere richieste a Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England).

Deze overdruk is slechts voor beperkte verspreiding bestemd. Het artikel is met welwillende toestemming van de uitgever overgenomen uit „THE INTERNATIONAL JOURNAL OF APPLIED RADIATION AND ISOTOPES“, Vol. 15 - 1964, 195-211. Meer exemplaren kunnen besteld worden bij Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England).

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 2

PRÄZISE ABSOLUTMESSUNG DER AKTIVITÄT VON TRITIUM—II
Eigenschaften und Konstruktion von Internal-Gas-Zählrohren für Absolut-
messungen, insbesondere von tritiierten Wasserstoff-Methan-Zählgasen von
A. SPERNOL und B. DENECKE.

Europäische Atomgemeinschaft - EURATOM.

Gemeinsame Kernforschungsstelle.

Forschungsanstalt Geel - Belgien.

Zentralbüro für Kernmessungen - ZBKM.

Sonderdruck aus „The International Journal of Applied Radiation and Isotopes“
Band 15 - 1964 - Seiten 195-211.

Es wird ein Methode zur absoluten Bestimmung der Aktivität von tritium-
markiertem Wasser mit einer Reproduzierbarkeit von 0,1-0,2 % und einer
ab oluten Genauigkeit von 0,3-0,4 % im Detail angegeben. Der erste Teil der
Arbeit behandelte die Herstellung des zu zählenden Gases, hier wird über die
Wirkungsweise, Eigenschaften und Konstruktion der benötigten Internen-Gas-
Zählrohre berichtet und in einem folgenden dritten Teil werden die Zählung
und die dabei auftretenden Fehler diskutiert

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 2

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—II
Characteristics and construction of internal gas counters, especially for hydrogen-
methane mixtures by A. SPERNOL and B. DENECKE.

European Atomic Energy Community - EURATOM.

Joint Nuclear Research Center.

Geel Establishment - Belgium.

Central Nuclear Measurements Bureau - CNMB.

Reprinted from "The International Journal of Applied Radiation and Isotopes"
Vol. 15 - 1964 - pp. 195-211.

A method for the determination of the activity of tritiated water samples
with a reproducibility of 0.1-0.2 % and an absolute accuracy of 0.3-0.4 % is
described in detail. The first part contained the method of preparation of hydrogen
and counting gas, this second part contains a description of the construction
and operating characteristics of the internal gas counters used, and in a third
part the counting procedure and its errors will be discussed.

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 2

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—II
Characteristics and construction of internal gas counters, especially for hydrogen-
methane mixtures by A. SPERNOL and B. DENECKE.

European Atomic Energy Community - EURATOM.

Joint Nuclear Research Center.

Geel Establishment - Belgium.

Central Nuclear Measurements Bureau - CNMB.

Reprinted from "The International Journal of Applied Radiation and Isotopes"
Vol. 15 - 1964 - pp. 195-211.

A method for the determination of the activity of tritiated water samples
with a reproducibility of 0.1-0.2 % and an absolute accuracy of 0.3-0.4 % is
described in detail. The first part contained the method of preparation of hydrogen
and counting gas, this second part contains a description of the construction
and operating characteristics of the internal gas counters used, and in a third
part the counting procedure and its errors will be discussed.

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 2

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—II
Characteristics and construction of internal gas counters, especially for hydrogen-
methane mixtures by A. SPERNOL and B. DENECKE.

European Atomic Energy Community - EURATOM.

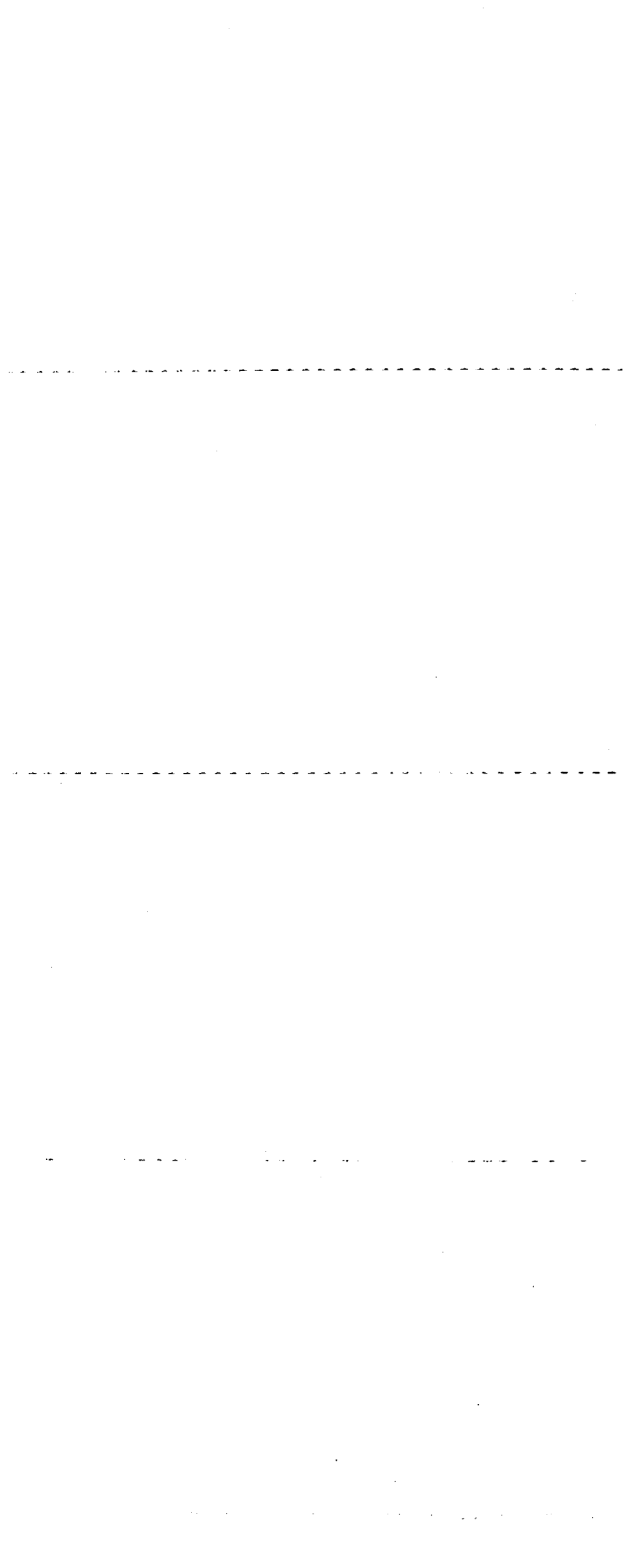
Joint Nuclear Research Center.

Geel Establishment - Belgium.

Central Nuclear Measurements Bureau - CNMB.

Reprinted from "The International Journal of Applied Radiation and Isotopes"
Vol. 15 - 1964 - pp. 195-211.

A method for the determination of the activity of tritiated water samples
with a reproducibility of 0.1-0.2 % and an absolute accuracy of 0.3-0.4 % is
described in detail. The first part contained the method of preparation of hydrogen
and counting gas, this second part contains a description of the construction
and operating characteristics of the internal gas counters used, and in a third
part the counting procedure and its errors will be discussed.



Reprinted from

The International Journal of
APPLIED RADIATION
AND ISOTOPES



PERGAMON PRESS

OXFORD • LONDON • NEW YORK • PARIS

Präzise Absolutmessung der Aktivität von Tritium—II

Eigenschaften und Konstruktion von Internal-Gas-Zählrohren
für Absolutmessungen, insbesondere von tritiierten
Wasserstoff-Methan-Zählgasen

A. SPERNOL und B. DENECKE

Zentralbüro für Kernmessungen (ZBKM) der Euratom, Geel, Belgium

(Received 12 May 1963)

Es wird eine Methode zur absoluten Bestimmung der Aktivität von tritiummarkiertem Wasser mit einer Reproduzierbarkeit von 0,1-0,2% und einer absoluten Genauigkeit von 0,3-0,4% im Detail angegeben. Der erste Teil der Arbeit behandelte die Herstellung des zu zählenden Gases, hier wird über die Wirkungsweise, Eigenschaften und Konstruktion der benötigten Internen-Gas-Zählrohre berichtet und in einem folgenden dritten Teil werden die Zählung und die dabei auftretenden Fehler diskutiert.

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—II

CHARACTERISTICS AND CONSTRUCTION OF INTERNAL GAS COUNTERS, ESPECIALLY FOR HYDROGEN-METHANE MIXTURES

A method for the determination of the activity of tritiated water samples with a reproducibility of 0.1-0.2% and an absolute accuracy of 0.3-0.4% is described in detail. The first part contained the method of preparation of hydrogen and counting gas, this second part contains a description of the construction and operating characteristics of the internal gas counters used, and in a third part the counting procedure and its errors will be discussed.

LE COMPTAGE ABSOLU EN PHASE GAZEUSE A HAUTE PRECISION DU TRITIUM—II

CHARACTERISTIQUE ET CONSTRUCTION DES COMPTEURS A GAZ INTERIEUR, SURTOUT POUR LES MELANGES HYDROGENE-METHANE

On décrit en détail une méthode pour la mesure de l'activité des échantillons d'eau tritiée avec une reproductibilité de 0,1-0,2 pour cent et une précision absolue de 0,3-0,4 pour cent. La première partie contenait la méthode de préparation de l'hydrogène et du gaz à comptage, cette deuxième partie rend compte de la construction et de la caractéristique de fonctionnement des compteurs à gaz intérieur employés, et dans une troisième partie on discutera le procédé de comptage et ses erreurs.

ABSOLUTER GASVORZÄHLER MIT HOHER GENAUIGKEIT— EIGENSCHAFTEN UND BAUFORM VON INTERNELEN GASVORZÄHLERN, SPEZIELL FÜR MISCHELENDUNG VON WASSERSTOFF UND METHAN

Detailliert wird beschrieben die Methode zur Bestimmung der Aktivität von Proben mit Wasserstoffgehalt bei einer Reproduzierbarkeit von 0,1–0,2 Prozent und einer absoluten Genauigkeit von 0,3–0,4 Prozent.

Der erste Teil enthält die Methode zur Herstellung von Wasserstoff und Messgas, der zweite Teil die Beschreibung des Gerätes und die operativen Eigenschaften der verwendeten internen Gasvorzähler; im dritten Teil wird die Prozedur der Messung und die Fehler diskutiert.

1. EINLEITUNG

PROPORTIONALZÄHLROHRE sind für verschiedene Energiebestimmungen im Bereich kleiner Energien (0–50 keV) allen anderen Verfahren überlegen. Daher liegen in der Literatur mehrere ausgezeichnete Zusammenfassungen über Energiemessungen mit Proportionalzählrohren vor^(1–7). Aber auch für Messungen der Aktivität geringenergetischer Strahler sind Proportionalzählrohre—insbesondere Internal-Gas-Zählrohre—besonders gut geeignet, da das Fehlen jeder Selbstabsorption eine hohe Präzision ermöglicht. Dazu gibt es in der Literatur keine zusammenfassenden Darstellungen. Daher wird im Folgenden über die Wirkungsweise, Eigenschaften, Konstruktion und Zählgase (besonders Wasserstoff-Methan) von Internal-Gas-Zählrohren für präzise, absolute Aktivitätsmessungen (besonders von Tritium) berichtet.

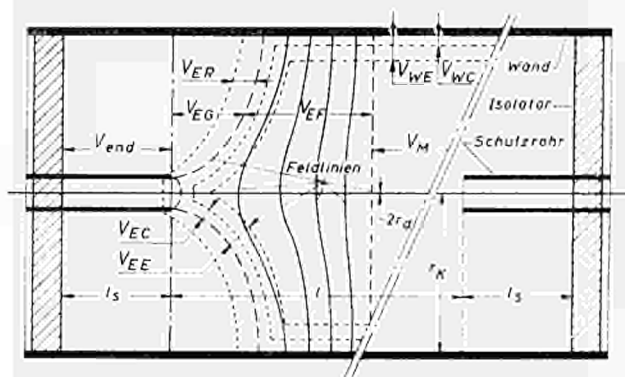
2. WIRKUNGSWEISE DES INTERNAL-GAS-ZÄHLROHRS

Ein Gaszählrohr kann hinsichtlich seines für die Aktivitätsmessung wichtigen Wirkungsmechanismus in verschiedene Zonen gleichen Verhaltens eingeteilt werden (Abb. 1). Zunächst wird durch die Zählrohrenden ein insensitives Endvolumen ($V_{\text{end}} + V_{EG}$) angegeben, das durch die erste Feldlinie begrenzt wird, die auf dem Zählrohrdraht endet. An dieses Volumen und an die Wand grenzt eine Zone ($V_{EC} + V_{WC}$), aus der Strahlung nicht nachgewiesen entkommen kann. Diese Randzone ist in einer grösseren enthalten ($V_{EE} + V_{WE}$), aus der ein Teil der Energie der Strahlung entkommen kann, in der die entstehende Strahlung

also immer, aber eventuell mit falscher Energie nachgewiesen wird. Die Tiefe dieser Zone wird durch die maximale Reichweite der Strahlung angegeben. Eine weitere, an die insensitiven Enden grenzende Zone ist der Teil V_{EF} des sensitiven Volumens, in das der störende Einfluss der Enden (Schutzrohr usw.) hineinreicht und in dem daher nicht der normale Feldverlauf herrscht. Die Zone V_{EF} ist auch dafür verantwortlich, dass der Gesamteffekt von der Zählrohrspannung abhängig ist. Denn es ist zwar die Feldlinienkonfiguration im Zählrohr spannungsunabhängig, jedoch nicht die absolute Grösse der Feldstärke. Dass die Zone V_{EF} und die Randzonen wesentlich zur Verzerrung des Energiespektrums beitragen, geht z.B. sehr schön aus dem Unterschied von A^{37} -Spektren mit Feldrohr- ($V_{EG} = 0$) und Schutzrohrschaltung hervor (Abb. 4a). Schliesslich bleibt der mittlere Teil des sensitiven Volumens V_M , in dem die Feldverteilung eines unendlichen Zylinders herrscht und in dem daher keinerlei Störeffekte auftreten. Dieser Teil des Zählrohres soll gegenüber den gestörten Randzonen möglichst gross sein.

Die bisher besprochenen Störungen an den Rändern der Zählrohre lassen sich bei Absolutmessungen durch die Angabe eines effektiven Volumens berücksichtigen. Dieses für die Aktivitätsbestimmung effektive Volumen V_{eff} ergibt sich aus dem Zählrohrvolumen $V = \pi r_K^2 l$ zwischen den Schutzrohrenden (oder Feldrohrenden) (Abb. 1), das um die Zonen V_{EG} und zu bestimmende (s.w.u.) Bruchteile der Zonen V_{EC} und V_{WC} reduziert wird.

Zwei weitere Randstörungen können nicht direkt als Volumeneffekte angesehen werden, und zwar Einstrahlung aus den insensitiven Endvolumina in das sensitive Volumen und Ab-, Ad- und Chemisorptionserscheinungen an



- V_M Ungestörtes Zählrohrvolumen (Feldverlauf eines unendlichen Zylinderkondensators).
- V_{end} Insensitives Endvolumen.
- V_{EG} Insensitives Endvolumen verursacht durch die Schutzrohrschicht (begrenzt durch die erste Feldlinie, die auf dem Schutzrohr endet).
- V_{EC} Randschicht an den Enden, aus der Strahlung ungezählt entkommen kann.
- V_{WC} Randschicht längs der Wand, aus der Strahlung nicht nachgewiesen entkommen kann.
- V_{EE}, V_{WE} Randschicht längs der Enden bzw. längs der Wand, aus der ein Teil der Energie der Strahlung entkommen kann.
- V_{EF} Randschicht an den Enden im sensitiven Volumen, in der durch die Schutzrohrschicht der normale Feldverlauf gestört ist.
- V_{ER} Randschicht im insensitiven Ende, aus der Einstrahlung ins sensitive Volumen erfolgen kann.

ABB. 1. Zonen gleicher Wirkungsweise beim Internal-Gaszählrohr.

allen Oberflächen im Zählrohr. Der Einfachheit halber sollen aber diese zwei Randfehler auch im effektiven Volumen berücksichtigt werden, so dass V_{eff} dann alle Randeffektkorrekturen enthält. Es ergibt der Einstrahlungseffekt eine Vergrößerung des effektiven Volumens um einen Bruchteil der an das sensitive Volumen grenzenden insensitiven Schicht V_{ER} (Abb. 1), und die Sorptionserscheinungen führen zu einer effektiven Vergrößerung der insensitiven Endvolumina und der Wandzonen mit Entkommöglichkeiten.

3. EIGENSCHAFTEN UND TEST VON INTERNAL-GAS-ZÄHLROHREN FÜR ABSOLUTZÄHLUNGEN

Für präzise Absolutmessungen von Aktivitäten ist es vor allem wichtig, dass die verwendeten Zählrohre lange Plateaus haben, die über Wochen auf 0,1% genau reproduzierbar sind.

Weiter muss das effektive Volumen der verwendeten Zählrohre mit grosser Präzision bestimmbar sein und Sorptionseffekte (swu) sollen möglichst vermieden werden. Diese Eigenschaften lassen sich durch geeignete Konstruktion (swu) erreichen. Weniger wichtig für Aktivitätsbestimmungen, jedoch auch sehr erwünscht, ist ein gutes Energieauflösungsvermögen der Zählrohre. Dieses ist von zahlreichen Autoren untersucht,^(1-6,8-12) und es ergibt sich, dass die Halbwertsbreite l einer monoenergetischen Strahlung der Energie E durch die Formel $l = const E^{1/2}$ beschrieben werden kann. Ebenso wünschenswert ist es für Absolutmessungen, dass die Gasverstärkung der Zählrohre bis zu möglichst hohen Werten von der Primärenergie unabhängig ist und so das Spektrum nicht verzerrt. Zur Gasverstärkung von Proportionalzählrohren selbst gibt es trotz zahlreicher Untersuchungen^(1-6,13-19) keine definitive

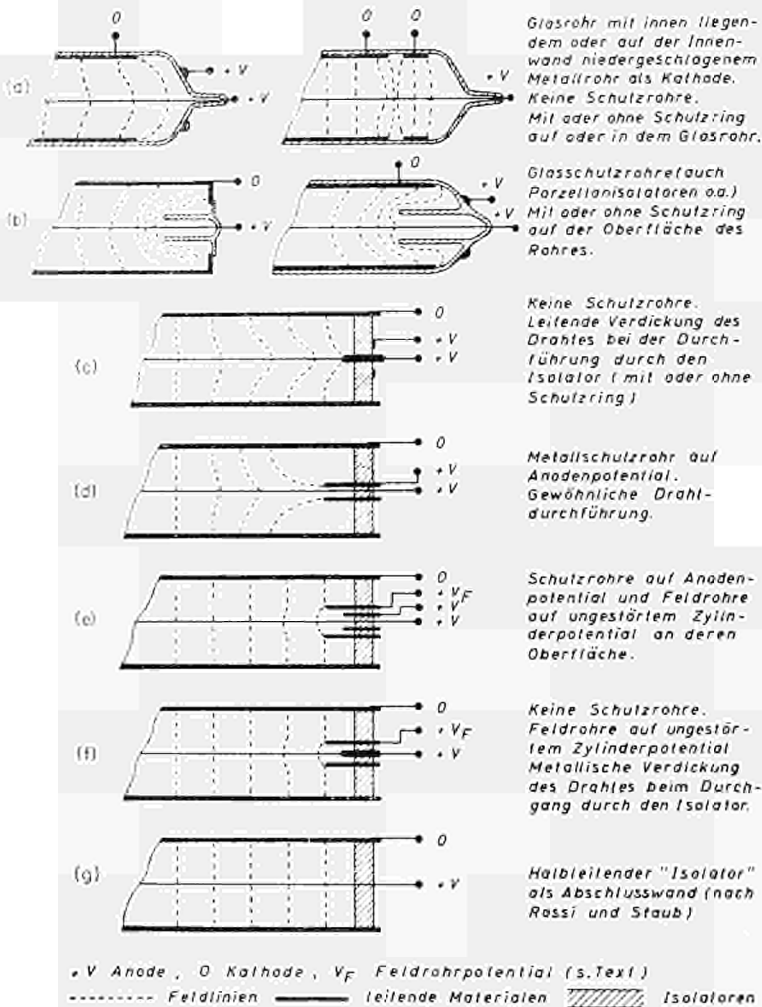


Abb. 2. Mögliche Konstruktionen von Gaszählrohren.

Theorie und Formel, jedoch läßt sich die Abhängigkeit der Gasverstärkung M von der Hochspannung V für ein bestimmtes Zählrohr immer in guter Näherung durch die Formel $M = \text{const } e^{aV}$ ($a = \text{Konstante}$) beschreiben. Die Abweichung von dieser Abhängigkeit bei hohen Gasverstärkungen, die raumladungsbedingt⁽²⁰⁻²²⁾ und daher von der Primärenergie abhängig ist, zeigt an, ab wann mit einer Verzerrung des Spektrums durch energieabhängige Gasverstärkung zu rechnen ist. Vorausgesetzt wird dabei, dass das verwendete Zählgas nicht schon vorher Geiger-Müller-Eigenschaften zeigt, was oft der Fall ist (s. Kap. 5).

Da man beim Bau von Zählrohren, auch bei völlig gleicher Bauweise, niemals sicher ist, ob die Zählrohre das gewünschte Verhalten zeigen, muss jedes Zählrohr vor Gebrauch gut geprüft werden. Dazu eignet sich besonders eine Untersuchung mit A^{37} , das dem Zählgas beigemischt wird. Argon 37 zerfällt mit 34,3 Tagen Halbwertszeit durch Elektroneneinfang, wobei eine Strahlung von 2,82 keV (K -X-Strahlung und Augers) und eine von etwa 220 eV (L -X-Strahlung und Augers) ausgesandt wird. Die angenommene Energie von 220 eV für die L -Linie ist ein Mittelwert aus der Energie der L -Einfang-Augerelektronen und

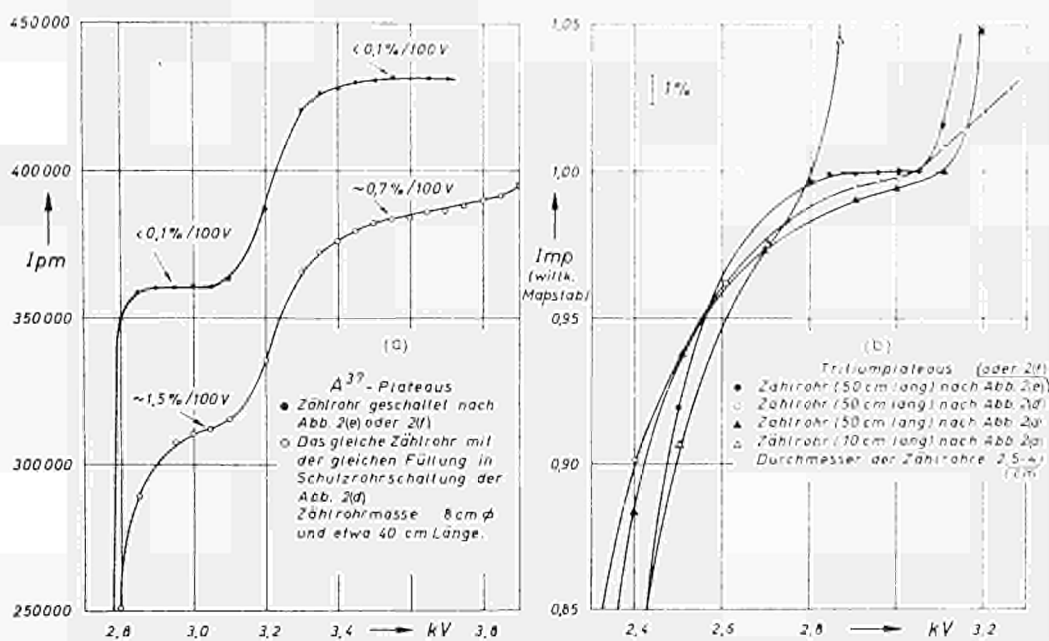


Abb. 3. Typische Plateaus gemessen mit den verschiedenen Zählrohrtypen der Abb. 2.

der Augerelektronen, die nach Escape der K-X-Strahlung frei werden, wobei angenommen wird, dass die L_I -Energie 238 eV und die L_{II} - und L_{III} -Energie etwa 202 eV betragen^(23,24) und das Zählgas Methan von etwa 1 Atm ist. An diesen spektroskopischen Werten für die atomaren Energieterme des Argons wurde vorläufig festgehalten, solange der Widerspruch zu neueren Messungen,⁽²⁵⁻²⁸⁾ die höhere Werte ergeben, nicht geklärt ist. Misst man nun mit A³⁷ im Zählgas Plateaus der Form a in Abb. 3, so weiss man aus dem guten (zweiten) Plateau für die L-Strahlung (220 eV), dass noch einzelne Elektronen ohne Störungen nachgewiesen werden. Wenn diese Plateaus dann über längere Zeit stabil bleiben, sind die Zählrohre unbedingt brauchbar. Durch Aufnahme eines Differentialspektrums kann man sich zusätzlich überzeugen, ob das Auflösungsvermögen für die K-Linie (2,82 keV) etwa 20% und für die L-Linie (220 eV) 90-100% beträgt. Das sind Werte, die mit guten Zählrohren meistens erhalten werden. Ein empfindlicher Test kann auch die direkte Aufnahme des differentiellen Tritiumspektrums sein. Ist der daraus abgeleitete Curie-Plot bei einer geeignet gewählten Spannung bis zu den kleinen Energien linear,

die für gute Zählrohre charakteristisch sind (s.w.u.), so ist das Zählrohr gut brauchbar.

4. KONSTRUKTION VON INTERNAL-GAS-ZÄHLROHREN

Es gibt zahlreiche Möglichkeiten zur Konstruktion von Internal-Gas-Zählrohren,^(1-7,29-38) von denen die unserer Meinung nach für Absolutmessungen tauglichen hier untersucht wurden. Die Abb. 2 zeigt diese verschiedenen untersuchten Zählrohrkonstruktionen (die charakteristischen Feldlinien sind angedeutet), die Abb. 3 zeigt typische Plateaus, die Abb. 4 typische Spektren für verschiedene der untersuchten Typen. Aus diesen Untersuchungen ergibt sich zusammenfassend, dass Zählrohre, in denen das effektive Volumen irgendwie von Isolatoren begrenzt wird (in Abb. 2a und b), schlecht für hohe Präzision zu gebrauchen sind, auch wenn diese isolierenden Flächen aussen mit einem leitenden Material auf konstantem Potential abgedeckt werden (Mazezähler). Diese Zählrohre, zu denen fast alle käuflichen gehören, zeigen nach unseren Untersuchungen wegen unkontrollierbarer Aufladungserscheinungen meistens nur schlechte Reproduzierbarkeit.^(39,40) Auch Zählrohre, bei denen durch

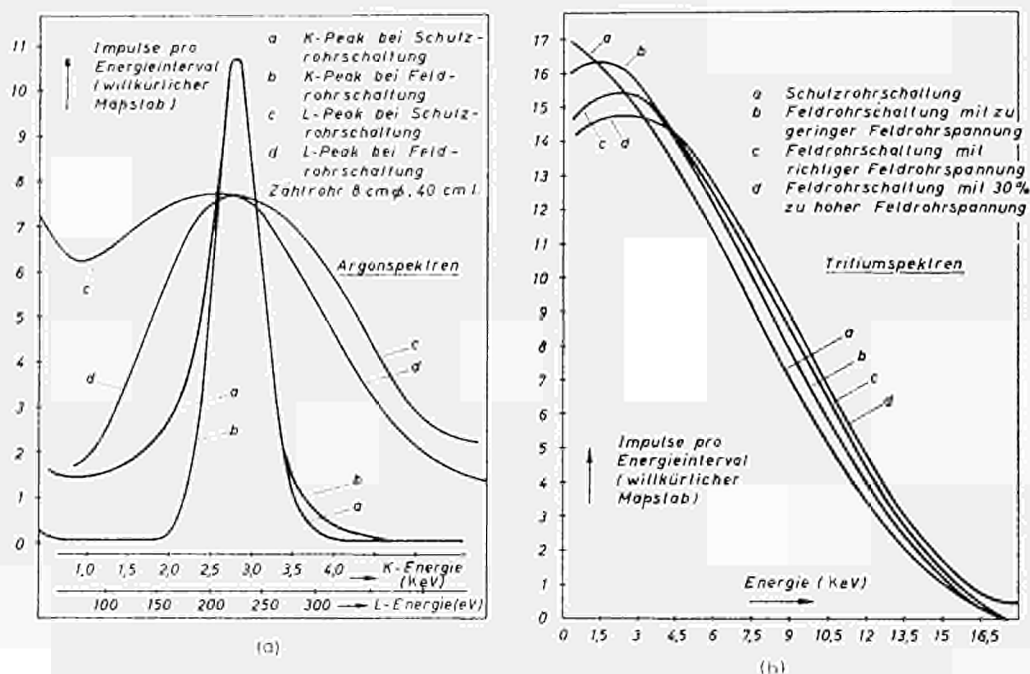


Abb. 4. Typische Spektren gemessen mit den verschiedenen Zählrohrtypen der Abb. 2.

eine isolierende Perle der Zählrohr in zwei verschiedene Teile geteilt wird⁽⁴¹⁾, sind aus dem gleichen Grund (Aufladung der Perle) schlecht verwendbar. Bei diesen Zählrohren können zusätzlich Überschlüge zwischen den Teilrohren auftreten, die schwer zu korrigieren sind. Die allein brauchbaren Zählrohren, bei denen das effektive Volumen durch leitende, den Zählrohr an den Enden umgebende Röhre, bestimmt wird, lassen sich einteilen in eine Gruppe, bei denen diese Endröhren geerdet sind (Schutzrohr, Abb. 2d) und eine zweite, bei der die äusseren Endröhren auf dem "normalen" Zylinderpotential des Zählrohrs liegen (Feldrohr, Abb. 2 e, f). Bei den letzteren, die von COCKERFOT und CURRAN⁽⁴²⁾ eingeführt wurden, setzt sich der normale Feldverlauf im Zählrohr bis zu den Enden fort, so dass das insensitive Endvolumen V_{EG} und das Volumen mit gestörtem Feldverlauf V_{EK} (Abb. 1) verschwinden. Es wird dadurch sowohl die Bestimmung des effektiven Volumens als auch—wegen des weniger verzerrten Spektrums—die Ermittlung der Korrekturen der Zählung wesentlich präziser möglich. Komplizierter als bei Schutzrohren werden bei Feldrohrkonstruktionen die

Isolationsbedingungen⁽⁴³⁾, vor allem, wenn zwischen Feldrohr und Zählrohr noch ein Schutzrohr eingeführt wird (Abb. 2e), was üblich ist. Diese Isolationschwierigkeiten können erheblich reduziert werden, wenn auf ein Schutzrohr verzichtet wird, aber der Zählrohr an der Durchgangsstelle durch den Isolator verdickt wird⁽⁴⁴⁾ (wodurch die Feldstärke an der Drahtoberfläche in der Durchgangsstelle um einen Faktor 1000 oder mehr herabgesetzt wird) (Abb. 2f). Wir haben mit Zählrohren des letzten Typs sehr gute Erfahrungen gemacht. Ihr Verhalten unterscheidet sich bei guter Konstruktion nicht vom Verhalten von Zählrohren mit Feld- und Schutzrohren. Wir haben daher als Standardzählrohre den letzteren Typ (mit Feldrohren und "verdickten Drahtdurchführungen") und den am häufigsten verwendeten einfachen Zählrohrtyp mit Schutzrohren verwendet (Abb. 2f und 2d sowie Abb. 5). Für beide Standardtypen wurden alle Fehleruntersuchungen durchgeführt, was sich oft als zweckmässig erwies, da die Fehlereffekte zum Teil bei den beiden Typen verschieden sind (z.B. fehlt bei Schutzrohren die Abhängigkeit von der Feldrohrspannung) und dadurch

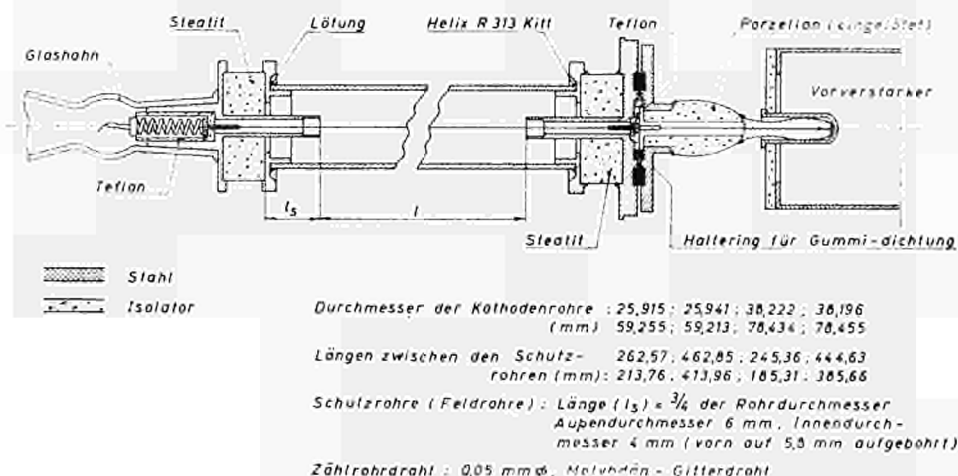


ABB. 5. Der Zählrohrtyp, der für Routinemessungen in Feldrohr- oder Schutzrohrschaltung verwendet wurde.

gegenseitige Kontrollen möglich waren. Von SIKKEMA⁽⁴⁵⁾ ist der Vorschlag zur Behebung der Endeffekte durch Anwendung von Feldrohren mit Drahtdurchmesser gemacht worden⁽⁴⁶⁾. Die Konstruktion dieser Zählrohre ist nicht versucht worden, da sie uns technisch zu schwierig erschien. Ebenso haben wir auf die Verwendung "wandeffektfreier" Zählrohre mit Vieldraht- oder Folienkathoden für Routineeichungen verzichtet, da deren effektives Volumen nicht mit ausreichender Präzision bestimmbar ist.

Da nach unseren Untersuchungen (u.a. fast aller 1960 käuflich erhältlicher Gaszählrohre) kaum Zählrohre für hochpräzise Gaszählungen gekauft werden können, sollen noch einige Details zu deren Bau angegeben werden. Die Montage von Gaszählrohren kann im Wesentlichen auf dreierlei Weise erfolgen. Entweder die verschiedenen Teile der Enden (Feldrohr, Schutzrohr) werden über Isolatoren fest mit dem Rohr verkittet* oder sie werden nur zusammengesetzt und in das Rohr eingeführt, während eine Kappe mit elektrischen Durchführungen den vakuumdichten Abschluss besorgt oder drittens alle Teile einschliesslich der Rohre werden in einem grossen Vakuumbehälter untergebracht. Die Bauart mit Endkappen ist die einfachste, ermöglicht leicht Änderungen und ist mit hoher Präzision leicht

durchführbar. Sie hat den Nachteil, dass in den verhältnismässig grossen sensitiven Endvolumina eine grössere Gassorption stattfinden kann, ein Nachteil, der bei der letzten Montageart noch sehr viel grösser wird. Da wir vor allem die am schwierigsten zu erfassenden Adsorptionserscheinungen so gering wie möglich halten wollten, haben wir fast ausschliesslich unsere Zählrohre nach den beiden ersten Methoden gebaut und mit beiden Methoden bei richtiger Wahl der Materialien sehr gute Ergebnisse erzielt. Um bei den Zählmessungen lange Plateaus zu erhalten, die bis zu hohen Spannungen nur durch die Energieverteilung der Primäronisation und nicht durch Sekundäreffekte (Nachimpulse, Überschläge, Rauschen) bestimmt sind, müssen geeignete Isolatoren mit ausreichendem Isolationsweg verwendet werden. Von den untersuchten Isolatoren erwiesen sich Glas, Porzellan (Steatit) und Teflon als immer geeignet. Die Verwendbarkeit von Kunststoffen ist von der Art des untersuchten Gases abhängig. Z.B. erwies sich Troxidur bei $\text{CH}_4\text{-H}_2$ -Gasgemischen als brauchbar, dagegen Trolitul bei $\text{CH}_4\text{-CO}_2$ -Gasgemischen wegen starker Chemiesorption als unbrauchbar. Die Verwendung störend ausgasender Isolatoren, aber auch vor allem störend ausgasender Kitten muss vermieden werden. So ergab sich z.B. bei unseren Untersuchungen, bei denen wir grössere Mengen des als Kitt gebrauchten Materials in das Zählrohr hineinbrachten und dann die

* Es können auch Glas-Metallkombinationen verwendet werden (z.B. Schott Nr. Ekd 708).

Veränderung des Plateaus mit der Zeit beobachteten, dass Araldit Giessharz D und Piccin schlechtere Ergebnisse geben als Araldit N oder Helix R 313 (Biggs). Als Wandmaterial haben wir Stahl (rauh und innen elektropoliert), Aluminium, Kupfer und Messing verwendet. Alle Zählrohre waren brauchbar⁽⁴⁷⁾. Für die Standardrohre wurde Stahl innen elektropoliert (wegen der geringeren Adsorption) gewählt. Aluminiumrohre wurden vor allem bei Messungen von X-Strahlen verwendet, bei denen Störungen durch Fluoreszenzstrahlung und Augerelektronen aus der Wand vermieden werden sollten⁽⁴⁸⁾. Auch die Art des Drahtmaterials hat nach unseren Messungen mit Wolfram-, Molybdän-, Platin-, Stahl-, Niob- und vergoldeten Wolframdrähten keinen erheblichen Einfluss auf die Plateauform und Energieauflösung, wenn der Drahtdurchmesser konstant und die Drahtoberfläche nicht zu rauh ist. Letzteres ist bei manchen Wolframdrähten der Fall. Der Drahtdurchmesser wurde bei uns zwischen 0,02 und 0,1 mm variiert, ohne dass wesentliche Unterschiede in den Ergebnissen auftraten. Der Vorteil der 0,02 mm dicken Drähte, die verhältnismässig geringe benötigte Hochspannung (1–2 kV weniger als bei 0,1 mm), wird durch deren Nachteile, nämlich im allgemeinen verhältnismässig grosse relative Schwankung der Drahtdurchmesser und erhöhte Isolationsschwierigkeiten teilweise ausgeglichen. Wir haben für die Standardzählrohre daher Molybdän und einen mittleren Drahtdurchmesser von 0,05 mm gewählt. Die Drähte wurden vorher im Mikroskop untersucht⁽⁴⁹⁾. Die notwendige Vakuumdichtigkeit eines Internal-Gas-Zählrohres ist von der verwendeten Gasart abhängig. Reines Methan kann selbst noch mit einigen % Luft ohne grössere Schwierigkeiten gemessen werden, während bei Methan mit 10 % Wasserstoff eine Dichtigkeit von etwa 10^{-8} Torr Liter/sec notwendig ist, wenn über Wochen auf 0,1 % reproduzierbare Messungen erreicht werden sollen (s.w.u.). Diese grosse Dichtigkeit ist bei der üblichen Verwendung von Rundschnurring-Dichtungen nicht mehr mit jedem Material zu erreichen. Vor allem erwies sich Silicongummi als viel zu durchlässig, darf also nicht verwendet werden⁽⁵⁰⁾. Der

Rundschnurring muss ausserdem durch einen Zentrierring in einer festen Stellung gehalten werden. Oft wird Ausheizen der Zählrohre bei höheren Temperaturen unter Vakuum empfohlen. Wir haben bei Ausheizen bis zu 200°C keine erheblichen Unterschiede gegenüber Zählrohren gefunden, die einige Zeit bei Hochvakuum (10^{-6} Torr) evakuiert worden sind. Daher haben wir beim routinemässigen Zählrohrbau auf das Ausheizen verzichtet. Auch das Ausheizen der Zählrohrdrähte brachte keine Vorteile. Dagegen muss selbstverständlich auf extreme Sauberkeit beim Zählrohrbau geachtet werden⁽³⁰⁾. Auch die Verdrahtung zwischen Zählrohr und Vorverstärker kann Schwierigkeiten bringen. Wir hatten z.B. bei einigen unserer Rohre mit Feldrohr einen recht intensiven Impuls im Backgroundspektrum, der einigen keV Primärenergie entsprach. Bei Änderung der Verdrahtung und Abschirmung zwischen Zählrohr und Vorverstärker verschwand diese Störung. Eine Untersuchung des Backgroundspektrums im Bereich kleiner Energien ist daher immer nützlich.

5. MÖGLICHE ZÄHLGASE

Da man bei Tritiumeichungen fast immer von tritiiertem Wasser ausgeht, wären die direkte Verwendung von Wasserdampf oder die Messung von Wasserstoff^(51–53) die einfachsten Verfahren. Beide Gase eignen sich aber nur sehr schlecht für Präzisionsverfahren. Will man daher den dargestellten Wasserstoff mit einem geeigneten Gas mischen, um ein gutes Zählgas zu erhalten, so kommen viele verschiedene Gase für diesen Zweck in Frage.^(1–6, 20, 54–69) Um ein geeignetes Gas für unsere Zwecke auszuwählen, haben wir rein experimentell die für uns wichtigen Eigenschaften, Plateau und Proportionalität der Gasverstärkung bis zu möglichst hohen Werten, bei verschiedenen Zählgasen untersucht. Und zwar sind einfach ausser einem Tritiumplateau die Tritiumspektren in Abhängigkeit von der Gasverstärkung gemessen, in Curie-Plots ausgewertet (s. Beispiele in Abb. 6 und 7) und verglichen worden. Die verwendeten Gase sind nach praktischen und halbempirischen Gesichtspunkten ausgesucht, es sind Methan, Aethylen, Acethylen, Methan-Argon, Aethylen-Argon, Butan, Stickstoff und Isobutan-Helium, alle mit etwa 2 % Wasserstoff

* Aluminiumrohre nicht für Weinste Energien.

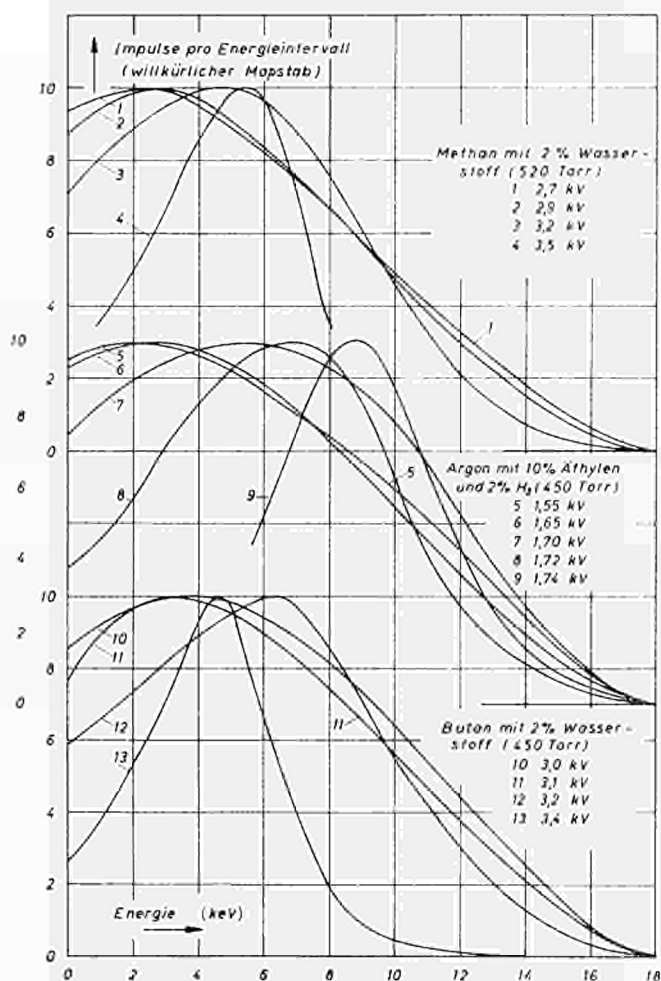


Abb. 6. Tritiumspektren bei verschiedenen Zählgasen in Abhängigkeit von der Hochspannung.

gemischt. Bei allen zeigt sich (bei einem Druck von etwa 500 Torr) schon bei relativ niedrigen Gasverstärkungen (10^3 – 10^4), die Hochspannungen entsprechen, die noch keineswegs zum Zählplateau gehören, eine Verzerrung des Spektrums und noch deutlicher des Curieplots (Abb. 6 und 7), die auf einen Übergang zum Geiger-Müller-Bereich hindeuten. Verglichen wurden für die verschiedenen Gase die maximalen Gasverstärkungen M_m , die noch unabhängig von der Primärenergie waren. Dieses "Ende des Proportionalbereichs" M_m wurde dort angenommen, wo der Curieplot 5% von der Linearität abwich. (Die Abweichung erfolgt

immer zuerst bei 4–5 keV, wobei die auch bei sehr kleinen Energien auftretende Abweichung nicht in Betracht gezogen werden darf, da sie auf anderen Effekten beruht.) Unter den best geeigneten Gasen (Abb. 6 und 7), das heisst unter den Gasen, bei denen der Übergang zum Geiger-Müller-Bereich erst bei besonders hohen Gasverstärkungen auftritt, befindet sich Methan, das besonders leicht zu erhalten, zu reinigen und zu handhaben ist. Daher haben wir es als Standardgas benutzt und besonders gut untersucht (s. Kap. 6). Da wir nur wenige Gase untersucht haben, ist es durchaus wahrscheinlich, dass bessere, allerdings nicht

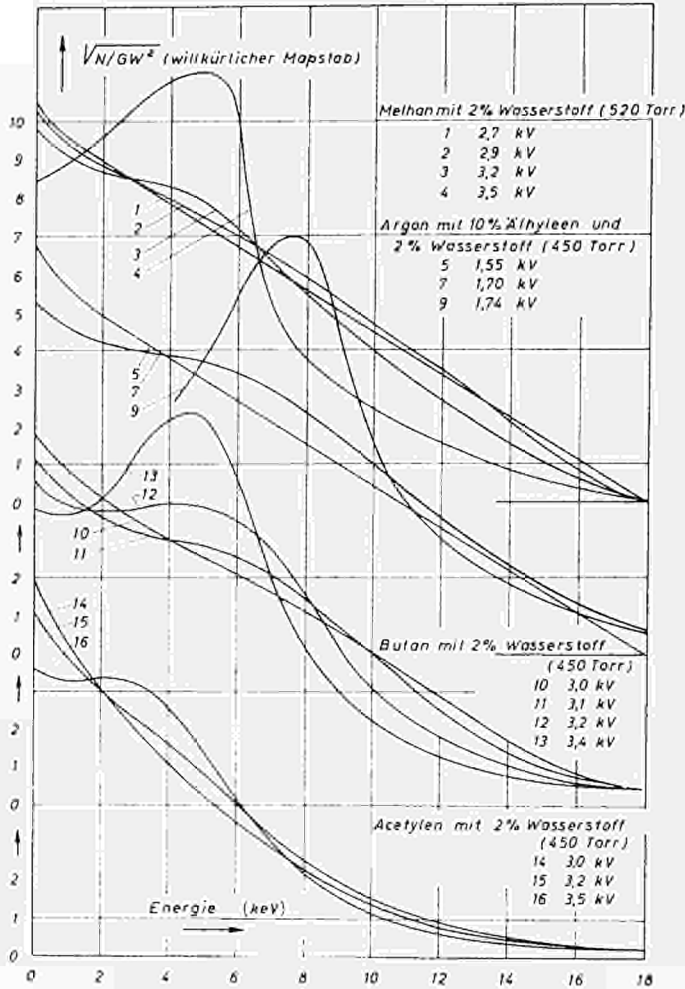


Abb. 7. Curieplots der Spektren der Abb. 6.

größenordnungsmässig bessere Gase für unsere Untersuchungen gefunden werden können. Vergleicht man unsere Ergebnisse mit denen von HANNA und PONTECORVO⁽⁷⁰⁾, so ergibt sich gute Übereinstimmung. Diese Autoren erhalten für verschiedene Zählgase (darunter 77% Argon und 23% Methan) proportionale Gasverstärkung M bis zu Werten von $M \approx 10^8/E(\text{eV.})$ (E Primärenergie der gemessenen Strahlung). Das würde für Tritiumelektronen, für die man eine max. Energie von 20 keV annehmen kann, ergeben, dass die maximale proportionale Verstärkung $5 \cdot 10^3$ ist. Wir erhalten für ein durchschnittliches Zählrohr und 520 Torr Methan mit 2% Wasserstoff etwa $4 \cdot 10^3$ als

maximale "proportionale" Gasverstärkung, was bei dem erheblichen Unterschied in den Messmethoden eine gute Übereinstimmung bedeutet.

6. WASSERSTOFF-METHAN-GEMISCHE ALS PROPORTIONALZÄHLGAS

Nach Auswahl des Methans als Beimischung zum Wasserstoff zur Herstellung unseres Zählgases, mussten dessen Zähligenschaften eingehend untersucht werden, da in der Literatur verschiedene Angaben über Wasserstoff-Methan-Zählgase vorliegen.^(2,16,18,19,63,71-74) Tests mit A^{37} (s. Kap. 3) ergaben zunächst, dass die

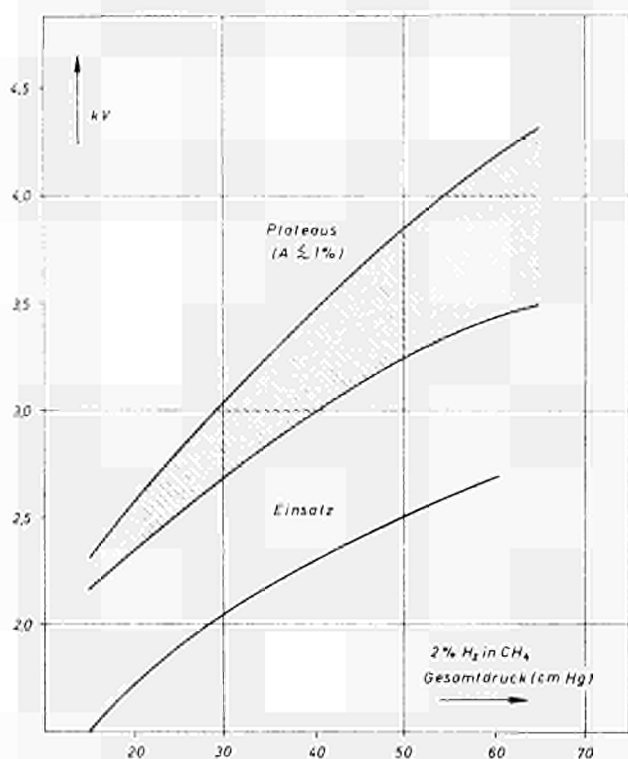


ABB. 8. Tritiumplateaus und Einsatzspannung bei Methan-Wasserstoff-Gemisch als Zählgas in Abhängigkeit vom Gesamtdruck.

Plateaus der L -Strahlung noch bis zu Primärenergien ausgedehnt waren, die einzelnen Elektronen entsprachen. Weitere Plateau-Untersuchungen wurden direkt mit Tritium im Zählgas durchgeführt, und zwar bei verschiedenem Gesamtdruck, verschiedenem Wasserstoffgehalt im Methan, bei Luftbeimischung und mit Zählrohren verschiedener Geometrie. Einige Ergebnisse sind in den Abb. 8–10 zusammengefasst. Es zeigt sich rein empirisch, dass Methan-Wasserstoff bis zu extremen Bedingungen gut als proportionales Zählgas brauchbar ist. Sind diese qualitativen Untersuchungen der Plateaus schon an sich befriedigend, so kann auch quantitativ gezeigt werden, dass die gemessenen Tritiumplateaus allein durch die Primärenergieverteilung bestimmt werden. Dazu muss aus anderen Messungen (s.w.u.) die Abschneideenergie E_0 , das ist die minimale nachgewiesene Primärenergie, in Abhängigkeit von der Hochspannung bekannt sein. Aus dem

theoretischen Tritiumspektrum kann dann ermittelt werden, welcher Bruchteil der Primärstrahlung gemessen wird. Korrigiert man mit diesen Daten die gemessenen Zählraten, so erhält man bei Zählrohren mit Feldrohren über viele Hundert Volt und bis weit unterhalb des Plateaus dieselben Werte für die Zerfallsrate. Dieses Ergebnis zeigt eindeutig, dass keine Störungen das Plateau beeinflussen⁽⁶³⁾. Diese Freiheit von Störeffekten wurde auch noch mit 3 anderen Messmethoden bestätigt. Erstens wurden bei einigen Messungen ein Quenchamplifier verwendet, ohne dass Änderungen in der auf die Totzeiten korrigierten Zählrate auftraten. Dieser Quenchamplifier* ist ein sehr empfindliches Gate, das den Eingang des Verstärkers nach jedem Impuls an dessen

* Wir danken Herrn Sattler von der Elektronikgruppe des BCMN für die Konstruktion dieses Quench-Amplifiers.

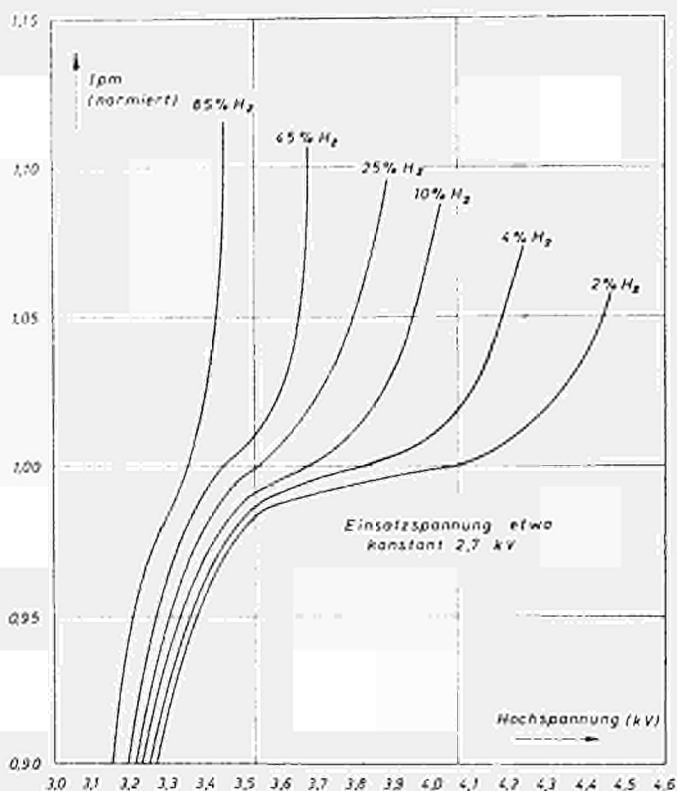


Abb. 9. Mit Methan-Wasserstoff-Zählgas gemessene Tritium-plateaus in Abhängigkeit vom Wasserstoffanteil im Zählgas.

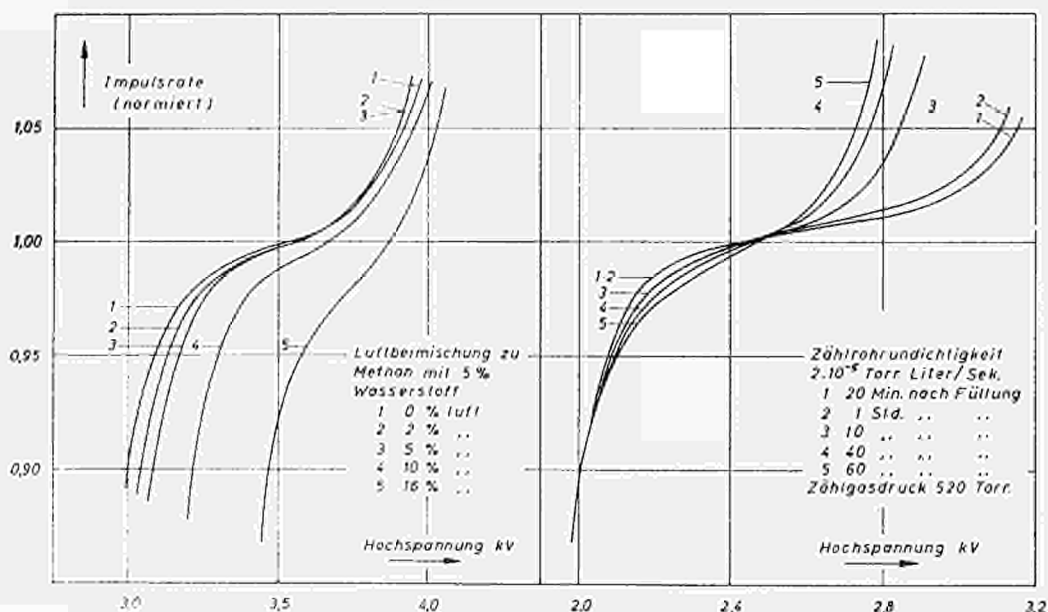
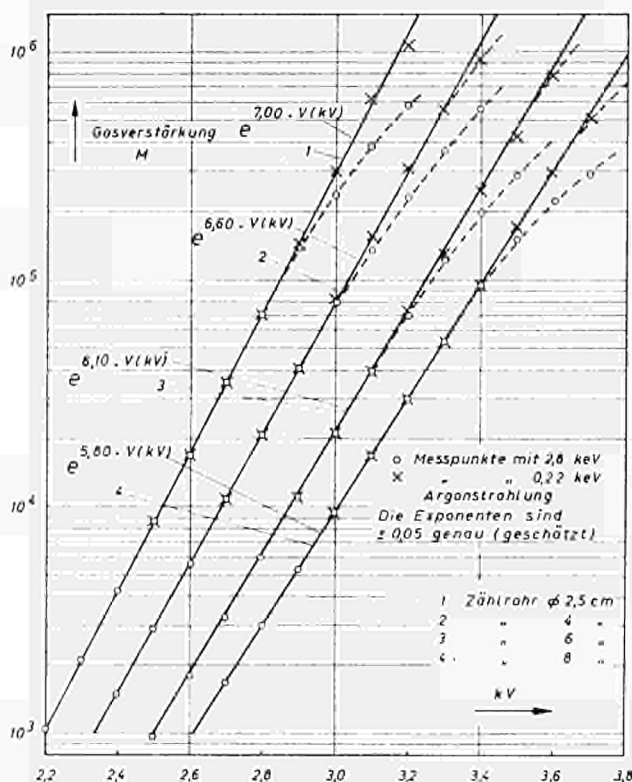


Abb. 10. Beispiele für den Einfluss von Luft auf die Form von Tritiumplateaus von Methan-Wasserstoff-Zählrohren (verschiedene Versuchsanordnungen).



Ann. 11. Gasverstärkung unserer Zählrohre verschiedenen Durchmessers bei Feldrohrschaltung und 520 Torr Methan mit 2% Wasserstoff. (Drahtdurchmesser 0,05 mm) (Für die Abschneideenergie gilt hier $E_a(eV) = 7,3 \cdot 10^6/M$).

Ausgang für eine bestimmte Zeit (hier 50 μsec) sperrt. Zweitens wurde mit einer von 2 bis 20 μsec variablen Totzeiteinheit hinter dem Diskriminator gemessen, ohne dass die korrigierten Zählraten Abweichungen zeigten. Drittens wurde mit einem Impulsabstand-Impulshöhen-Konverter⁽⁷⁵⁾ die zeitliche Verteilung der Impulsabstände zwischen 2 μsec und 5 msec gemessen. Es zeigte sich, dass die Impulsabstandsverteilung rein statistisch war. Alle diese Ergebnisse sind nur möglich, wenn keine Nachimpulse oder andersartige Störungen bei den Plateaumessungen auftreten. Für unsere Untersuchungen genügen aber nicht allein

„echte“ Plateaus, diese müssen auch über längere Zeit innerhalb etwa 0,1% reproduzierbar sein. Hierzu ergab sich überraschend, dass geringste Undichtigkeit der Zählrohre, vor allem bei grösserem Wasserstoffgehalt im Zählgas, zu Unstabilitäten führt^(77,78), obwohl noch grössere Zusätze Luft zu reinem Methan befriedigende Plateaus liefern (Abb. 10). Untersuchungen mit einem Helium Lecktester gestatteten uns, Dichtigkeiten von 10^{-8} Torr Lit/sec zu erreichen, bei denen die gewünschte Reproduzierbarkeit der Zählergebnisse über Wochen vorlag.

Auch das energetische Auflösungsvermögen der Methan-Wasserstoff-Zählgase ist von uns— vor allem mit A^{37} —unter verschiedenen experimentellen Bedingungen gemessen worden. Die hierbei minimal erreichte Auflösung war 18%

* Für die Konstruktion dieses Gerätes danken wir Herrn Winter von der Elektronikgruppe des BCMN, der auch das Manuskript kritisch durchgesehen hat.

für die 2,32 keV *K*-Linie des Argons und 95 % für die 220 eV *L*-Linie. Die Verwendung "wandloser" Zählrohre brachte keine merkbare Verbesserung des Auflösungsvermögens. Zusatz von bis zu 10 % Wasserstoff zum Methan änderte das Auflösungsvermögen kaum. Gute Zählrohre können Abweichungen bis zu 20–30 % von den oben angegebenen minimalen Werten des Auflösungsvermögens zeigen. Bei hohen Gasverstärkungen (s.w.u.) wird das Auflösungsvermögen sehr schnell schlechter⁽⁷⁶⁾, ebenso bei sehr kleinen Gasverstärkungen.

Für Absolutmessungen ist auch die Gasverstärkung der verwendeten Zählgase wichtig, die daher von uns ebenfalls untersucht wurde. Typische Ergebnisse dieser Messungen der Gasverstärkung zeigt zunächst die Abb. 11 für Zählrohre verschiedenen Durchmessers in Feldrohrschaltung. Bei Schutzrohrschaltung

liegen die Gasverstärkungen, die ja empirische Mittelwerte über das ganze Zählrohrvolumen darstellen, ein wenig niedriger, und zwar umso mehr, je kürzer die Rohre sind. Wichtig war vor allem die Untersuchung, wie stark die verschiedenen Zusätze zum Zählgas die Gasverstärkung beeinflussen. Es ergab sich u.a., dass Wasserstoffzusatz zum Methan bis zu 20 % die Gasverstärkung nicht mehr als bis zu einem Faktor 2 erhöht⁽¹⁸⁾ und die Form der Abhängigkeit von der Hochspannung kaum ändert. Keinen merklichen Einfluss hat Argonbeimischung zu Methan⁽³¹⁾, wenn der Argongehalt kleiner als 10 % ist. Bei 20 % Argon im Methan ist dann die Gasverstärkung schon um einen Faktor 5 höher als im reinen Methan. Luftzusatz verringert die Gasverstärkung ein wenig, jedoch selbst bei 10 % Luft im Methan um nicht mehr als etwa einen Faktor 2. Weiter

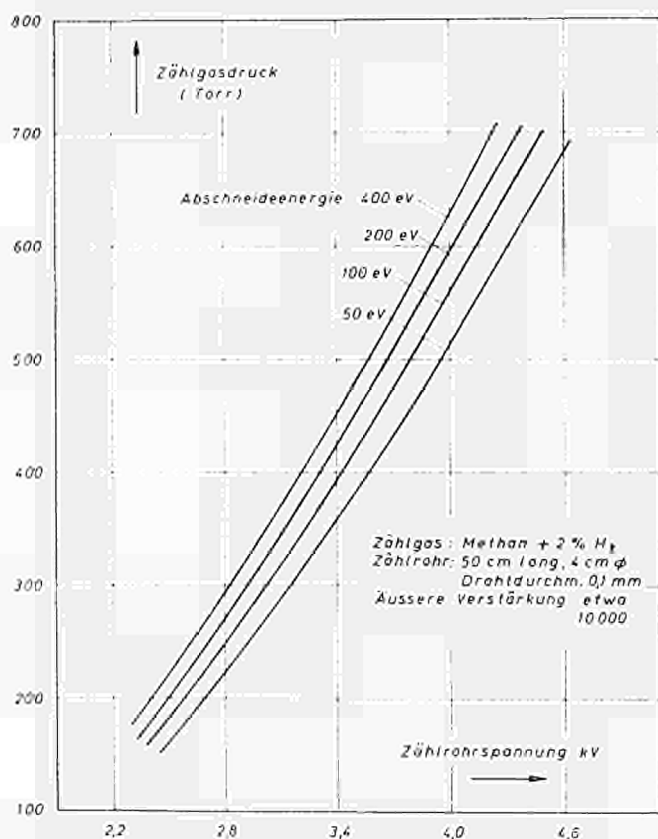


Abb. 12. Zusammenhang zwischen Abschneideenergie, Zählgasdruck und Hochspannung bei einer unserer Messanordnungen.

wurde untersucht, bis zu welchen Werten die Gasverstärkung in Methan-Wasserstoff-Mischungen unabhängig von der Primärenergie ist. Dieser maximale Wert proportionaler Gasverstärkung M_m ist wieder von der Primärenergie abhängig. Das Produkt von M_m mit der Primärenergie E (in eV) ist etwa $M_m E \approx 10^8$ für $E \approx 20$ keV und steigt auf etwa 10^9 für 200 eV Primärenergie (Zählgasdruck etwa 500 Torr.) Reduktion des Gasdrucks um einen Faktor 2 erhöht M_m um etwa einen Faktor 3, jedoch wird M_m bei Drucken unter etwa 200 Torr wieder viel schlechter. Wie wichtig unter diesen Umständen die Wahl optimaler Bedingungen für die Gasverstärkung ist, zeigt als Beispiel das unter etwa optimalen Bedingungen (auch der geometrischen Verhältnisse und der Zählrate) gemessene Tritiumspektrum der Abb. 6, dessen Curieplot bis etwa 300 eV linear ist, was im Allgemeinen schwierig zu erreichen ist. Dieses Ergebnis zeigt auch noch einmal die Güte der verwendeten Zählgase und Zählrohre.

Aus der gemessenen Gasverstärkung lässt sich bei vorgegebener äusserer Verstärkung und Diskrimination die Abschneideenergie E_a , die minimale nachweisbare Primärenergie, bestimmen. Es gilt für eine konstante Aufstellung immer $ME_a = \text{const.}$ Diese Abschneideenergie ist für uns sehr wichtig, da sie zur Korrektur auf Nichtzählung geringenergetischer Zerfälle dient (s. III.) Daher wurde sie, bzw. die Gasverstärkung, für die verschiedenen experimentellen Bedingungen eingehend untersucht. Die Abb. 12 zeigt noch einmal als Beispiel typische Daten für die Abhängigkeit der Abschneideenergie von dem Zählgasdruck und der Hochspannung.

Andere Effekte, die unsere Messungen beeinflussen könnten, wie Rekombination,^(79,80) Temperaturschwankungen⁽¹⁵⁾, Gasverbrauch im Zählrohr⁽⁷⁴⁾, Unsauberkeiten der Gase, Einfluss von Hahnfett⁽⁸¹⁾, Quecksilber u.a. wurden ebenfalls empirisch untersucht. Es ergab sich, dass sie auch unter den extremsten bei uns vorkommenden Bedingungen vernachlässigbar sind. Nur die Rekombinationseffekte liessen sich experimentell nicht erfassen, da keine Abhängigkeit der Zählraten oder des Auflösungsvermögens vom Druck, Zählrohrradius oder der Gasverstärkung (Dichte der geladenen Teilchen) gefunden wurde, die nicht anders erklärbar war. Eine grobe Abschätzung

bestätigt, dass die Rekombinationseffekte sicher vernachlässigbar sind.

7. ZÄHLELEKTRONIK

Der Aufbau elektronischer Zählapparaturen ist an vielen Stellen zusammenfassend diskutiert. Daher soll hier nur auf die bei Messungen kleiner Energien auftretenden besonderen Schwierigkeiten eingegangen werden. Sie gleichen in vieler Hinsicht den Schwierigkeiten bei der Messung kleiner Energien mit der Ionisationskammer, die von GILLESPIE⁽⁸²⁾ eingehend behandelt wurden.

Während die meisten elektronischen Kenndaten nur schwierig optimal für unsere Messbedingungen zu bestimmen sind, ist es sehr einfach, die optimale Zählrohrkapazität (einschl. der Kapazität des Verstärkereingangs und der Kopplungselemente zwischen Zählrohr und Verstärker) anzugeben. Sie muss in jedem Fall so gering wie möglich sein. Da normale Zählrohre mit einem Verhältnis von Manteldurchmesser zum Drahtdurchmesser von 100 bis 1000 etwa 0,1 pF Kapazität per cm, also Gesamtkapazitäten kleiner als 10 pF haben, kommt es wesentlich darauf an, die Kapazität der anderen Elemente zwischen Zählrohr und Gitter der Eingangsröhre des Verstärkers klein zu halten. Dies ist immer so möglich, dass die Gesamtkapazität des Zählrohrs plus Ankopplung kleiner als etwa 20 pF ist.

Die optimalen Daten für die Verstärkung und die Differentiations- und Integrationszeitkonstanten des Verstärkers^(83,84)—die das Verhalten der Zähllektronik hauptsächlich bestimmen—sind durch die zu messende Energie und Zählrate, sowie durch die Eigenschaften des Gaszählrohres bestimmt. Die kleine zu messende Energie und die vorteilhafte Verwendung nicht zu hoher Gasverstärkungen zwingt zum Gebrauch grosser äusserer Verstärkungen bis zu 10^5 und mehr. Dies hat zur Folge, dass das Signal-Rausch-Verhältnis gross sein muss⁽⁸⁵⁾ und der Verstärker auch bei sehr starker Übersteuerung nicht erheblich blockieren darf⁽⁸⁴⁾. Diese beiden Forderungen, die Forderung nach Unabhängigkeit der Impulshöhe vom Entstehungsort der Ladungen im Zählrohr und die Anstiegszeit T der Zählrohrimpulse selbst ("Sammelzeit der Elektronen") bestimmen dann

die Wahl der Differentiations- und Integrationszeitkonstanten und deren Anordnung im Verstärker. Die Wahl der Differentiationszeitkonstanten T_d ist verhältnismässig einfach, da nur für deren Werte, die mindestens 2–3 Mal grösser als T sind, die Proportionalität der Ausgangsimpulshöhe zur Primärenergie gewährleistet ist⁽⁸²⁾. Da hier T immer zu kleiner als $0,4 \mu\text{sec}$ gemessen wurde (10–90% Anstieg), wurde für T_d im allgemeinen $0,5 \mu\text{sec}$ gewählt (10–90% in etwa $0,8 \mu\text{sec}$). Ist die Differentiationszeitkonstante T_d gewählt, so kann für optimales Signal-Rausch-Verhältnis die Integrationskonstante T_i noch zwischen etwa $0,3$ und $3 T_d$ gewählt werden⁽⁸²⁾. Wir haben wegen der besseren Überladungseigenschaften T_i zu etwa $0,1 \mu\text{s}$ gewählt, was einer Verstärkerbandbreite von etwa 2 MHz entspricht. Es bleibt nun noch, die beste Anordnung der Differentiationskonstanten im Verstärker herauszufinden. Im allgemeinen wird die Differentiation nach der ersten Verstärkerstufe durchgeführt, da sie dann auch für das Rauschen (im Wesentlichen Schrotrauschen und eventuell Gitterrauschen) wirksam ist. Das ist nicht bei allen Verstärkerkonstruktionen möglich, da dann schon Überladungsschwierigkeiten entstehen. Daher haben wir z.B. in der meist gebrauchten Anordnung direkt am Zählrohrausgang und zusätzlich nach der ersten Stufe mit einer 10–100 fach grösseren Zeitkonstante noch einmal differentiert. Während man in der ersten Anordnung Rauschspannungen von wenigen μV erhalten kann, hatten wir Rauschamplituden von $20 \mu\text{V}$ (entsprechend eintausendfünfhundert primären Ionenpaaren am Verstärkereingang).

Es ist sehr wichtig, die gesamte elektronische Anordnung öfter sorgfältig auf Linearität (einschliesslich Vielkanalanalysator) und Konstanz der Verstärkung zu prüfen. Dazu ist die Anbringung eines Testimpulseingangs mit einem sehr kleinen Kondensator direkt auf den Draht unerlässlich.

8. ZUSAMMENFASSUNG

Aus unseren Untersuchungen ergibt sich insgesamt, dass Internal-Gas-Zählrohre bei sorgfältiger Konstruktion und Zählgaswahl sehr gut für $0,1\%$ präzise Messungen der Zählrate verwendet werden können. Insbesondere ergab

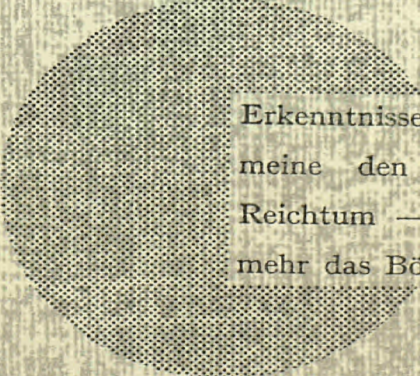
sich, dass bei kleinen Zerfallsenergien die Feldrohrschaltung der Zählrohre gebraucht werden sollte und dass Methan-Wasserstoff-Gemische sehr gute Zählgase für Proportionalzähler darstellen.

LITERATUR*

1. CURRAN S. C. *Handb. Phys.* **45**, 174 (1958).
2. CURRAN S. C. *Metrology of Radionuclides*, IAEA, p. 353 (1960).
3. CURRAN S. C. *Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy* (Ed. K. SIEGBAHN), p. 165 (1955).
4. GASTROUSIS C., HEINRICH R. und CROUTHAMEL C. E. *Progress in Nuclear Energy Ser. IX*, Vol. 2, p. 1 (1961).
5. WEST D. *Prog. Nucl. Phys.* **3**, 18 (1953).
6. SEIBEL G. *Vide* **16**, 189 (1961).
7. RALEIGH H. D. und SCOTT R. L. TID-3550 (Bibliographie) (1961).
8. DROUIN J. R. S. und YAFFEE L. *Canad. J. Chem.* **39**, 717 (1961).
9. SANTOS OCAMPO A. G. TID-13490 (1961).
10. MULVEY T. und CAMPBELL A. J. *Brit. J. appl. Phys.* **9**, 406 (1958).
11. BISI A. und ZAPPA L. *Nuovo Cim.* **2**, 988 (1955).
12. HENDEE C. F. und FINE S. *Phys. Rev.* **95**, 281 (1954).
13. WILLIAMS A. und SARA R. J. *Int. J. appl. Rad. Isotopes* **13**, 229 (1962).
14. KISER R. *Appl. sci. Res. Hague* **B8**, 183 (1960).
15. MELLISH C. E. und PAYNE J. A. AERE—M 794 (1960).
16. RAMAKRISHNA S. *Proc. Ind. Acad. Sci.* **51A**, 117 (1960).
17. DUUREN K. VAN und SIZOO G. J. *Appl. sci. Res., Hague* **B7**, 379 (1959).
18. DIETHORN W. NYO-6628 (1956).
19. CHUBB T. A. NRL-4814 (1956).
20. RAETHER H. *Ergebn. Exact. Naturw.* **33**, 175 (1961).
21. RICHTER K. Z. *Phys.* **157**, 130 (1959).
22. SCHMIDT-TIEDEMANN K. J. Z. *Naturf.* **14a**, 989 (1959).
23. CAUCHOIS Y. J. *Phys. Radium* **16**, 253 (1955).
24. HILL R. D. *Beta- and Gamma-ray Spectroscopy* (Ed. K. SIEGBAHN), p. 914 (1955).
25. MANDUCHI G. und ZANNONI G. *Nuovo Cim.* **22**, 462 (1961).
26. SANTOS OCAMPO A. G. und CONWAY P. C. *Phys. Rev.* **120**, 2196 (1960).

* Von einigen Hundert durchgesehenen Publikationen werden nur die unserer Ansicht nach wichtigeren oder schwer zu findenden Arbeiten zitiert. Diese Auswahl ist also ziemlich willkürlich, jedoch so getroffen, dass über die zitierten Arbeiten fast alle anderen gefunden werden können.

27. KISER R. W. und JOHNSTON W. H. *J. amer. Chem. Soc.* **81**, 1810 (1959).
28. LANGEVIN M. und RADVANYI P. *C.R. Acad. Sci., Paris* **241**, 33 (1955).
29. RAMSDEN D. AWRE NR/P-3/62 (1962).
30. COVERT R. A. NYO-9155 (1961).
31. KOROLEV G. A. und KOCHAROV G. E. *Izv. Akad. Nauk* **25**, 866 (1961).
32. HERCZYNSKA E. *Naturwissenschaften* **46**, 169 (1959).
33. KELLY D. ALIAGA *Nucl. Power* **4**, 111 (1959).
34. DE VRIES H. L., STRUIVER M. und OLSSON J. *Nucl. Instrum. Meth.* **5**, 111 (1959).
35. WOLFGANG R. und MACKAY C. F. *Nucl.* **16**, (10) 69 (1958).
36. GROUSE P. J. und RATHGEBER H. D. *Nuovo Cim.* **5**, 707 (1957).
37. BATCHELOR R., AVES R. und SKYRME T. H. R. *Rev. sci. Instrum.* **26**, 1037 (1955).
38. BLANC M. D. *J. Phys. Radium* **16**, 681 (1955).
39. SIMON H., DANIEL H. und KLEBE J. F. *Z. angew. Chem.* **71**, 303 (1959).
40. CHRISTMAN D. R. und PAUL C. M. *Analyt. Chem.* **32**, 131 (1960).
41. SHEARIN P. E. und HOOVER R. L. *Phil. Mag.* **6**, 987 (1961).
42. COCKROFT A. L. und CURRAN S. C. *Rev. sci. Instrum.* **22**, 37 (1951).
43. WEST D. und BRADLEY E. F. *Phil. Mag.* **2**, (8) 957 (1957).
44. ITO R. *J. phys. Soc. Japan* **7**, 256 (1952).
45. SIKKEMA C. P. *Nucl. Instrum. Meth.* **1**, 148 (1957).
46. BLACHMANN N. M. *Rev. sci. Instrum.* **20**, 477 (1949).
47. ORIENT O. *Mag. Fiz.* **5**, 395 (1957).
48. LANG A. R. *J. sci. Instrum.* **33**, 96 (1955).
49. CURRAN S. C., ANGUS J. und COCKROFT A. L. *Phil. Mag.* **40**, 36 (1949).
50. KOBAYASHI S. und YADA H. *Adv. Vac. sci. Techn.* **1**, 248 (1960).
51. MELHUSH W. H. *N.Z. J. Sci.* **3**, 549 (1960).
52. HEALY J. W. und SCHWENDIMAN L. C. *Radiation Res.* **4**, 278 (1956).
53. COLLINGE L. *Proc. phys. Soc.* **B**, 63, 665 (1950).
54. O'BRIEN B. J. *Proceedings of the IAEA Conference on Tritium in the Physical and Biological Sciences*, Vol. 1, p. 343 (1962).
55. LEWIS J. E. AECU-4232 (1959).
56. MOSES V. und FOWLER J. F. *Nature, Lond.* **186**, 538 (1960).
57. MEUNIER P., BONPAS M. und LEGRAND J. P. *J. phys. Rad.* **14**, 630 (1953).
58. FÜNFER E. und NEUERT H. *Naturwissenschaften* **37**, 20 (1950).
59. COECKELBERGS R., FRENNET A. und LIENARD G. *Proceedings of the IAEA Conference on Radioisotopes in the Physical Sciences and Industry*, Vol. 2, p. 193 (1962).
60. ÖSTLUND G. *Proceedings of the IAEA Conference on Tritium in the Physical and Biological Sciences*, Vol. 1, p. 333 (1962).
61. WOLF C. J. und JOHNSTON W. H. *Phys. Rev.* **125**, 307 (1962).
62. BAINBRIDGE A. E., SANDOVAL P. und SUESS H. E. *Science* **134**, 552 (1961).
63. ENGFER R. Dipl. Arbeit, Darmstadt (1960).
64. BLANC D. und CABE J. *J. Phys. Rad.* **21**, 92A (1960).
65. BOCHKAREV V. V. und BAJENOV V. A. *Proceedings of the IAEA Conference on Metrology of Radionuclides*, p. 317 (1960).
66. COLLINSON A. J. L., DEMETSPOULLUS J. C., DENNIS J. A. und ZARZYCKI J. M. *Nature, Lond.* **185**, 369 (1960).
67. TYKVA R. und GRÜNBERGER D. *Coll. Czesk. Chem. Comm.* **25**, 2464 (1960).
68. BANKS T. E., BLOW L. W. und FRANCIS G. E. *Biochem. J.* **64**, 408 (1956).
69. WING J. und JOHNSTON W. H. *Science* **121**, 674 (1955).
70. HANNA C. G. und PONTECORVO B. *Phys. Rev.* **75**, 985 (1949).
71. WHITHNELL R. *Nucl. Instrum. Meth.* **14**, 279 (1962).
72. BEK-UZAROV D. N. und RZESZOT T. K. *Bull. Inst. nucl. Sci. "Boris Kidrich"* **11**, 277 (1961).
73. WOLFGANG R. L. und LIBBY W. F. *Phys. Rev.* **85**, 437 (1952).
74. FARMER E. C. und BROWN S. C. *Phys. Rev.* **74**, 902 (1948).
75. PUTMAN J. L. *Proc. phys. Soc. Lond.* **61**, 312 (1948).
76. MIZE J. P. und ZAFFARANO D. J. ISC-513, LR-260 (1955).
77. SMITH C. F. und CONWAY D. C. *Rev. sci. Instrum.* **33**, 726 (1962).
78. CONWAY D. C. *J. chem. Phys.* **36**, 2549 (1962).
79. LOEB L. *Basic Processes of Gaseous Electronics*, University of California Press (1960).
80. NOWAK E. J., KURZIUS S., DECKERS J. und BOUDART M. PB-171512 (1960).
81. VAN SLYKE D. et al. *Biol. Chem.* **192**, 769 (1951).
82. GILLESPIE A. B. *Signal, Noise and Resolution in Nuclear Counter Amplifiers*, Pergamon Press London (1953).
83. CHASE R. L. *Nucl.* **16**, (11) 116 (1958).
84. FAIRSTEIN E. ORNL-3348 (1962).
85. GILBERT B. LS-87 *Bibliography of Low Noise Amplifiers* (1960).



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

Alfred Nobel

CDNB01400DEC