

RADIOKÉMIAI MÉRÉS

Laboratóriumi neutronforrásban aktivált-anyagok felezési idejének mérése

A radioaktív bomlás valószínűségét kifejező bomlási állandó (λ) helyett gyakran a felezési időt alkalmazzuk ($t_{1/2}$). Felezési időn azt az időtartamot értjük, amely alatt az adott radioaktív izotóp kezdetben (t_0 időpont) jelenlévő magszáma a felére csökken. A bomlási állandó és a felezési idő közötti összefüggés a következő:

$$t_{\frac{1}{2}} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0,693}{\lambda}$$

ahol: $t_{1/2}$ = felezési idő

λ = bomlási állandó

Igen hosszú és igen rövid felezési idejű izotópok mérése meglehetősen bonyolult. Hosszú felezési idejű izotópok esetén mérni kell az aktív anyag mennyiségét és aktivitását, ezen keresztül meghatározható a bomlási állandó és a felezési idő:

$$A = \frac{-dN}{dt} = \lambda N$$

ahol: A = a minta aktivitása

N = az aktív atommagok száma

$\frac{-dN}{dt}$ = az aktív magszám idő szerinti differenciálja

A felezési idő mérése közepes felezési-idő tartományban is eltérő mérési szituációkat eredményezhet, meghatározása a mérési időtartam és a felezési idő arányának ismeretében eltérő módszerrel/módszerekkel határozható meg. Jelöljük a mérési időt t_m -el, így a következő relációk írhatók fel:

1. $t_{1/2} \ll t_m$
2. $t_{1/2} \approx t_m$
3. $t_{1/2} \gg t_m$

Az első esetben a felezési idő rövidsége miatt a minta aktivitása és ezen keresztül a mérhető intenzitás jelentősen változik már a mérés ideje alatt is így a radioaktív anyagok mérése során jelentkező statisztikus szórást a párhuzamos mérések átlagolásával nem tudjuk csökkenteni, hasonló a helyzet abban az esetben is, amikor a felezési idő és a mérési idő összemérhető. Alapvetően kedvező a helyzet akkor, ha a felezési idő jóval hosszabb, mint a mérési idő, ekkor

egyszerű párhuzamos mérésekkel és a mért értékek matematikai átlagolásával jelentősen csökkenthetjük a szórásból eredő hibát. Amennyiben a felezési idő extrém hosszú újabb problémával szembesülünk a hosszú ideig tartó mérések esetén számolnunk kell a mérési rendszer instabilitásával és az ebből eredő hibákkal, ezért a hosszú felezési idők meghatározása külön problémakörbe sorolható.

Amennyiben a felezési idő néhány perctől néhány hónap nagyságrendig terjed, a felezési idő a radioaktív preparátum különböző időpontokban végzett aktivitás (intenzitás) mérésével meghatározható. A mérési eredményeket a radioaktív bomlást leíró negatív exponenciális összefüggés segítségével értékelhetjük, amely felírható az aktív magszám, az ezzel arányos aktivitás és megfelelő körülmények között az intenzitásra is.

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t}$$

ahol: N_0 = az aktív magok száma t_0 időpontban

N_t = az aktív magok száma t idő elteltével

$t = N_t$ és N_0 meghatározása között eltelt idő

Mivel az aktív magszám és az aktivitás meghatározása az esetek nagy többségében komoly nehézségekbe ütközik, ezért lehetőség szerint az intenzitások illetve az ezekkel arányos beütésszámok mérése segítségével igyekszünk az előbbi problémát megkerülni. Az alkalmazhatóság alapfeltétele, hogy a mérések során a detektor és a preparátum helyét egymáshoz képest rögzítsük (a mérés geometriája ne változzon) emellett biztosítani kell az állandó detektálási hatásfokot (ez rendszerint a detektorfeszültség stabilizálásával megoldható). Így igaz a következő összefüggés is:

$$I_t = I_0 e^{-\lambda t}$$

ahol: I_0 = a beütésszám t_0 időpontban

I_t = a beütésszám t idő elteltével

Ennek megfelelően, ha egy radioaktív készítmény beütésszámát két időpontban mérjük és ismerjük a mérések között eltelt időt is, akkor elvileg a bomlási állandó és ezen keresztül a felezési idő meghatározható. A pontos részecskeszám meghatározása során problémát okoz az, hogy a radioaktív bomlás és a detektálás is statisztikus jellegű, ez pedig a méréseknél jelentős hibát okoz(hat).

Sok esetben figyelembe kell venni a háttérsugárzás hatását, ez elsősorban a kozmikus és talajeredetű radionuklidok bomlása során kisugárzott részecskéknek köszönhető. Hatásukat

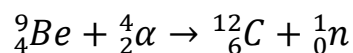
jelentősen csökkenthetjük megfelelő árnyékolás (ólomtorony) segítségével, azonban teljesen nem tudjuk kiküszöbölni. A háttérsugárzást rendszerint akkor vesszük figyelembe, ha a jel-zaj viszony rosszabb, mint 100:1-hez, ez azonban minden esetben egyedileg is mérlegelendő, mert ha a mérési értékek közel vannak a háttér-sugárzás átlagához, akkor a háttérsugárzást minden esetben figyelembe kell venni és annak átlagával korrigálni kell.

A vizsgálatok során különféle detektorok alkalmazhatók a beütésszám mérésére:

- gázionizációs detektorok (Geiger-Müller számlálóső)
- szcintillációs detektorok (NaI(Tl) kristály)
- félvezető detektorok

Méréseink során laboratóriumi Pu-Be neutronforrás segítségével aktiváljuk az inaktív mintáinkat, ennek alacsony neutron-fluxusa nem teszi lehetővé csak egy viszonylag szűk körbe tartozó anyagcsoport vizsgálatát.

Pu-Be neutronforrás működési elve: a ^{239}Pu bomlása során keletkező α -részecskét a ^9Be mag befogja és egy gyors neutron kibocsátása mellett termékként ^{12}C mag keletkezik.

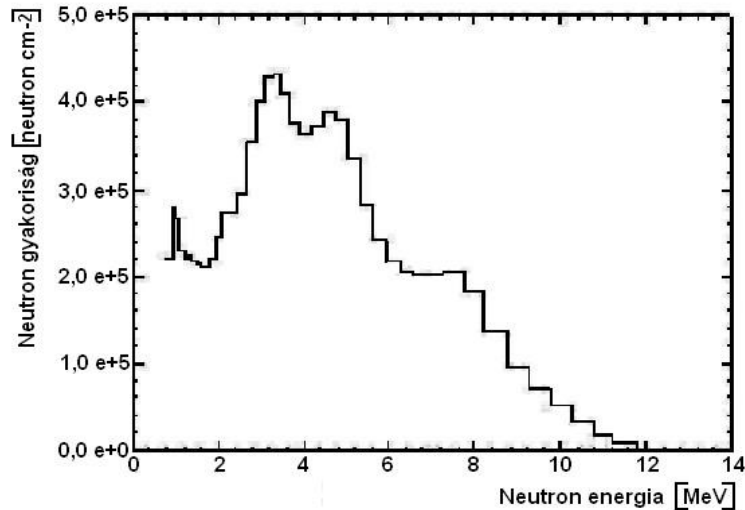


^{239}Pu α $t_{1/2}=24300$ év

A neutronokat energiájuk alapján a következő csoportokba sorolhatjuk:

- Lassú neutronok
 - termikus neutronok $0 < E < 0,44 \text{ eV}$
 - rezonancia neutronok $0,44 < E < 1000 \text{ eV}$
- Közepes energiájú neutronok $1 \text{ keV} < E < 500 \text{ keV}$
- Gyors neutronok $0,5 \text{ MeV} < E < 10 \text{ MeV}$
- Nagyenergiájú neutronok $10 \text{ MeV} < E < 50 \text{ eV}$
- Szupergyors neutronok $50 \text{ MeV} < E$

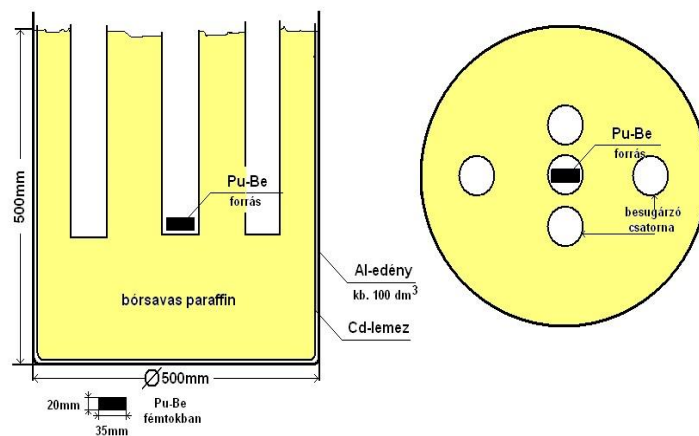
Mivel a neutronforrás gyakorlatilag csak gyors neutronokat sugároz le, az átlagos neutron energia 4,5 MeV. A neutron energia gyakoriságot a következő ábrán mutatjuk be:



1. ábra: A Pu-Be neutronforrás neutronenergia eloszlása

Jól látható, hogy a forrás csak gyors/nagyenergiájú neutronokat sugároz, ezekkel csak nagyon rossz hatásokkal végezhető el az inaktív minta aktiválása, ezért a neutronok energiáját moderátor (lassító) közeg segítségével csökkentjük. Ehhez ebben az esetben paraffint használunk, magas a proton koncentrációja így jó lassító-közeg, ugyanakkor nem túl magas a neutronbefogási hatáskeresztmetszete. Kedvezőbb lenne rezonancia neutronokkal végezni a besugárzást, azonban ennek beállítása az adott körülmények között nem megoldható, mert a forrás széles energia-tartományban sugároz le neutronokat.

Az aktiváláshoz az alábbi ábra szerinti besugárzó rendszert alkalmazzuk.



2. ábra: Aktiváláshoz alkalmazott besugárzó rendszer

Ahhoz, hogy ezt a neutronforrást alkalmazni tudjuk, olyan targetet (célanyagot) kell választanunk, amelynek nagy a termikus neutronokra vonatkoztatott befogási hatáskeresztmetszete (az aktiválódás valószínűsége). Ugyanakkor kedvező, ha nem túlságosan hosszú a keletkező radionuklid felezési ideje, mert ez nagyon megnövelné a szükséges

aktiválási időtartamot, célszerűen ezért olyan anyagokat választottunk, amelyeknél az aktiválási idő perc-nap nagyságrendbe esik.

Az aktiválási-ido megválasztása az aktiválás időfüggésének ismeretében viszonylag egyszerűen meghatározható:

$$A = \lambda N = \Phi \delta N_T (1 - e^{-\lambda t})$$

ahol: Φ = a neutron fluxus [$n \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$]

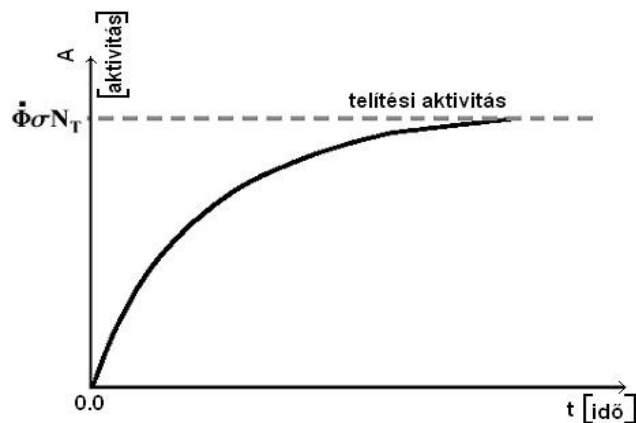
δ = a befogási hatáskeresztmetszet [barn]

N_T = az aktiválható magok száma

t = aktiválási idő

Lényeges fogalom az ún. *telítési aktivitás* = $\Phi \delta N_T$ ezt az értéket a besugárzott mintánk elvileg csak végtelen idő után éri el ($t \rightarrow \infty$). A gyakorlatban azonban már jól közelíthető ez az aktivitás érték az adott (előállítani kívánt) radionuklid felezési idejének 6-8 szorosa alatt. Ennek az a magyarázata, hogy a radioaktív izotópok bomlása már az aktiválás során megindul, és így természetesen egy idő után egyensúlyba jut a keletkező és elbomló radioaktív atomok száma.

Az összefüggésből látható, hogy a telítési értéket viszonylag gyorsan megközelítjük, de csak végtelen idő múlva érjük el:



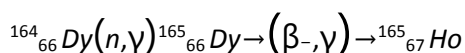
3. ábra: Telítési aktivitás

A rendelkezésünkre álló neutronforrás, illetve besugárzó rendszer segítségével sok, gyakran alkalmazott anyag (elem) aktiválását végezhetjük el. A bemutatásra szánt anyagaink között azonban találunk olyan elemeket is, amelyeket csak ritkán, speciális célokra használunk fel, mint például a nemes vagy ritkaföldfémek. Így használható a természetes réz, mangán, az arany és az ezüst, de viszonylag ritkábban találkozunk a ródiiummal, az indiummal vagy éppen a diszpróziiummal (ezek az anyagok un. Neutron aktivációs detektorok is).

A gyakorlat során az előbbi anyagokból választunk ki egy igen rövid és egy órás nagyságrendű felezési idővel jellemezhető radioaktív izotópot, amelyet a Pu-Be neutronforrás segítségével állítunk elő. Fontos a megfelelő aktiválási idő megválasztása egyszerűbb esetben azért, hogy elegendően nagy legyen a preparátum aktivitása, míg bonyolultabb termékösszetétel esetén azért, hogy elkerüljük a nem kívánt termék(ek) képződését.

A gyakorlat során az alábbi radioaktív izotópokat állítjuk elő, majd meghatározzuk a felezési idejüket:

Diszprózium



Ebben az esetben az aktiválás során egyféle izotóp képződik, amelynek a felezési ideje meghatározható a beütésszám adott időközönkénti mérésével. A laboratóriumban erre a célra β -szcintillációs detektorral felszerelt mérőberendezést alkalmazunk.

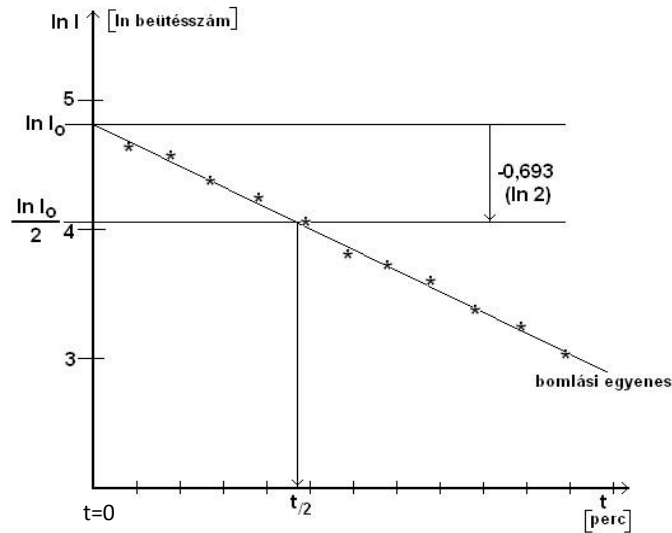
Indium

Komplexebb feladat az $^{116\text{m}}_{49}\text{In}$ felezési idejének meghatározása, mivel a stabil In két izotóp elegye, amelyekből az aktiválás során két-két radioaktív izotóp képződik:

Célmag	Izotóp összetétel [%]	δ_a [barn]*	Termék	t/2
$^{113}_{49}\text{In}$	4,23	56	$^{114\text{m}}_{49}\text{In}$	49 nap
$^{113}_{49}\text{In}$	4,23	2	$^{114}_{49}\text{In}$	72 sec
$^{115}_{49}\text{In}$	95,77	52	$^{116}_{49}\text{In}$	14 sec
$^{115}_{49}\text{In}$	95,77	155	$^{116\text{m}}_{49}\text{In}$	54 min

Célunk a $^{116\text{m}}_{49}\text{In}$ felezési idejének meghatározása, ezért célszerű ennek megfelelő aktiválási időt választani úgy, hogy a 49 napos felezési idejű izotópból gyakorlatilag ne keletkezzen. Ha néhány óras aktiválási időt választunk, akkor 3-féle izotóp képződik, ezért a mintát hűtjük (pihentetjük addig, amíg a két rövid felezési idejű izotóp elbomlik, ez kb. 10 percet jelent). Ezután a diszpróziumhoz hasonlóan meghatározható a felezési idő β -szcintillációs detektorral felszerelt mérőberendezés segítségével.

A kapott intenzitásmérési adatokat (logaritmikus léptékben) ábrázoljuk, az idő (lineáris skála) függvényében (az ábra elkészítésénél rendszerint a természetes alapú logaritmust alkalmazzuk).



4. ábra: Fél-logaritmikus grafikus transzformáció

A mérési adatok értékeléséhez fél-logaritmikus transzformációt alkalmazunk, a mérési adataink ugyanis az idő függvényében negatív exponenciális görbére esnek. Mivel a mért idő-beütésszám adat-párok alapján a statisztikus szórásból eredő bizonytalanság miatt csak nagyszámú mérési adat mérésével, illetve feldolgozásával tudunk kis hibával bíró görbét illeszteni, ezért az intenzitás-értékeket logaritmizáljuk, és az összetartozó idő- $\ln I$ adat-párokat ábrázoljuk. Így lényegesen kevesebb mérési adatra van szükségünk, hiszen a transzformáció miatt az adatok elvileg egy egyenesre esnek, ezt pedig már két pontja is meghatározza. A papíron ábrázolt egyenesnek megkeressük ezután az y -tengelyt metsző pontját és az ehhez tartozó $\ln I_0$ értéket. Ebből $\ln 2 - t$ levonva megkapjuk a kezdeti beütésszám felét (mivel $\ln(I_0/2) = \ln I_0 - \ln 2$). Az erre a pontra húzott vízszintes egyenes és a mérési pontokra illesztett egyenes metszéspontjából leolvashatjuk a felezési időt.

A mérési pontokból számítógépesen is meghatározható a felezési idő, itt a pontokra illesztett egyenes egyenletéből kapjuk meg az alábbiak szerint:

$y = a + bx$ az egyenes egyenlete, ebből $-b = \lambda$.

Ezüst

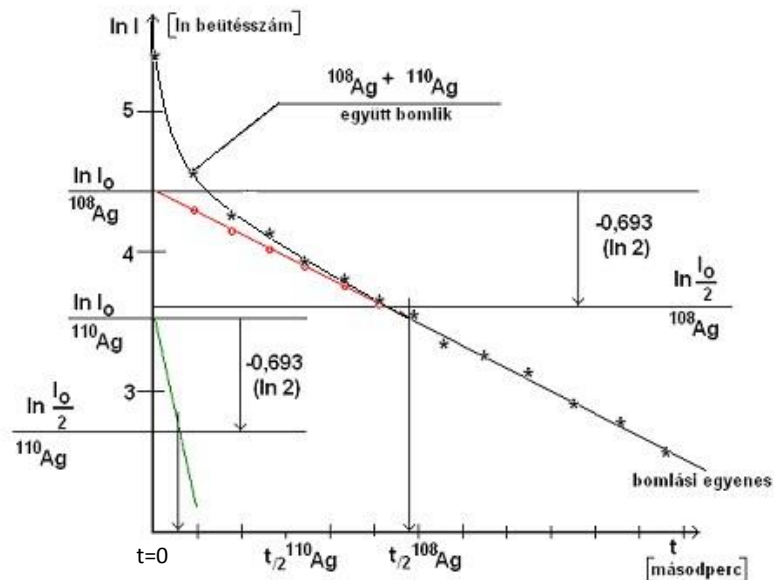
Megfelelő ideig végzett aktiválással akár egyetlen mérés segítségével több radioaktív izotóp felezési idejét is meghatározhatjuk. A természetes ezüst neutron aktiválása során három radioaktív izotóp keletkezik, ezek közül kettőnek a felezési idejét határozzuk meg. Az ezüst szinte egyedülálló az elemek közül, hiszen két stabil izotópja csaknem 50-50%-ban fordul elő, az aktivációs termékei közül csak a két rövidebbnek a meghatározásával foglalkozunk.

Az ezüst mintát 15 percig aktiváljuk, majd egy Geiger-Müller számlálósővel felszerelt automatikus számlálóval határozzuk meg a bomlási adatsort, amely 10 másodpercenként folyamatosan ismétli a beütésszám méréseket és kinyomtatja a mérési adatokat. A $^{108}_{47}\text{Ag}$ és $^{110}_{47}\text{Ag}$ izotópokat vizsgáljuk, a $^{110m}_{47}\text{Ag}$ izotóp jelentős mennyiségben történő keletkezésével a kis befogási hatáskeresztmetszet és a rövid aktiválási idő miatt nem kell számolni.

2. táblázat: Ezüst minta aktiválása

Célmag	Izotóp összetétel [%]	δ_a [barn]*	Termék	$t_{1/2}$
$^{107}_{47}\text{Ag}$	51,839	23	$^{108}_{47}\text{Ag}$	2,4 min
$^{109}_{47}\text{Ag}$	48,161	55	$^{110}_{47}\text{Ag}$	24,2 s
$^{109}_{47}\text{Ag}$	48,161	1,56	$^{110m}_{47}\text{Ag}$	253 nap

A mérési adatok feldolgozását az előzőekhez hasonlóan grafikus módszerrel végezzük.



5. ábra: Több radioaktív izotóp felezési idejét is meghatározása grafikus módszerrel

A mérés kezdetén még jelenlévő $^{110}_{47}\text{Ag}$ felezési idejét úgy határozhatjuk meg, hogy a $^{108}_{47}\text{Ag}$ bomlási egyenlete alapján számoljuk a kezdeti 10 másodperces mérési időkre vonatkozó $^{108}_{47}\text{Ag}$ intenzitás adatokat és ezeket a mért összeg intenzitásából kivonjuk. Ezzel egy újabb

intenzitás-idő adatsorhoz jutunk, amely a $^{110}_{47}\text{Ag}$ intenzitás adatsora és ez már a leírt módon értékelhető. Másik lehetőség, hogy rövidebb aktiválási időt választunk, hogy nagyrészt a rövidebb felezési idejű izotóp képződjön, és ennek mérjük a bomlását 3 másodperces mérési idővel, 5 perces aktiválás után. Ebből az előzőekhez hasonlóan meghatározható a felezési idő.

Az adott aktiválási viszonyok között (15 perc) a két rövidebb felezési idejű izotóp közel telítésig aktiválódik, míg a több mint 200 nap felezési idejű izotóp gyakorlatilag nem keletkezik. Ahogy az ábrán látható a mérés elején a fél-logaritmikus ábrázolás ellenére sem esik egyenesre a mérési adatsor. Ennek nagyon egyszerű magyarázata van, ekkor ugyanis még párhuzamosan bomlik a két radioaktív izotóp és csak a rövidebb felezési idejű radionuklid lebomlása után kapunk egyenest. Ennek az egyenes szakasznak az adatait felhasználva a korábban már leírt módon meghatározzuk a $^{108}_{47}\text{Ag}$ felezési idejét.

Ellenőrző kérdések:

1. A felezési idő definíciója.
2. Mi a Pu-Be neutronforrás működésének alapja?
3. Mennyi ideig használható a Pu-Be neutronforrás?
4. Miért van szükség moderátorra a minták aktiválásánál?
5. Milyen szempontok alapján választjuk meg a besugárzási időt?
6. Milyen tényezők befolyásolják az aktiválás során a minta aktivitását?
7. Mit nevezünk telítési aktivitásnak?
8. Mennyi idő kell a telítési aktivitás megközelítéséhez?
9. Milyen jellemzőket kell állandósítani az intenzitás-mérések során a felezési idő meghatározásánál?
10. Miért nem lehet párhuzamos mérésekkel csökkenteni mérésünk során a statisztikus szórást rövid felezési idők esetén?
11. Milyen detektorokat alkalmazunk a beütésszám adatok meghatározására?
12. Miért van szükség az aktivált In minta pihentetésére a mérés megkezdése előtt?
13. Miért alkalmazunk fél-logaritmikus transzformációt a mérési adatok értékelésénél?
14. Jellemző-e egy radioaktív izotópra a felezési idő? Hogyan határozzuk meg grafikusan a felezési időt?
15. Mely izotópok felezési idejét fogjuk vizsgálni a laborgyakorlat során?
16. Miért van szükség a háttérsugárzás mérésére?
17. Mikor kell figyelembe venni a háttérrel a mérések során?
18. Milyen típusú sugárzást mérünk a gyakorlat során?
19. Milyen neutronok alkalmasak a minták aktiválására?
20. Az ezüst minta vizsgálatánál miért nem kapunk egyenest a logaritmikus ábrázolásakor 15 perc aktiválás után?