

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 3

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT - EURATOM

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

Absolutzählung von Tritium im Internal-Gas-Zählrohrer

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, 241-254. 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, 241-254 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, 241-254. 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, 241-254. 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, 241-254. Meer exemplaren kunnen besteld worden bij Pergamon Press Ltd. — 6 Headington Hill Hall, Oxford (England).

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 3

PRÄZISE ABSOLUTMESSUNG DER AKTIVITÄT VON TRITIUM—III
Absolutzählung von Tritium im Internal-Gas-Zählrohr 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 241-254.

Es wird eine Methode zur absoluten Bestimmung der Aktivität von tritium-
markiertem Wasser mit einer Reproduzierbarkeit von 0,1-0,2 % und einer
absoluten Genauigkeit von 0,3-0,4 % im Detail angegeben. In zwei früheren
Teilen der Arbeit wurde über die Zählgaszubereitung und die Wirkungsweise
und Konstruktion der verwendeten Zählrohre berichtet. Hier wird die Zählung
selbst, und insbesondere die für die Präzision entscheidenden Korrekturen
diskutiert.

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 3

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—III
Absolute counting of tritium in the internal gas counter 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. 241-254.

A method of 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 two parts contained the method of preparation of the counting
gas and a description of the internal gas counters used, in the third part here
the counting procedure and its systematic errors are discussed.

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 3

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—III
Absolute counting of tritium in the internal gas counter 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. 241-254.

A method of 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 two parts contained the method of preparation of the counting
gas and a description of the internal gas counters used, in the third part here
the counting procedure and its systematic errors are discussed.

EUR 1400.d

REPRINT

TEIL 3

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—III
Absolute counting of tritium in the internal gas counter by A. SPERNOL
and B. DENECKE.

European Atomic Energy Community - EURATOM.

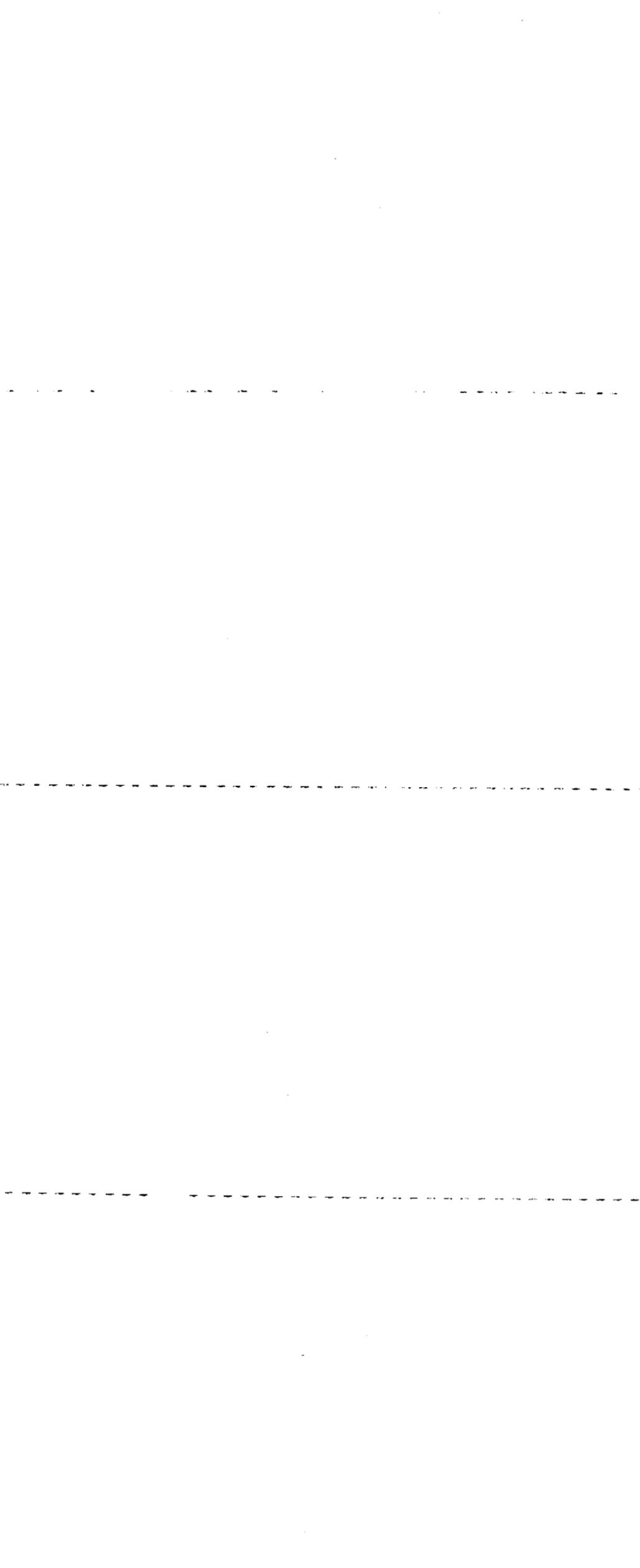
Joint Nuclear Research Center.

Geel Establishment - Belgium.

Central Nuclear Measurements Bureau - CNMB.

Reprinted from "The International Journal of Applied Radiation and Isotopes"
Vol. 15 - 1964 - pp. 241-254.

A method of 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 two parts contained the method of preparation of the counting
gas and a description of the internal gas counters used, in the third part here
the counting procedure and its systematic errors are discussed.



Reprinted from

The International Journal of
APPLIED RADIATION
AND ISOTOPES



PERGAMON PRESS

OXFORD • LONDON • NEW YORK • PARIS

Präzise Absolutmessung der Aktivität von Tritium—III

Absolutzählung von Tritium im Internal-Gas-Zählrohr

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. In zwei früheren Teilen der Arbeit wurde über die Zählgaszubereitung und die Wirkungsweise und Konstruktion der verwendeten Zählrohre berichtet. Hier wird die Zählung selbst, und insbesondere die für die Präzision entscheidenden Korrekturen diskutiert.

HIGH PRECISION ABSOLUTE GAS COUNTING OF TRITIUM—III ABSOLUTE COUNTING OF TRITIUM IN THE INTERNAL GAS COUNTER

A method of 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 two parts contained the method of preparation of the counting gas and a description of the internal gas counters used, in the third part here the counting procedure and its systematic errors are discussed.

АБСОЛЮТНЫЙ ГАЗОВЫЙ ПОДСЧЕТ ТРИТИЯ С ВЫСОКОЙ ТОЧНОСТЬЮ—III ХАРАКТЕРИСТИКИ И УСТРОЙСТВО ВНУТРЕННИХ ГАЗОВЫХ СЧЕТЧИКОВ, ОСОБЕННО ДЛЯ СМЕСЕЙ ВОДОРОДА И МЕТАНА

Детально описывается метод определения активности содержащих тритий образцов воды с воспроизводимостью 0,1–0,2% и абсолютной точностью в 0,3–0,4%.

Первые две части содержат метод приготовления счетного газа и описание применявшихся внутренних газовых счетчиков. В этой третьей части обсуждаются процедура подсчета и ее ошибки.

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

COMPTAGE ABSOLU DU TRITIUM DANS LA COMPTEUR A GAZ INTERIEUR

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. Les deux premières parties contenaient la méthode de préparation du gaz à comptage et rend compte des compteurs à gaz intérieur employés, dans cette troisième partie on discute le procédé de comptage et les erreurs systématiques qu'il comporte.

1. EINLEITUNG

Bei dem Internal-Gascounting-Verfahren⁽¹⁾ wird der aus der zu untersuchenden Wasserprobe dargestellte Wasserstoff, wie oben⁽¹⁾ angegeben,

mit einem Zählgas gemischt, in ein Gaszählrohr gefüllt und gezählt. Aus der auf den Nulleffekt und Zählverlust korrigierten Zählrate N (ipm = Impulse pro Minute) ergibt

sich dann die spezifische Aktivität a des untersuchten tritierten Wassers zu

$$a = \frac{NKV_0}{2220 WADV_{\text{eff}}} (\mu\text{C/g})^* \quad (1)$$

worin K die Korrektur auf die Nichtzählung geringenergetischer Zerfälle, W die Wasserwaage in mg, A die Ausbeute bei der Wasserstoffdarstellung (hier im allg. 1), D der Gesamtverdünnungsfaktor bei der Zählgaszubereitung, V_{eff} das auf alle Randeffekte korrigierte Zählvolumen und V_0 das Gesamtgasvolumen bei der Zählrohrfüllung bedeuten. Die Präzision der Aktivitätsangabe hängt nach (1) direkt von den bei der Zählung notwendigen Korrekturen ab, und zwar der Korrektur der Nichtzählung aller Zerfälle, bei denen weniger Energie im sensitiven Zählvolumen dissipiert wird als minimal nachgewiesen werden kann und zweitens der verschiedenen Korrekturen auf Randeffekte, die alle im effektiven Volumen berücksichtigt werden. Da diese Korrekturen 5 Prozent und mehr betragen können, bestimmen sie die gesamte Genauigkeit der Messung. Sie sind daher von uns sehr eingehend untersucht und meistens auf mehreren Wegen möglichst präzise ermittelt worden. Darüber wird im Wesentlichen in diesem Teil der Arbeit berichtet. Nicht diskutiert werden die einfachen Korrekturen des Nulleffekts und des Zählverlusts, sowie der statistische Fehler der Zählungen. Übliche Werte für den Nulleffekt sind etwa 1 ipm/cm³ für mittlere Zählrohre (etwa 0,5 l.), bis zu 2 ipm/cm³ bei kleineren Rohren und bis 0,5 ipm/cm³ bei grösseren Rohren. Um eine präzise Totzeitkorrektur zu ermöglichen, empfiehlt es sich, alle auftretenden Totzeiten gegenüber einer einzigen klein zu machen und diese bestimmende Totzeit möglichst weit vorn in der Elektronik zu placieren. Die resultierende Totzeit der Gesamtapparatur sollte mit zwei unabhängigen Methoden be-

stimmt werden, da alle Methoden nur bedingt richtig sind (z.B. wird sehr oft übersehen, dass die viel verwendete Zweiquellenmethode bei Verwendung normaler Verstärker nur für die Diskriminierung 0 exakt gültig ist). Es wird im Folgenden immer angenommen, dass die Korrekturen auf Nulleffekt und Totzeit an den unmittelbaren Messergebnissen sofort angebracht werden. Ebenso wird angenommen, dass bei jeder Zählung mindestens 10⁶ Impulse gezählt werden, so dass der statistische Fehler immer kleiner als 0,1 Prozent bleibt.

2. THEORETISCHES TRITIUMSPEKTRUM UND EFFEKTE, DIE ZU DESSEN VERZERRUNG FÜHREN

Die Ermittlung der Korrektur auf die Nichtzählung geringenergetischer Zerfälle ist einfach, wenn das theoretische Tritiumspektrum, das auch experimentell weitgehend bestätigt wurde,⁽²⁻⁷⁾ wirklich gemessen wird. Dann genügt nämlich eine Bestimmung der Abschneideenergie E_a , der minimal mit der Zählordnung nachweisbaren Primärenergie, mit der aus dem integralen Tritiumspektrum sofort die Korrektur ("Abschneidekorrektur") angegeben werden kann (s. Beispiel in Abb. 1). Leider wird das theoretische Spektrum niemals gemessen, da von den vielen verzerrenden Effekten einige nicht eliminierbar sind. Da das effektive Spektrum für die Bestimmung der Abschneidekorrektur ausschlaggebend ist, werden diese verzerrenden Effekte hier genauer untersucht, um sie so gering wie möglich halten zu können.

Das theoretische differentielle Tritiumspektrum kann beschrieben werden durch:

$$N(W) dW = \frac{\text{Const. } W \sqrt{W^2 - 1} (W_{\text{max}} - W)^2 dW}{\sqrt{W - 1} \{1 - \exp(-0,065/\sqrt{W - 1})\}} \quad (2)$$

worin W die Gesamtenergie der Zerfallselektronen im Rossisystem und W_{max} die maximale Zerfallsenergie (18,5 keV^(2,3,5)) bedeuten und wobei der Coulombfaktor nach BLATT und WEISSKOPF⁽⁸⁾ mit $2m/(1 - \exp(-2m))$ und $m = Ze^2/hv$ beschrieben wird. Letzteres stimmt besser als 1 Prozent mit den von ROSE⁽⁹⁾

* 1 g reines Tritium hätte eine spez. Aktivität von 9670 C, das T/H-Atomzahlverhältnis ergibt sich für eine Wasserprobe bei der Gaszählung aus der Zählrate N (ipm), dem Wasserstoffdruck p (cm Hg) und dem Zählvolumen V (cm³) zu etwa $0,141 \cdot 10^{-10} N/pV$, die Aktivität unverseuchten natürlichen Wassers mit etwa $2 \cdot 10^{-18}$ Atomen T pro Atom H ergibt sich dann zu etwa 0,0144 ipm/g.

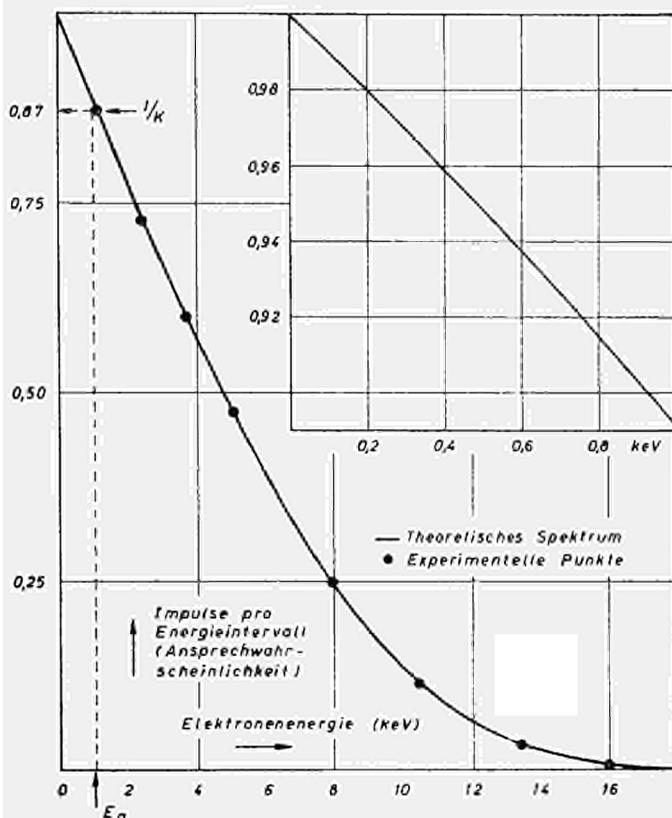


Abb. 1. Integrales Tritiumspektrum (Die "Abschneidekorrektur" K wird daraus mit Hilfe der gemessenen Abschneideenergie E_a bestimmt; im Beispiel oben erhält man bei $E_a = 1$ keV für $K = 1/0,87$, was bedeutet, dass 13% der geringenergetischen Zerfälle nicht nachgewiesen werden).

angegebenen numerischen Werten überein.^(7,10) Durch numerische Integration ist aus (2) das integrale Tritiumspektrum der Abb. 1 gewonnen worden, das für die Ermittlung der Abschneidekorrektur verwendet wurde.

Zu den stärksten Verzerrungen des Spektrums kann die Nichtproportionalität der Gasverstärkung (zur Primärenergie) bei hohen Spannungen führen (s. II, * Kap. 5). Für Zählmessungen ist es in erster Linie nur wichtig, ob bei dieser Verzerrung des Spektrums auch die Zählraten verfälscht werden. Numerische Integration verschieden stark verzerrter Spektren zeigte, dass dies nicht der Fall ist. Für die Bestimmung der Abschneidekorrektur bleibt

* Die beiden früheren Teile der Arbeit werden hier immer als I und II zitiert.

diese Verzerrung aber störend und kann nur durch Wahl geeigneter Zählgase und kleiner Gasverstärkungen eliminiert oder reduziert werden. Der zweite, stark das Spektrum verzerrende Effekt ist die anomale Gasverstärkung an den Enden des sensitiven Zählvolumens bei Schutzrohrschaltung (s. II). Dieser Effekt ist so erheblich, dass es für hohe Präzision unumgänglich scheint, durch Feldrohrschaltungen diese Verzerrung ganz zu vermeiden.

Nur schwierig vermeidbar sind alle weiteren Randeffekte, die das Spektrum (und die Zählrate) verfälschen (s. II). Es bleibt nur übrig, sie gut zu untersuchen und durch Wahl der Messbedingungen (Gas, Gasdruck) so klein wie möglich zu halten. Eine weitere Verzerrung der Spektren

wird durch das endliche energetische Auflösungsvermögen der Nachweisapparatur verursacht.⁽¹¹⁻¹⁵⁾ Und zwar gilt die folgende Beziehung zwischen dem theoretischen Spektrum $N(E)$ und dem gemessenen $M(E)$ (wenn nur die Verzerrung durch das endliche Auflösungsvermögen betrachtet wird):

$$M(E) = \int dE' N(E') P(E, E') \quad (3)$$

wobei $P(E, E')$ die Wahrscheinlichkeit darstellt, dass ein Elektron der (theor.) Energie E' im Energieintervall E bis $E + dE$ nachgewiesen wird. Nimmt man für $P(E, E')$ eine Gaussfunktion mit der mittleren Streuung $s = t/2,36$ ($t =$ experimentelle Halbwertsbreite einer Linie = Auflösungsvermögen) an, so erhält man aus (3)

$$M(E) = \int_0^{\infty} dE' \cdot N(E') \cdot e^{-(E-E')^2/2s^2} / s \sqrt{2\pi}. \quad (4)$$

Will man das Integral numerisch auswerten, muss noch die Energieabhängigkeit des Auflösungsvermögens bekannt sein. Aus unseren Messungen an der 2,82 keV und 220 eV Strahlung des Argons ($t = 0,19$ bzw $0,90$) ergibt sich für t bei Annahme eines Potenzgesetzes $t/2,36 = s = 0,15 \cdot E^{-0,60}$ (E in keV) (s.a. II. Kap. 3). Das Integral (4) mit dem angegebenen Wert für s haben wir numerisch bestimmt. Das Ergebnis zeigt die Abb. 2. Bei unseren Zählmessungen dürfte die Korrektur meist vernachlässigbar sein, bei Energiemessungen ist sie aber immer zu beachten. Das Auflösungsvermögen des Zählrohres kann bei nicht sorgfältigem Aufbau der Apparatur durch Rauschen, Schwankungen der Verstärkung und Hochspannung und andere Effekte erheblich verschlechtert werden und damit die Verzerrung erhöht werden. Eine Kontrolle ist daher immer angebracht. Weitere das Spektrum möglicherweise verzerrende Effekte sind

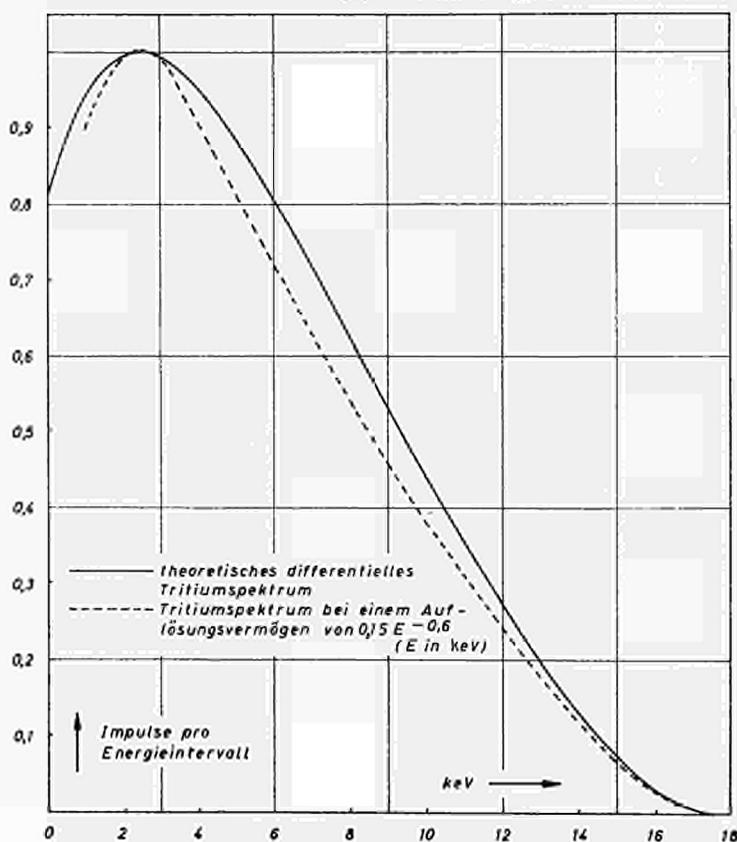


ABB. 2. Verzerrung des Tritiumspektrums durch das endliche Auflösungsvermögen der Messanordnung.

Entkommen von Bremsstrahlung, Anregung atomarer Elektronen und Neuordnung der Hülle nach dem β -Zerfall (die Abschirmung durch Hüllenelektronen muss theoretisch korrigiert werden). Alle diese Effekte machen sich nur bei kleinen Energien bemerkbar und dürften für unsere Untersuchungen immer vernachlässigbar sein.⁽¹⁶⁾

3. BESTIMMUNG DER ABSCHNEIDEENERGIE

Alle Korrekturen der Nichtzählung geringenergetischer Zerfälle beruhen auf der Kenntnis der Abschneideenergie E_a (cut-off energy). Diese Energie E_a ist die minimal im Zählrohr für einen Nachweis zu dissipierende Energie. Es wird also kein Zerfall registriert, bei dem weniger Energie als E_a im Zählrohr dissipiert wird. (Diese nichtgezählten Zerfälle müssen bei Absolutmessungen korrigiert werden.) Die Abschneideenergie ist von der Gasverstärkung (also Zählrohrhochspannung), der äusseren Verstärkung, der Diskriminatoreinstellung, der Zählrohrkapazität und der Art der Impulsformung im Verstärker abhängig, so dass sie theoretisch nur schlecht zu ermitteln ist. Daher wird sie im allgemeinen für eine feste Aufstellung in Abhängigkeit von der Hochspannung des Zählrohres gemessen. Und zwar ist die Methode immer die Bestimmung der Ausgangsimpulshöhe einer bekannten im Zählrohr dissipierten Energie (in dem interessierenden Energiebereich). Aus der dadurch erhaltenen Zuordnung zwischen einer Primärenergie und deren Ausgangsimpulshöhe lässt sich auch die Abschneideenergie berechnen, die der Primärenergie entspricht, deren zugeordnete Impulshöhe unter den vorgegebenen Bedingungen der Diskriminatorschwelle entspricht. Als Eichsubstanz, die die benötigte bekannte Primärenergie liefert, kann hier Tritium oder A^{37} verwendet werden. Im ersteren Fall muss ein Spektrum aufgenommen und ein Curieplot gezeichnet werden, dessen Endpunkt 18,5 keV Primärenergie^(2,3,5) entspricht. Bei Verwendung von A^{37} kann man in zweierlei Art vorgehen, entweder das Argon wird dem endgültigen Zählgas beigemischt, das also auch das zu messende Tritium enthält, oder es wird bei gleicher Zählrohrfüllung wie bei der Tritiummessung die Abschneideenergie

bei einer separaten Füllung der Zählrohre bestimmt. Die letztere Methode erwies sich als präziser, da bei der ersten die Subtraktion der Argonzählrate von der Gesamtzählrate nicht fehlerfrei möglich ist. Zur Bestimmung der Abschneideenergie ist die präzise Kenntnis der dissipierten Energie nötig. Aus den für unsere Messbedingungen (525 Torr Methan + 2,5 Prozent Wasserstoff bei Standardmessungen) angenommenen Energien für die dissipierte K - und L -Energie des A^{37} von 2,82 keV und 220 eV (s. II. Kap. 3) erhalten wir für die Abschneideenergie innerhalb etwa 3 Prozent übereinstimmende Werte. Daraus folgt, dass die Wahl der Energien (vor allem der L -Peak-Energie) etwa richtig sein sollte. Mit der diskutierten Methode zur Bestimmung der Abschneideenergie wurde diese hier mit recht guter Präzision in Abhängigkeit von der Zusammensetzung des Zählgases, in Abhängigkeit vom Druck, vom Zählrohrdurchmesser, vom Zählrohrdrahtdurchmesser und für Feldrohr- und Schutzrohrschaltung ermittelt. Einige Ergebnisse sind im Kap. 6 im Teil II mitgeteilt. Für unsere Zählmessungen ist noch weiter wichtig, dass die Abschneideenergie auch über längere Zeiten und für verschiedene gleichartige Füllungen innerhalb der Messgenauigkeit (von etwa 3 Prozent für die Abschneideenergie) konstant war.

4. BESTIMMUNG DER KORREKTUR AUF NICHTZÄHLUNG DER GERINGENERGETISCHEN ZERFÄLLE

Der Fehler in der Korrektur auf die Nichtzählung geringenergetischer Zerfälle [K in Formel (1)] geht direkt in das Endergebnis ein. Da die Bestimmung dieser Korrektur daher so präzise wie möglich erfolgen soll, wird sie hier mit drei verschiedenen Methoden durchgeführt. Einmal werden alle das Zählergebnis fehlerhaft beeinflussenden Effekte so klein gehalten, dass die Abschneidekorrektur vernachlässigt werden kann, zweitens wird die Korrektur aus der Abschneideenergie und dem theoretischen Spektrum ermittelt und drittens wird sie aus der Abschneideenergie und dem gemessenen Spektrum bestimmt. Welche dieser Methoden die geeignetste ist, hängt weitgehend von den Messbedingungen ab.

Die Untersuchung der Nachimpulse (s. II) und des Effekts der Verzerrung des Spektrums auf die Zählrate (Kap. 2) ergab, dass es möglich sein könnte, noch sehr hohe Hochspannungen, bei denen die Spektren schon sehr stark verformt sind, zu verwenden, ohne dass Verfälschungen der Zählrate auftreten. Wird daher die Tritiumzählrate bei einer so hohen Spannung gemessen, dass bei Vorliegen eines theoretischen Spektrums die Abschneidekorrektur nur 0,1 Prozent betragen würde, so kann diese völlig vernachlässigt werden. Die Vernachlässigung ist dann immer wesentlich kleiner als 0,1 Prozent, da das Spektrum (infolge Übergangs zum Geiger-Müller-Bereich) stark zu grösseren Impulshöhen verschoben ist. Bei

Feldrohrschaltung (s. II) und kleiner Abschneideenergien ist diese Methode gut brauchbar und liefert mit den anderen übereinstimmende Resultate. Bei Schutzrohrschaltung und den benötigten hohen Spannungen sind die Plateaus nicht mehr präzise auswertbar.

Zumindest solange das Spektrum nicht stärker verzerrt ist, kann man immer versuchen, die Korrektur aus der gemessenen Abschneideenergie und dem theoretischen Spektrum abzuleiten. Ein besonders klares Ergebnis kann man hierbei erhalten, wenn die ganzen Hochspannungsplateaus auf die Abschneideenergie korrigiert werden. Die so korrigierten Plateaus zeigen lange flache Bereiche, deren Zählrate als die auf die Abschneideenergie

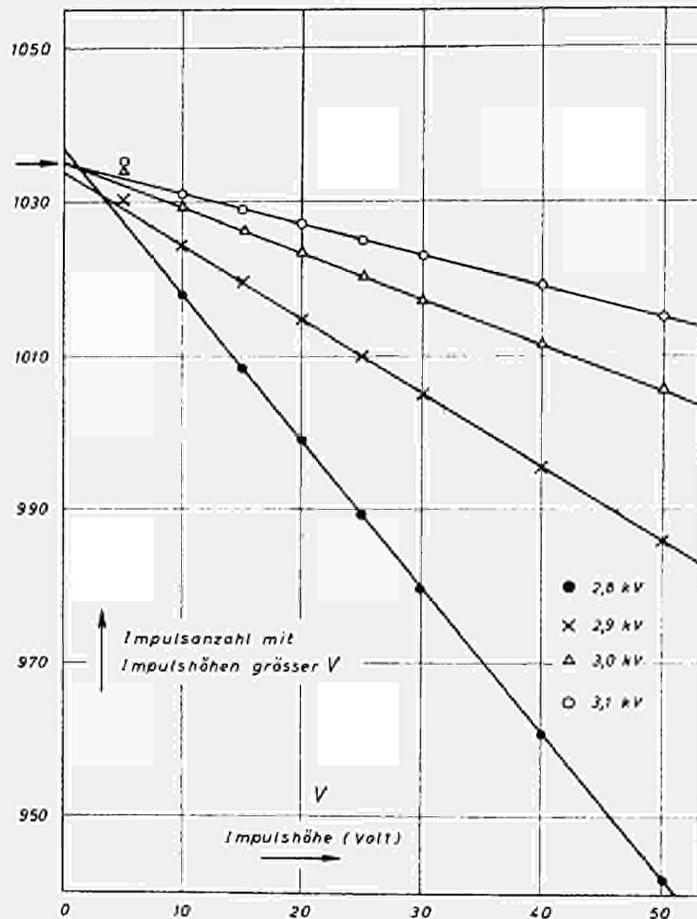


Abb. 3. Ein Beispiel für experimentelle Integral-spektren in Abhängigkeit von der Hochspannung (Zählrohr 6 cm ϕ , 40 cm Länge).

korrigierte angenommen wird. Man kann eine Korrektur aus der Abschneideenergie und dem theoretischen Spektrum auch erhalten, wenn man die so korrigierten Zählraten auf die Abschneideenergie 0 extrapoliert. Die Ergebnisse dieser beiden Methoden zeigen, dass die korrigierten Plateaus, vor allem bei schlechteren (grösseren) Abschneideenergien nicht besonders gut brauchbar sind, während die Extrapolation auf die Abschneideenergie 0 zu ziemlich gut mit anderen Methoden übereinstimmenden Ergebnissen führt.

Vor allem bei grösseren Spannungen und korrespondierender starker Verzerrung des Spektrums sollte die Korrektur des Abschneideeffekts aus den wirklich gemessenen Spektren die besten Ergebnisse liefern. Dabei wurde wieder auf zweierlei Art vorgegangen, einmal wurden die experimentellen Integralspektren (für verschiedene Hochspannungen) extrapoliert (Abb. 3 zeigt ein typisches Beispiel), andererseits wurde aus der Abschneideenergie und dem experimentellen Differentialspektrum eine empirische Korrektur ermittelt. Meistens wurde bei der letzten Methode einfach die theoretische Korrektur mit dem Verhältnis der wirklichen Impulse bei der Energie Null zu theoretisch zu erwartenden Impulsen multipliziert. Auf diese Weise lassen sich wie bei der Korrektur aus dem theoretischen Spektrum wieder sowohl ein korrigiertes Plateau angeben als auch eine Extrapolation auf die Abschneideenergie 0 durchführen. Vergleicht man die verschiedenen Korrekturmethode, so ergibt sich, dass bei kleinen Abschneideenergien alle Methoden innerhalb der Messgenauigkeit von 0,2 Prozent gleiche Ergebnisse liefern, mit Ausnahme der aus dem theoretischen Spektrum korrigierten Plateaus, die kleine Abweichungen zeigen. Daher wurden im Folgenden meist (wenn möglich) die einfachsten Methoden, Vernachlässigung oder Extrapolation auf $E_a = 0$ aus dem theoretischen Spektrum, benutzt. Bei grösseren (schlechteren) Abschneideenergien geben die verschiedenen Methoden erheblich verschiedene Resultate. Es dürfte dann die Extrapolation auf die Abschneideenergie Null ermittelt aus dem gemessenen Spektrum die besten Ergebnisse liefern. Auf keinen Fall ist hier die hohe Präzision zu erreichen wie bei kleinen Abschneideenergien (< 100 eV).

5. MESSUNG DES GESAMTEND- UND GESAMTWANDEFFEKTS

An allen Grenzen des effektiven Volumens des Gaszählrohrs treten Zonen anomalen Verhaltens auf (s. II), die Verzerrungen des Spektrums und Fehler in der Zählrate verursachen können. Diese Randeffekte können eingeteilt werden in die von der Zählrohrlänge unabhängigen Endeffekte und die zur Länge des effektiven Zählvolumens proportionalen Wandeffekte. Diese Einteilung ist zweckmässig und gebräuchlich, jedoch werden dabei typische Wanderscheinungen wie z.B. Adsorption im ineffektiven Endvolumen zu den Endeffekten gezählt. Für die Bestimmung der spezifischen Zählrate (pro cm^3) des Füllgases ist es bei einem Gaszählrohr eigentlich nur wichtig, die Gesamtendeffektkorrektur V_E und die Gesamtwandeffektkorrektur V_W zu kennen. Diese sind verhältnismässig einfach zu ermitteln und ergeben, an dem Zählvolumen V korrigiert, das in die Endformel (1) eingehende effektive Volumen:

$$V_{\text{eff}} = V + V_E + V_W. \quad (5)$$

Als Zählvolumen V wird hier das unkorrigierte Zählrohrvolumen zwischen den Enden der Schutz- oder Feldrohre bezeichnet. Dieses Volumen wird durch eine 0,01% genaue Längenbestimmung und eine 0,01% genaue Volumenbestimmung (durch Auswägen mit Wasser) auf besser als 0,03% genau bestimmt.*

Vernachlässigt man Sorptionserscheinungen (s.w.u.) in den ineffektiven Endvolumina—was meistens bei guter Wahl des Materials und der Konstruktion möglich ist—solassen sich die Gesamtend- und die Gesamtwandeffektkorrektur durch gleichzeitige Messung mit mehreren Zählrohren verschiedener Länge und verschiedenen Durchmessers ermitteln. Es können dabei drei verschiedene Verfahren Anwendung finden, und zwar das Differenzverfahren, das Extrapolationsverfahren und Kombinationen von beiden (z.B. Extrapolation von Differenzergebnissen). Beim Differenzverfahren wird durch Subtraktion der Zählraten verschieden langer Zählrohre mit gleicher Endkonstruktion, bei der die Endstörungen

* Wir danken der metrologischen Gruppe des ZBKМ unter Leitung von Herrn Moret für die Durchführung eines Teils dieser Messungen.

herausfallen, die Zählrate in einem effektiv endenfreien mittleren Teil des grösseren Zählrohres bestimmt. Aus zwei solcher Messerien bei denen auch der Durchmesser der Zählrohre variiert wird, lässt sich dann die Gesamtwandeffektkorrektur ermitteln. Beim Extrapolationsverfahren wird aus Messungen mit Zählrohren verschiedener Länge auf die Zählrate eines unendlich langen (und damit praktisch endenfreien) Zählrohres extrapoliert, ebenso aus Serien von Messungen mit Zählrohren verschiedenen Durchmessers (nach Korrektur auf Endeffekte) auf die Zählrate eines unendlich dicken (praktisch wandlosen) Zählers extrapoliert. Wenn weder End- noch Wandeffekte vernachlässigt werden können, sind für eine Bestimmung beider Effekte mindestens vier Zählrohre notwendig, beim Extrapo-

lationsverfahren sogar mehr. Man kann jeweils abschätzen, welches Verfahren bei vergleichbarer Anzahl von Messungen genauere Resultate liefert. Wir haben meist—entsprechend dieser Abschätzung—für die Endeffekte das Differenzverfahren mit jeweils zwei Zählrohren und für die Wandeffekte das Extrapolationsverfahren mit vier verschiedenen dicken Zählrohren verwendet, und nur selten die Ergebnisse durch andere Verfahren kontrolliert.

Die Ergebnisse dieser Messungen zur Gesamtwand- und Gesamteffektkorrektur sind nach allen Methoden so gut übereinstimmend, dass die Präzision von 0,1% in V_{eff} gewährleistet ist. Und zwar ergibt sich zunächst, das Schutzrohr- und Feldrohrschaltung innerhalb 0,3% die gleichen Ergebnisse für die korrigierten Zählraten ergeben. Damit ist erwiesen, das

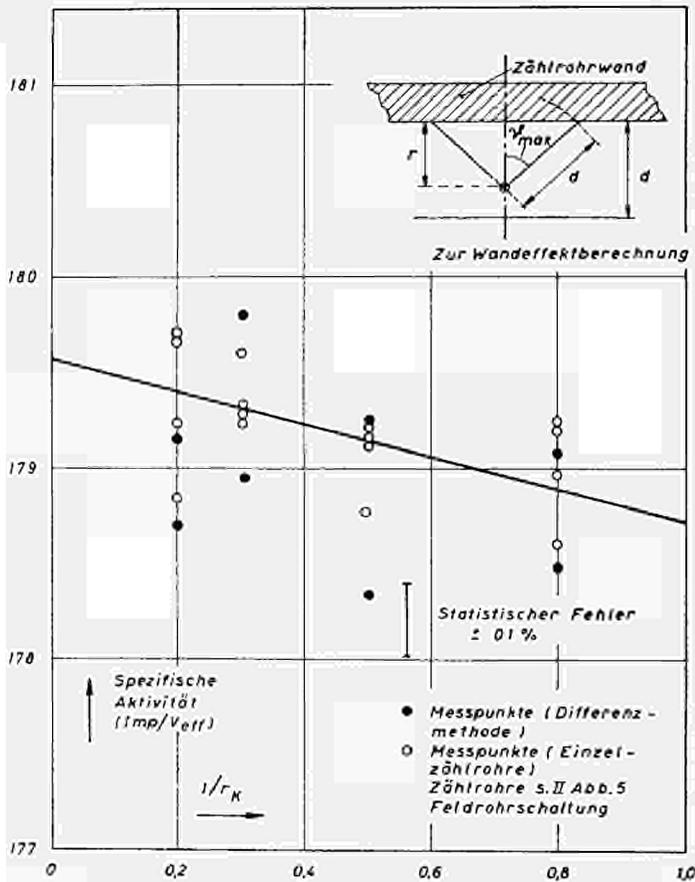


ABB. 4. Beispiele zur experimentellen Bestimmung des Wandeffekts für 525 Torr Zählglas (Methan mit 2% H₂).

keine unbekanntes Endeffekte bei den beiden Methoden auftreten können, vor allem keine Fehler durch falsche Einstellung der Feldrohrspannungen. Die grössere (etwa doppelte) Schwankung der Ergebnisse für verschiedene Messungen bei der Schutzrohrschaltung zeigt wieder die Überlegenheit der Feldrohranordnung. Weiter ergibt sich bei der Feldrohrschaltung ein positiver, dem Zählrohrquerschnitt proportionaler Gesamtendeffekt, der durch Addition einer $2,90 \pm 0,10$ mm dicken Randschicht zum Zählvolumen unabhängig vom Zählrohrdurchmesser korrigiert werden muss. Die Genauigkeit dieser Angabe für das effektive Zählvolumen ist noch bei unseren kleinsten Zählrohren besser als 0,1%. Dass dieser Endeffekt durch Überlagerung zweier entgegengesetzter Wand- oder Endeffekte zustande kommt ist ausgeschlossen, da der Wandeffekt bei den Differenzergebnissen und bei einfachen Zählrohren gleich gross ist. Daher kann dieser Gesamtendeffekt bei der Feldrohrschaltung eindeutig als Einstrahlungseffekt (vermindert um Entkommeneffekte) identifiziert werden (s. Kap. 6). Der Gesamtendeffekt bei Schutzrohrschaltung kann dann aus dem Unterschied der Zählraten bei Feldrohr- und Schutzrohrschaltung angegeben werden, da etwa angenommen werden kann, dass der Einstrahlungseffekt der gleiche ist. [Dies ist etwa richtig bei Einstrahlung von Bremsstrahlung, aber nur bis auf einen Faktor 1,5 richtig bei Einstrahlung von Elektronen (s.w.u.)]. Es ergibt sich—nach Subtraktion der Einstrahlungskorrektur—für die ineffektiven Endvolumina $2V_{EG}$ 177, 83, 26,5 und 9,3 ccm bei den Röhren mit 8, 6, 4 und 2,5 cm Durchmesser, das heisst 9,5% bis 3,8% des Zählrohrvolumens V . Diese Werte sind mindestens 5% genau, so dass der in V_{eff} resultierende Fehler selbst bei Schutzrohrschaltung kleiner als 0,4% bleibt.

Um den Gesamtwandeffekt bei unseren innen elektropolierten Zählrohren finden zu können ist eine sehr grosse Präzision notwendig (z.B. von 0,1% bei einem Differenzverfahren für eine 20% genaue Bestimmung eines Wandeffekts von 1%). Daher ist es uns nur gelungen, mit einem Extrapolationsverfahren (mit vier verschiedenen Zählrohrdurchmessern) und eindeutig nur mit der Feldrohranordnung den Gesamtwandeffekt zu $(0,2-0,3/r_k)\%$ zu

bestimmen (r_k = Kathodendiameter in cm). Die Abb. 4 zeigt einige Ergebnisse. Selbst für unsere dünnsten Zählrohre mit einem Radius von 12,5 mm ist die gesamte Wandeffektkorrektur danach nur $0,3 \pm 0,1\%$, bei dickeren Röhren entsprechend kleiner. Alle diese Ergebnisse gelten natürlich nur für unsere Anordnung und Methode, d.h. insbesondere nur für sehr kleine Abschneideenergien (bis zu wenigen eV).

6. EINZELENDJEFFEKTE UND DEREN BESTIMMUNG

Obwohl die erreichte Genauigkeit von 0,1% bei der gesamten Wandeffektkorrektur und von 0,1% bei der Gesamtendeffektkorrektur in Feldrohrschaltung (0,4% in Schutzrohrschaltung) recht befriedigend ist, so ist die Untersuchung der Einzeleffekte doch sehr nützlich. Sie liefert nicht nur eine Kontrolle der bereits diskutierten Resultate, sondern gestattet auch viele Hinweise auf die auftretenden Fehler (z.B. die Zeitabhängigkeit von Absorptionseffekten usw.). Hier sollen aber nur die wichtigsten Ergebnisse unserer zahlreichen Untersuchungen zu den Einzelrandeffekten mitgeteilt werden.

Die individuellen Endeffekte⁽¹⁷⁻²⁸⁾ und ihre Abhängigkeiten sind (s.a. II): Feldverzerrung an den Endwänden (konstruktionsabhängig), Feldverzerrung an den Schutzrohren (nur konstruktionsabhängig), Entkommen aus dem effektiven Volumen (druckabhängig und abhängig von der Energie der Strahlung), Einstrahlung in das effektive Volumen (abhängig vom Druck und der Energie), Feldverzerrungen im effektiven Volumen (konstruktions- und hochspannungsabhängig) und Sorptionserscheinungen in den ineffektiven Volumina (vom Material, T/H -Verhältnis und Wasserstoffdruck, sowie von der Konstruktion abhängig).

Die Feldverzerrung durch die Endwände ist im elektrolytischen Trog (s. typische Beispiele in Abb. 5) mit Schutzrohren verschiedener Länge und verschiedener Dicke und verschiedenen Endisolatoren untersucht worden. Danach ist bei der Konstruktion unserer Zählrohre immer darauf geachtet worden, dass Feldstörungen durch die Endwände nicht auftraten (z.B. durch die allgemeine Wahl der Schutzrohrlänge zu $3/2$ des Zählrohrradius).

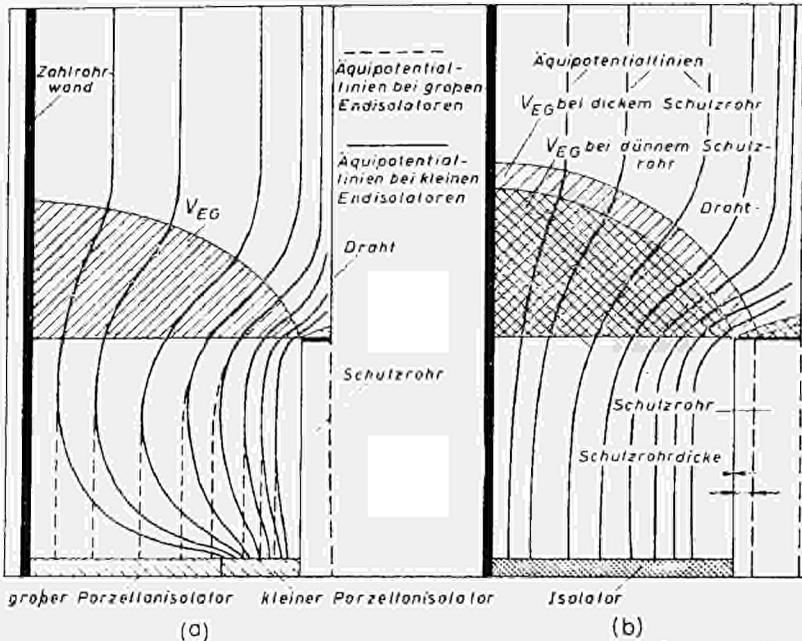


Abb. 5. Feldlinien und Potentialverlauf bei verschiedenen Konstruktionen der Zählrohrenden (gemessen im elektrolytischen Trog). (V_{EG} ineffektives Endvolumen, s.a. II.)

Der Teil des effektiven Volumens, in dem das Feld gestört ist, sollte wegen der dadurch verursachten schlechteren Plateaus und größeren Fehler in den Korrekturen durch Feldrohrschaltung ganz vermieden werden. Man kann das Störvolumen V_{EF} etwa aus der Unsymmetrie von (Argon-) Linien bei Schutzrohrschaltung abschätzen⁽²⁹⁾ (II. Abb. 4). Während die Linien bei Feldrohrschaltung völlig symmetrisch sind, entsteht bei Schutzrohren ein niedrigerenergetischer Schwanz, dessen Fläche im Vergleich zur Gesamtfläche etwa dem Verhältnis des Volumens V_{EF} zum effektiven Volumen entspricht. Wir erhalten für das Störvolumen bis zu 50% des effektiven Volumens.

Die insensitiven Endvolumina sind durch Feldrohr-Schutzrohr-Vergleich (s. oben) und mit Differenzmessungen bestimmt und durch Trogmessungen (Abb. 5), Messungen mit zur Zählerachse gerichteter Einstrahlung von aussen und Bestimmung der Zählrohrlänge, bei der sich die beiden Endvolumina überlappen, mit verschiedener Genauigkeit bestätigt worden. Eine Berechnung der insensitiven Endvolumina⁽²⁶⁾ ist uns aber bisher nicht gelungen.

Die Einstrahlung und das Entkommen an den Enden des sensitiven Volumens können mit Feldrohrmessungen (und mit Druckvariation) bestimmt werden. Wir haben auch eine einfache allgemeine Theorie abgeleitet, die aus Messungen mit verschiedener Energie und geometrisch verschiedenen Endkonstruktionen bestätigt wurde und später berichtet werden soll. Bei Tritium und unseren Standardbedingungen (525 Torr Methan) ist die maximale Reichweite der Zerfallselektronen 0,6–0,7 mg/cm² oder etwa 12 mm.^(30–36) Nimmt man die mittlere Reichweite mit etwa 4 mm an und berücksichtigt, dass aus einer Randschicht von der Dicke der Reichweite der Strahlung 1/4 aller Teilchen in eine Richtung entkommen können (s.w.u.), so erhält man 1 mm für die Dicke des zum effektiven Endvolumens zu addierenden Einstrahlungsvolumens V_{ER} . Die experimentell bestimmte Schichtdicke war aber 2,9 mm. Der Unterschied ist leicht mit Einstrahlung von Bremsstrahlung zu erklären, da deren Reichweite (Halbwertsdicke) noch bei 1 keV etwa 10 mm beträgt.^(5,37,38) Eine quantitative Theorie hierzu ist sehr schwierig, so dass hier das experimentelle Resultat nur

plausibel und nicht exakt bestätigt werden kann. Die Bestimmung des Einstrahlungseffektes allein ist nicht einfach, jedoch ist dies in unserem Fall nicht nötig, da der Entkommeneffekt bei den hier verwendeten kleinen Abschneideenergien (bis zuweilen nigen eV) sicher vernachlässigbar ist.

Von den Endeffekten bleiben noch die Sorptionserscheinungen (Ab-, Ad- und Chemisorption) in den ineffektiven Endvolumina zu bestimmen. Dies ist ein mühsames Problem, das durch Messungen mit verschiedenen Verhältnissen des sensitiven Endvolumens zum effektiven Volumen untersucht werden kann. Wir haben einige Messungen mit verschiedenen langen Schutzrohren durchgeführt, die zusammen mit der Abschätzung der Sorptionserscheinungen beim Wandeffekt (s.w.u.) zu dem Schluss führen, dass hier Sorptionseffekte in den ineffektiven Endvolumina vernachlässigbar sind. Genauere Experimente hierzu sind geplant.

7. DIE EINZELWANDEFFEKTE UND DEREN BESTIMMUNG

Setzt man voraus, dass Rekombinationseffekte und Photoneneffekte an der Wand nicht auftreten, was im allgemeinen möglich ist, so bleibt nur ein Wandeffekt, nämlich ein durch Sorptionseffekte vergrößerter und durch Rückstreuung und Sekundäreffekte verminderter Entkommeneffekt übrig.⁽³⁹⁻⁴⁰⁾ Dieser ist dann nur durch das Wandmaterial, die Reichweite der Strahlung im Gas, dessen Zusammensetzung und die Abschneideenergie bestimmt.

Quantitativ ist der Zählverlust durch Entkommen in die Wand in erster Näherung nur von der Wegstrecke abhängig, auf der die Zerfallselektronen die Abschneideenergie dissipieren (d in Abb. 4 oben). Denn nur aus einer Wandschicht der Dicke d können Elektronen in die Wand laufen, ohne vorher die zum Nachweis erforderliche Energie E_a freigesetzt zu haben. Der Bruchteil der Wandschicht der Dicke d , der für die Zählung dabei ausfällt, ist nach Abb. 4 bestimmt durch den Raumwinkel $\bar{\omega}$, den die Strecke d im Mittel von jedem Punkt der Wandschicht bis zur Wand beschreibt. Die Berechnung dieses mittleren Raumwinkels $\bar{\omega}$ führt zu

einem nur numerisch auswertbaren Integral. Die Berechnung wird aber einfach für kugelförmige oder ebene Zählrohrwand. Da beide diese Ergebnisse, zwischen denen das gesuchte für das zylindrische Zählrohr liegen muss, sich nur um wenige % unterscheiden, (für die üblichen Größenordnungen der geometrischen Parameter), kann in erster Näherung eine ebene Zählrohrwand angenommen werden. Es ergibt sich dann

$$\begin{aligned}\bar{\omega} &= \frac{1}{d} \int_0^d 0(r) dr = \frac{2\pi}{d} \int_0^d dr \int_0^{\vartheta_{\max}} \sin \vartheta d\vartheta \\ &= \frac{2\pi}{d} \int_0^d dr (1 - r/d) = \pi\end{aligned}\quad (6)$$

$\bar{\omega}/4\pi = 1/4$ ist damit der Bruchteil der Wandschicht, der für die Zählung ausfällt. Da bei unseren Messungen noch einzelne Elektronen nachgewiesen werden, ist ein Wert für d sehr schwer zu schätzen. Nimmt man den grössenordnungsmässig plausiblen Wert von 0,04 mm an, so ergibt sich, dass der Wandeffekt bei uns für die kleinsten Zählrohre ($r_K = 1$ cm) von der Größenordnung

$$(0,04/4) \cdot 2\pi r / \pi r^2 = 0,02/r = 0,002 = 0,2\% \quad (7)$$

ist (ohne Sorption und Rückstreuung). Dies ist auch die experimentell gefundene Größenordnung. Bei den kleinen hier vorliegenden Energien und Effekten dürfte es sehr schwierig sein, den Wandeffekt auch aus Messungen mit verschiedenen Gasdrücken zu ermitteln, wie wir das mit Erfolg bei grösseren Energien (C^{14} u.a.) durchgeführt haben.

Der Wandeffekt kann durch Sorptionserscheinungen sehr stark erhöht werden. Daher müssen die Ab-, Ad- und Chemisorptionseffekte sorgfältig untersucht und bei den Messungen möglichst konstante Verhältnisse für deren Einstellung eingehalten werden, wenn hohe Präzision angestrebt wird. Die Absorption beruht auf Diffusion in die Wand.⁽⁴⁹⁻⁵⁸⁾ Durch Adsorption⁽⁵⁹⁻⁶²⁾ wird ein Teil des Gases momentan an den Zählrohrwänden gebunden. Die Chemisorption^(63,64) beruht auf einer starken Bindung von Zählgas an der Wandoberfläche, die als Memoryeffekt auch nach mehrfachen Entleerungen und Neufüllungen des Zählrohrs noch zu messen, und

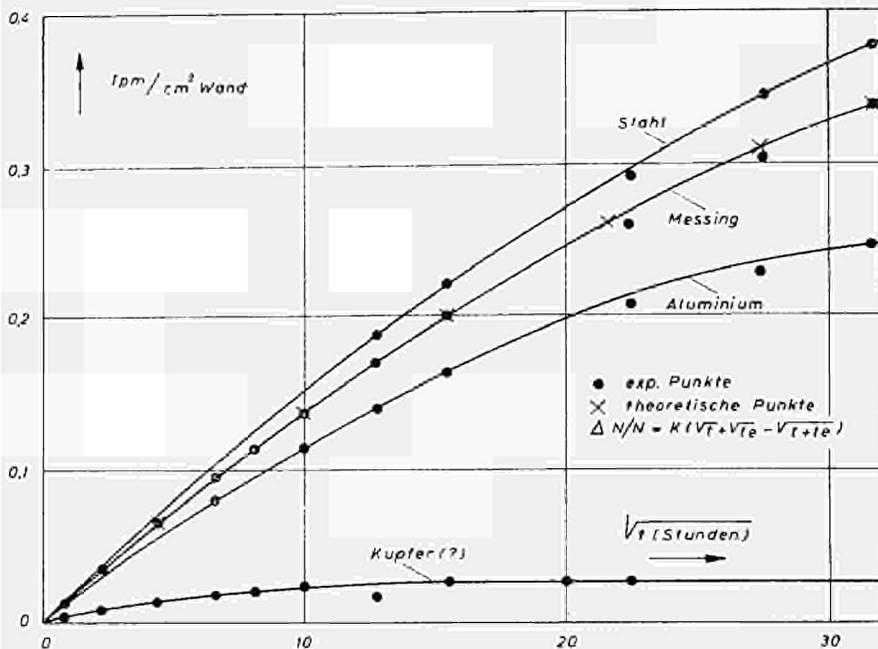


Abb. 6. Ein Beispiel für die Messung der Rückdiffusion des in der Zählrohrwand absorbierten aktiven Gases in das Zählgas (hier $C^{14}O_2$ in Methan). (t_0 Zeit für Diffusion, t Zeit für Rückdiffusion.)

daher verhältnismässig einfach zu finden und durch Wahl geeigneten Materials zu vermeiden ist. Wichtig ist es zu vermeiden, dass Wasser in das Zählrohr gelangt, da dann die Sorptionserscheinungen um mehrere Grössenordnungen stärker werden können.⁽⁶⁵⁻⁶⁷⁾ Für den Zählverlust durch Adsorption haben wir aus der Diffusionstheorie die folgende Formel abgeleitet, die auch—ebenso wie die für die Diffusion in die Wand und nachfolgende Rückdiffusion in das Zählgas—experimentell verifiziert wurde (Beispiel s. Abb. 6):

$$\Delta N/N = k_1 \sqrt{t_0} \quad (8)$$

worin t_0 die Zeit (in Stunden), in der Diffusion stattfand, bedeutet. Die Konstante der Formel ist stark von vielen Messbedingungen abhängig und hier zwischen 10^{-3} und 10^{-6} gemessen worden. Die Messungen erfolgten mit stabilen Zählrohren durch Beobachtung des Abfalls der Zählrate mit der Zeit bei verschiedenen T -Anteilen im Gas und wurden aus Messungen der Rückdiffusion aus der Wand in ein inaktives Zählgas bestätigt. Die Formel (8) ermöglicht es, zeitliche Bedingungen für die Messungen

zu finden, bei denen die Adsorption vernachlässigbar ist. Dies wurde bei unseren Messungen immer beachtet. Schwieriger als die Absorptionsbestimmung ist die Ermittlung der sich momentan einstellenden Adsorption. Messungen mit Zählrohren, bei denen durch viele dünne Drähte das Wandvolumen vom Hauptzählvolumen abgetrennt war und als selbständiges Zählrohr betätigt wurde, lassen wegen der schwierigen Abschätzung der effektiven Volumina nur die Aussage zu, dass bei unseren Messungen weniger als etwa 5% Adsorption vorlag. Immerhin ist damit sichergestellt, dass das Tritium im Zählvolumen ziemlich gleichmässig verteilt ist. Aus Messungen mit verschiedenem Wasserstoffgehalt und verschiedenem T/H -Verhältnis im Zählgas wurde die Adsorption genauer abgeschätzt. Wir erhielten für nicht innen elektroplattierte Stahlrohre 0,1 bis 1% Zählverlust durch Adsorption, wenn die Abschneideenergie etwa 200 eV beträgt. Man kann daraus schliessen, dass bei unseren genauesten Messungen mit innen elektroplattierten Zählrohren und mit Abschneideenergien bis zu etwa 10 eV

Adsorptionsverluste vernachlässigbar sind. Da die Präzision unserer älteren Messungen zur Adsorption nicht befriedigend war, sind neue Messungen dazu im Gange.

Die Wandeffekte sind ausser durch Sorptionserscheinungen auch durch Rückstreuung und Sekundäreffekte überdeckt, die ihre Berechnung sehr erschweren. Wir haben nur durch Untersuchung des geringenergetischen Teils der Spektren bei verschiedenem Wandmaterial festgestellt, dass Sekundäreffekte nicht stören.

8. ZUSAMMENFASSUNG, NACHMESSUNG DES NBS-STANDARDS

In der vorliegenden Arbeit ist gezeigt worden, dass eine absolute Tritiumstandardisation mit einer Präzision von wenigen Zehnteln Prozent durchgeführt werden kann. Ein Mass für die erreichte Genauigkeit ist die experimentelle Schwankung der gesamten Messung, für die wir in mehreren Meßserien von 5–10 Messungen 0,15, 0,20 und 0,20% erhielten. Damit kann die statistische Summe aller untersuchten Einzelfehler verglichen werden, für die man hier (allein für die Zählung) etwa $\pm 0,3\%$ (aus $\pm 0,2\%$ bei der "Abschneidekorrektur", $\pm 0,03\%$ bei der Bestimmung des Zählvolumens V , $\pm 0,1\%$ bei der Gesamtendkorrektur (Feldrohrschaltung), $\pm 0,1\%$ bei der Gesamtwandeffektkorrektur und $\pm 0,2\%$ aus Nulleffekt, Zählverlust und Statistik) erhält. Da hierzu noch die Fehler aus der Zählgerätestellung addiert werden müssen, ist die gemessene mittlere Schwankung erheblich geringer als die aus den Einzelfehlern abgeschätzte, woraus zumindestens mit einiger Sicherheit geschlossen werden kann, dass keine grösseren systematischen Fehler bei den Korrekturen vergessen wurden.

Wir haben zur Kontrolle unserer Methode den NBS-Tritium-Standard in 12 Messungen nachgemessen, und erhalten eine 1,7% niedrigere Aktivität als vom NBS angegeben, mit einer experimentellen mittleren Schwankung der Einzelmessung von 0,3% und der statistischen Summe der möglichen Einzelfehler von 0,5%. Zur Umrechnung auf das vom NBS angegebene Datum (1954) ist für die Halbwertszeit 12,26 y angenommen worden⁽⁶⁸⁾, obwohl neuere Messungen höhere Werte wahrscheinlich erscheinen lassen.^(3,69,70) Diese

würden zu einem noch grösseren Unterschied zwischen dem NBS-Wert und unserem Resultat führen. Andererseits ist die NBS-Aktivität aus einer mikrokalorimetrischen Messung mit einer mittleren Tritiumzerfallsenergie abgeleitet, die nach neueren Messungen fast 1% zu klein ist⁽⁶⁹⁾. Bei Verwendung des höheren Wertes würde die Übereinstimmung unseres Resultats mit dem des NBS entsprechend fast 1% besser sein. Es ist vorläufig schwierig zu entscheiden, welche Werte der Halbwertszeit und mittleren Zerfallsenergie zu verwenden sind, in jedem Fall ist die Übereinstimmung zwischen den NBS-Angaben und unserem Resultat gut. Die Abweichung liegt innerhalb der angegebenen Fehlergrenzen (NBS 1,5%, hier 0,5%). Wir sind jetzt damit beschäftigt, einen Tritium-standard mit einer absoluten Genauigkeit von weniger als 0,4% herzustellen.

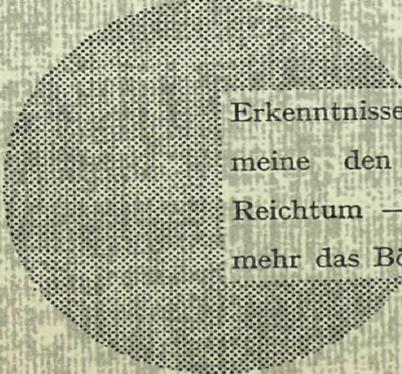
Anerkennungen—Die hier berichteten Messungen sind in den Jahren 1956 bis 1959 im Isotopenlabor Göttingen der Kernreaktor Bau- und Betriebs-GmbH, Karlsruhe, und vor allem von 1959 bis 1962 im BCMN der Euratom in Geel/Belgien durchgeführt worden. Wir danken den Direktoren dieser Institute, Herrn Dr. HOGREBE und Herrn Dr. SPAEPEN für die stetige freundliche Unterstützung der Arbeiten und Diskussionen.

LITERATUR*

1. SPERNOL A. und DENECKE B. *Int. J. appl. Rad. Isotopes* **15**, 139, 195. (1963).
2. MARION J. B. *Nucl. Phys.* **29**, 341 (1962).
3. PORTER F. T. *Phys. Rev.* **115**, 450 (1959).
4. CONWAY D. C. und JOHNSTON W. H. *Phys. Rev.* **116**, 1544 (1959).
5. CAMERON J. F., RHODES J. R. und BERRY P. F. *AERE-R-3086* (1959).
6. INTSCH G. M. und CURRAN S. C. *Phil. Mag.* **42**, 892 (1951).
7. CURRAN S. C., ANGUS J. und COCKROFT A. L. *Phil. Mag.* **40**, 53 (1949).
8. WEISSKOPF V. F. und BLATT J. M. *Theoretical Nuclear Physics*, p. 680. Wiley, N.Y. (1952).
9. ROSE M. In *Beta and Gamma Ray Spectroscopy* (K. Siegbahn Ed.), p. 875 (1955).
10. FEENBERG E. und TRIGG G. *Rev. mod. Phys.* **22**, 399 (1950).
11. GARDNER L. B. *IRE Trans. Nucl. Sci.* **7**, 36 (1960).
12. BERTOLINI C., CAPELLANI F. und ROTA A. *Nucl. Instrum. Meth.* **9**, 107 (1960).
13. FREDMANN M. S., NOVEY T. B., PORTER F. T.

- und WAGNER F. *Rev. sci. Instrum.* **27**, 716 (1956).
14. HAMILTON D. R., ALFORD W. P. und GROSS L. *Phys. Rev.* **92**, 1521 (1953).
 15. OWEN G. E. und PRIMAKOFF H. *Phys. Rev.* **74**, 1406 (1948).
 16. SCHWARTZ H. M. *Phys. Rev.* **86**, 195 (1952).
 17. BENOIT-CATTIN P. und BLANC D. *Nucl. Instrum. Meth.* **17**, 171 (1962).
 18. SUZUKI T. *J. Atom. Energy Soc. Japan* **3**, 266 (1961).
 19. GROUSE P. J. und RATHGEBER H. D. *Nuovo Cim.* **5**, 707 (1957).
 20. SIKKEMA C. P. *Nucl. Instrum. Meth.* **1**, 148 (1957).
 21. BAPTISTA A. M. und GALVAO J. P. *Nuovo Cim.* **3**, 647 (1956).
 22. BLANC D. *Nuovo Cim.* **1**, 1280 (1955).
 23. SKYRME T. H. R., TUNICLIFFE P. R. und WARD A. G. *Rev. sci. Instrum.* **23**, 104 (1952).
 24. ITO R. *J. phys. Soc. Japan* **7**, 256 (1952).
 25. ENGELKEMEIER A. G. und LIBBY W. F. *Rev. sci. Instrum.* **21**, 550 (1950).
 26. BIROT A. und BLANC D. *C.R. Acad. Sci., Paris* **254**, 1978 (1962).
 27. MASKET A. V. *Rev. sci. Instrum.* **28**, 191 (1957).
 28. BLACHMAN N. M. *Rev. sci. Instrum.* **20**, 477 (1949).
 29. KIRKWOOD D. H. W., PONTECORVO B. und HANNA G. C. *Phys. Rev.* **74**, 497 (1948).
 30. WAECHTER K. H. *Kerntechnik* **3**, 527 (1961).
 31. MILSHEIN R. S. *Med. Radiol.* **6**, (11) 63 (1961).
 32. CHRISTMANN D. R. *Nucleonics* **19**, (5) 51 (1961).
 33. LANG A. R. G. und MASON S. G. *Int. J. appl. Rad. Isotopes* **7**, 251 (1960).
 34. NELMS A. T. *NBS Circ.* 577 (1956).
 35. BANKS T. E., CRAWHALL J. C. und SMYTH D. G. *Biochem. J.* **64**, 411 (1956).
 36. LIBBY W. F. *Phys. Rev.* **103**, 1900 (1956).
 37. WESTERMARK T., DEVELL L., und GHANEM N. A. *Nucl. Instrum. Meth.* **9**, 141 (1960).
 38. COOK G. B., MELLISCH C. E. und PAYNE J. A. *Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva*, Vol. 21, p. 127. United Nations, N.Y. (1958).
 39. MUELLER M. M. LAMS-2580 (1961).
 40. BRODSKY A. TID-13075 (1961).
 41. MERRITT J. S. und TAYLOR J. G. V. AECL-1142 (1960).
 42. MANN W. B., SELIGER H. H., MARLOW W. F. und MEDLOCK R. W. *Rev. sci. Instrum.* **31**, 690 (1960).
 43. DENNIS J. A. und LOOSEMORE W. R. AERE-R-3302 (1960).
 44. BRAUN J. RSA-24 (1959).
 45. DREWER R. W. P., MOLJK A. und CURRAN S. C. *Nucl. Instrum.* **1**, 41 (1957).
 46. SKERTCHLY A. R. B. *J. sci. Instrum.* **33**, 209 (1956).
 47. MOLJK A. und CURRAN S. C. *Phys. Rev.* **96**, 395 (1954).
 48. HAWKINS R. C., HUNTER R. F. und MANN W. F. *Canad. J. Chem.* **B27**, 555 (1949).
 49. SCHMELING P. und FELIX F. HMJ-B19 (1961).
 50. ZIMEN K. E. HMI-B16 (1961).
 51. KLADZIEN S. B. ANL-6335 (1961).
 52. GAUS H. Z. *Naturf.* **16a**, 1130 (1961).
 53. FOSTER P. K. *Nature, Lond.* **188**, 399 (1960).
 54. CARMICHEL, D. C., HORNADAY J. R., MORRIS A. E. und PARLEE N. A. *Trans. Amer. Inst. Min. Met. Petrol. Engrs.* **218**, 826 (1960).
 55. NAGEL B. H. NP-11440 (1959).
 56. FRANK R. C., SWEETS D. E. und FRY D. I. *J. appl. Phys.* **29**, 892 (1957).
 57. STROSS T. M. und TOMPKINS F. C. *J. chem. Soc.* 230 (1955).
 58. FLUGGE S. und ZIMEN K. E. *Z. phys. Chem.* **B42**, 179 (1939).
 59. MANN W. B., MARLOW W. F. und HUGHES E. E. *Int. J. appl. Rad. Isotopes* **11**, 57 (1961).
 60. BASMADJAN D. *Canad. J. Chem.* **38**, 141 (1960).
 61. ZLOTOWSKI J. und WINCEL H. *Kernenergie* **3**, 87 (1960).
 62. EGGLETON A. E. J. und TOMPKINS F. C. *Trans. Faraday Soc.* **48**, 738 (1952).
 63. TRAPNELL B. M. W. *Chemisorption* (1955).
 64. BERNSTEIN W. und BALLANTINE R. *Rev. sci. Instrum.* **21**, 158 (1950).
 65. DREWER R. W. P. und MOLJK A. *Rev. sci. Instrum.* **27**, 650 (1956).
 66. CHRISTMANN D. R. *Chem. Analyst.* **46**, 5 (1957).
 67. GARBE S., KLOPPER A. und SCHMIDT W. *Vacuum* **10**, 81 (1960).
 68. JONES W. M. *Phys. Rev.* **100**, 124 (1955).
 69. PILLINGER W. L., HENTGES J. J. und BLAIR J. A. *Phys. Rev.* **121**, 232 (1961).
 70. POPOV M. M. *et al. Atomnaya Energiya* **4**, 296 (1958).

* Es ist unmöglich, bei der Literaturangabe Vollständigkeit zu erreichen. Wir zitieren daher von etwa 1000 (zu den drei Teilen der Arbeit) durchgesehenen Publikationen nur die unserer Ansicht nach wichtigsten und die schwer zu findenden. Die Auswahl ist also ziemlich willkürlich, jedoch so getroffen, dass über die zitierten Arbeiten fast alle anderen gefunden werden können.



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

CDN 601400DEC