

Analýza ionizujícího záření stavebních materiálů

Cíl úlohy

Kalibrace scintilačního analyzátoru pomocí vzorku obsahujícího známé množství draslíku. Orientační určení měrné aktivity vzorku stavebního materiálu. Studium spektra γ -záření radioaktivního izotopu draslíku. Analýza spektra γ -záření vzorku stavebního materiálu.

Úvod

Přirozená radioaktivita

Přirozená radioaktivita je důsledkem samovolného rozpadu atomového jádra. Jádro, které se rozpadne zaniká (přemění se na jiné), přitom je vyzářen nějaký typ záření (α , β , γ), pro daný rozpad typický. Relativní úbytek počtu jader (n) radioaktivního izotopu s časem je pro daný izotop konstantní a nazývá se *rozpadová konstanta* λ . Rozpadovou konstantu lze vyjádřit i pomocí poločasu rozpadu $T_{1/2}$ jako $\lambda = \ln 2 / T_{1/2}$. Máme tedy:

$$\frac{dn}{ndt} = -\lambda = -\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \text{ (s}^{-1}\text{)}$$

Aktivita vzorku je definována jako absolutní úbytek jader za jednotku času:

$$A = -\frac{dn}{dt} = \lambda n = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} n \text{ (Bq)} \quad (1)$$

Záření γ a jeho analýza

Během radioaktivní přeměny jader radioaktivních prvků, dochází v mnoha případech k emisi γ -záření a to i tehdy, když se jedná o přeměnu α či β . γ -záření je totiž často emitováno až po přeměně při přechodu excitovaného jádra nově vzniklého izotopu do základního stavu. Záření γ lze poměrně dobře detekovat, proto se často využívá k analýze radioaktivních vzorků. Velkou výhodou je pronikavost záření, která umožňuje analyzovat málo aktivní materiály bez nutnosti extrakce radionuklidu, jehož koncentraci chceme zjistit. Celkovou aktivitu vzorku můžeme totiž zvýšit nad práh citlivosti detekčního přístroje tím, že použijeme větší objem materiálu (což by nebylo nic platné při detekci záření α či β , protože ty mají velmi malou pronikavost a ve větším objemu materiálu se pohlcují).

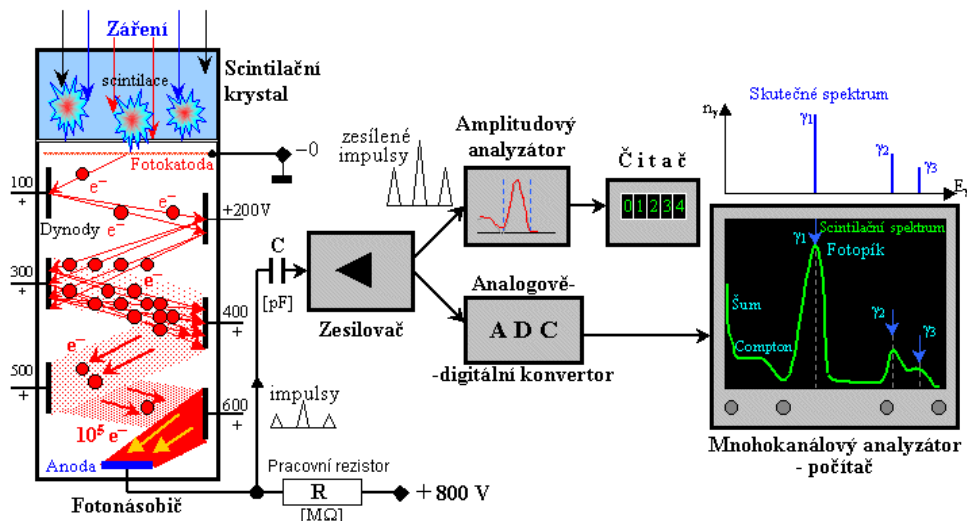
Pokud stanovovaný nuklid sám γ -záření nevyzařuje (nebo ho vyzařuje jen v malém množství) lze k detekci jeho přítomnosti použít jeho dceřiné produkty. To se používá například při detekci ^{226}Ra , který je součástí uranové řady. Přítomnost tohoto nuklidu se detekuje pomocí dceřiných produktů, které γ -záření produkují v dostatečném množství (viz obr. 1b a tabulka 1). Situaci poněkud komplikuje to, že meziproductem mezi ^{226}Ra a jeho detekovatelnými produkty je radon, který může ze vzorku vyprchat. Vzorky je tedy třeba před měřením uchovávat v těsných nádobách po dobu několika týdnů, dokud se neustaví dynamická rovnováha.

Různé radioizotopy vyzařují γ -záření o určité (charakteristické) vlnové délce λ a tedy i energii E_γ (připomeňme: $E_\gamma = h\frac{c}{\lambda}$). Podle této energie je možné identifikovat, který radioizotop ve vzorku je zdrojem ionizujícího záření. Příklad radioizotopu, který při rozpadu emituje γ -fotony o třech různých energiích je na malém diagramu v pravém horním rohu obrázku 2 (energie fotonů E_γ je na vodorovné ose, počet fotonů za jednotku času n_γ je na svislé ose). γ -záření lze detekovat a analyzovat například pomocí *scintilačního detektoru* γ -záření.

Scintilační detektor

Scintilační detektor se skládá ze tří základních součástí (viz obr 2):

1. scintilačního krystalu, ve kterém se každý γ -foton přemění na záblesk viditelného světla. Záblesk je tím intenzivnější, čím je energie fotonu větší,
2. fotonásobiče, ve kterém se záblesk světla přemění na elektrický impuls,
3. elektroniky, která elektrické impulsy vyhodnocuje (sčítá v závislosti na jejich energii)



Obrázek 2: Schéma scintilačního detektoru γ -záření [3]

Na obrázku 2 vpravo dole je výsledek analýzy již zmíněného skutečného spektra na obrázku 2 vpravo nahoře. Jak vidno, originální čárové spektrum je poněkud zdeformováno (rozmazáno). Má to několik příčin.

1. Scintilační krystal je monokrystal jodidu sodného aktivovaný thaliem NaI(Tl). Atomy thalia mají schopnost se excitovat, pokud kolem nich prolétne *nabitá* částice (např. elektron, γ -foton je elektricky neutrální, nemůže atom thalia excitovat). Na přechod jednoho atomu thalia do excitovaného stavu je spotřebováno asi 600 eV, při přechodu zpět do základního stavu se uvolní foton viditelného záření o energii 3 eV. Scintilační krystal nedetekuje γ -záření přímo, ale detekuje pohybující se elektrony, které vzniknou interakcí materiálu s γ -fotony. Za vznik elektronů při dopadu γ -fotonu jsou zodpovědné dva jevy:
 - (a) Foto-efekt (emise elektronů z látky ozářené fotony)
 γ -foton vyrazí elektron vázaný v atomovém obalu. Na to se spotřebovuje veškerá energie fotonu, ten zanikne. Volné místo po vyraženém elektronu je ihned zaplněno jiným elektronem z vyšší slupky téhož atomu, přičemž se uvolní energie ve formě fotonu X. Ten také dokáže vyrazit elektrony z vyšších slupek. V důsledku je prakticky veškerá energie

γ -fotonu přeměna na kinetickou energii několika elektronů. Tyto elektrony excitují atomy thalia, jak bylo popsáno výše. Pokud energie původního γ -fotonu je (například) 1200 keV, je nakonec generováno cca 2000 fotonů viditelného záření (1200 keV/600 eV). Analyzátor detekuje tento záblesk jako hlavní maximum (tzv. fotopík či pík totální absorpce, odpovídající fotonům γ , které byly v krystalu úplně pohlceny). Na obrázku 2 vpravo dole jsou tři fotopíky ($\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$).

(b) Comptonův rozptyl

K tomuto jevu dochází tehdy, když se γ -foton srazí s volným nebo slabě vázaným elektronem. Jev lze interpretovat jako dokonale pružný ráz dvou koulí. Jedna „koule“ je γ -foton, druhá je elektron. K rozdělení energií mezi koule dojde v závislosti na úhlu, do kterého se γ -foton odrazí, a protože úhel odrazu je spojitě proměnný, je i energie vyražených elektronů spojitá a vždy menší než byla energie původního fotonu. Na analyzátoru se tedy objeví široký pás vlevo od fotopíku. Pravá hrana tohoto pásu je maximální energie, kterou odražený γ -foton může mít - odpovídá přímému nárazu ($\alpha = 180^\circ$).

2. K výše uvedeným jevům nedochází jen v materiálu scintilačního krystalu, ale také v jeho okolí. Čím více materiálu je mezi zářičem a detektorem, tím více je spektrum „rozmazáno“.
3. Fotonásobič zachytí jen část fotonů (cca 10 %) ze záblesku viditelného záření, které vznikne pohlcením γ -fotonu. Pokud k záblesku dojde dále od vstupu do fotonásobiče, je zachyceno méně fotonů, než když k záblesku dojde blíže. Tento jev má za následek „rozmazání“ všech „píků“ statistického charakteru (gaussovská křivka).
4. Šum je způsoben zejména termoemisí elektronů z fotokatody. Šum se ve spektru projevuje zejména v nízkých energiích, odstranit ho lze jen zchlazením fotonásobiče na teplotu kapalného dusíku (77 K).

Určení aktivity vzorku

Aktivitu vzorku můžeme orientačně určit pomocí scintilačního analyzátoru, pokud jej zkalibrujeme pomocí etalonu, jehož aktivitu známe. Při měření aktivity je velmi důležitá geometrie uspořádání experimentu (viz obr. 3). Pokud je vzorek vzdálen od čidla, je čidlem registrována pouze malá část záření emitovaného vzorkem, pokud je vzorek v těsném kontaktu s čidlem (tzv. geometrie 2π) může být čidlem detekováno až 50 % veškerého záření, které je vzorkem emitováno. Speciálním případem 2π geometrie je *Marinelliho nádoba*, která se používá pro velkoobjemové sypké či tekuté vzorky. Až 100 % záření může být detekováno v geometrii 4π , při které se vzorek malých rozměrů nachází v hlubokém otvoru vyvrtaném do scintilačního krystalu (studnová geometrie).

Postup experimentu

1. Čidlo záření γ upevněte ve svislé poloze do stojanu. Přístroj spojte s čidlem, připojte k napájecímu zdroji a zapněte vypínačem na zadním panelu.
2. Po zapnutí přístroje stiskněte 2x tlačítko . Objeví se hlavní menu přístroje.
3. Vyberte (pomocí šipek) položku MCA a stiskněte . Objeví se záznam posledního měření. Na svislé ose je počet impulsů (tj. zaregistrovaných fotonů γ + šum), na vodorovné ose je energie fotonů.

Určení aktivity neznámého vzorku

1. Nastavte rozsah energií, ve kterých budeme zaznamenávat impulsy (měřící „okno“) a to tak, aby přístroj zaznamenával fotony v celém svém měřícím rozsahu:

- (a) Levá (spodní) mez okna: pomocí šipky (\leftarrow) najedte kurzorem na levý okraj grafu (po zapnutí přístroje tam kurzor je) a stiskněte **L**.
- (b) Pravá (horní) mez: pomocí šipky (\rightarrow) najedte kurzorem na pravý okraj grafu a stiskněte **P**.
2. Stiskněte Esc pro návrat do menu, pomocí šipek přejedte na položku MCS a potvrďte pomocí **Enter**. Objeví se záznam předchozího měření: na grafu je na vodorovné ose čas, na svislé ose je počet impulsů v měřícím intervalu. Měřící interval nastavte na 10 s (po stisku klávesy **T** (time) nastavíme čas a potvrdíme pomocí **Enter**).
3. Všechny „radioaktivní“ vzorky uklidte z dosahu čidla (nejprve je třeba určit tzv. „pozadí“). Zahajte měření stiskem klávesy **S** (start). V pravém horním rohu grafu se objevují měřené hodnoty (počet impulsů v měřeném intervalu a čas). Hodnoty zapisujte. Hodnoty představují *pozadí* a neměly by se v průběhu času příliš měnit (odchyly jsou šum). Zaznamenejte 30 hodnot a vypočtete průměrný počet impulsů za sekundu i_{bg} .
4. Kalibraci provedeme v 2π geometrii, pomocí Marinelliho nádoby. Nasaďte na čidlo Marinelliho nádobu naplněnou známým množstvím uhlíčitanu draselného. Na grafu by se měl projevit znatelný nárůst počtu impulsů v měřícím intervalu. Pokud jsou měřené hodnoty mimo rozsah, upravte měřítko svislé osy pomocí šipek $\downarrow\uparrow$ na klávesnici. Uhlíčitan draselný poslouží ke kalibraci přístroje. Využijeme toho, že přírodní draslík obsahuje známé množství (0,0117 %) radioaktivního izotopu draslíku ^{40}K . Známe je též poločas rozpadu $T_{1/2} = 1,3 \cdot 10^9$ roků. Když vypočtete počet atomů n radioaktivního izotopu draslíku v Marinelliho nádobě, můžete ze vztahu 1 určit aktivitu tohoto vzorku A_{kal} . Měřte opět 300 s, měření zaznamenávejte po 10 s. Vypočtete průměr všech 30 hodnot, které jste zaznamenali a vypočtete průměrný počet impulsů za sekundu i_{kal} . Nakonec nádobu sejměte a vzorek uklidte dostatečně daleko od čidla.
5. Vypočtete účinnost detekce¹

$$\eta = \frac{i_{kal} - i_{bg}}{A_{kal}} \quad (2)$$

6. Na čidlo nasaďte Marinelliho nádobu se vzorkem materiálu, jehož aktivitu chceme určit. Použijte vlastní materiál nebo materiál poskytnutý asistentem. Postupujte stejně jako v bodu 4, vypočtete průměrnou hodnotu počtu impulsů za sekundu i_v a nakonec A_v :

$$A_v = \frac{i_v - i_{bg}}{\eta} \quad (3)$$

7. Určete hmotnost vzorku m (tára Marinelliho nádoby je 132 g) a vypočtete měrnou aktivitu $a_v = A_v/m$ (Bq/kg). Diskutujte, zda materiál vyhovuje mezním hodnotám, platným pro materiály používané ve stavebnictví (150 Bq/kg pro materiály používané ve velkém množství (beton, cihly atp.), 200 Bq/kg pro materiály používané v malém množství (obkladačky atp.) a 1000 Bq/kg pro materiály používané mimo bytový prostor (silnice atp.) . Nakonec měření ukončete stiskem tlačítka **Esc**. Sundejte Marinelliho nádobu, vzorky uklidte dostatečně daleko od čidla.

Určení energetického spektra vzorku uhlíčitanu draselného a kalibrace přístroje

1. Pomocí tlačítka **Esc** se dostanete do hlavního menu, vyberte položku MCA, potvrďte **Enter**.
2. Nastavte čas měření na 300 s (klávesa **T**, napsat 300, Enter).

¹Vztah 2 stejně jako rovnice 3 je velmi zjednodušený. Zcela je ignorován fakt, že účinnost detekce závisí na energii fotonů (pro každý fotopík je jiná) a hlavně je zanedbáno, že ne každá radioaktivní přeměna je doprovázena emisí γ -fotonu (jaká část přeměn daného nuklidu je doprovázena emisí γ -fotonu udává výtěžek, uvedený v tabulce 1. V rovnicích 2 a 3 předpokládáme pro jednoduchost, že výtěžek je 100 %.

Tabulka 1: Energie a výtěžky hlavních fotonů používaných při analýze přírodních vzorků [2]

Stanovovaný nuklid	Měřené nuklidy	Energie (keV)	Výtěžek (%)	původ
^{40}K	^{40}K	1460	11	přírodní
^{137}Cs	$^{137\text{m}}\text{Ba}$	662	85	Černobyl atp.
^{226}Ra	^{214}Pb	242	7	uranová řada (přírodní)
		295	19	
		352	36	
	^{214}Bi	609	45	
		1120	15	
		1764	16	
^{228}Ra	^{228}Ac	911	28	thoriová řada (přírodní)
		969	17	
^{228}Th	^{208}Tl	583	30	thoriová řada (přírodní)
		861	5	
	^{212}Bi	727	12	
^{238}U	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1001	0,59	uranová řada

- Spusťte měření pozadí klávesou **S**. Na grafu je počet impulsů v závislosti na energii. Pro středí laboratoře je poměrně málo radioaktivní, přístroj tedy zaznamenává především šum na nízkých energiích.
- Po ukončení předchozího měření na čidlo nasadte Marinelliho nádobu naplněnou uhlíčitanem draselným a spusťte měření klávesou **S**. Po ukončení měření prostudujte tvar spektra. Ideální by bylo od tohoto odečíst pozadí naměřené v předchozím bodu - bohužel nemáme k dispozici potřebný software, odečtěte ho proto jen v duchu, kvalitativně :). Spektrum draslíku vypadá podobně jako obrázek napravo na obr. 2, ale je jednodušší. Draslík při rozpadu emituje γ záření při energii 1460 keV (viz tabulka 1, na spektru je tedy jen jediný fotopík. Na střed píku najedte kurzorem - údaj na displeji vpravo nahoře indikuje počet impulsů (zaregistrovaných γ -fotonů) na pozici kurzoru. Počet impulsů na středu fotopíku zaznamenejte. Druhé číslo za počtem impulsů udává energii těchto fotonů v keV (kiloelektronvoltech), hodnota by měla být blízká 1460 keV. Pokud není, znamená to, že přístroj je špatně zkalibrován. Pro kalibraci stiskněte klávesu **K**, napište hodnotu 1460 a potvrďte **Enter**. V dalším měření už kalibraci neměňte!!

Analýza γ -spektra neznámého vzorku

- Postupujte podobně jako při měření spektra uhlíčitanu draselného, pozadí už neměřte. Na čidlo nasadte Marinelliho nádobu s neznámým vzorkem. Nastavte čas měření na 1000 s.
- Po ukončení měření se pokuste identifikovat hlavní fotopíky ve spektru. Najedte na ně kurzorem a odečtěte energii γ -záření příslušného fotopíku.
- Pro každý fotopík najděte v tabulce 1 radionuklid s nejbližší² hodnotou energie γ -záření.

Protokol odevzdejte, prosím, prostřednictvím MS Teams či Moodlu, podle toho, kde je úloha zadána.

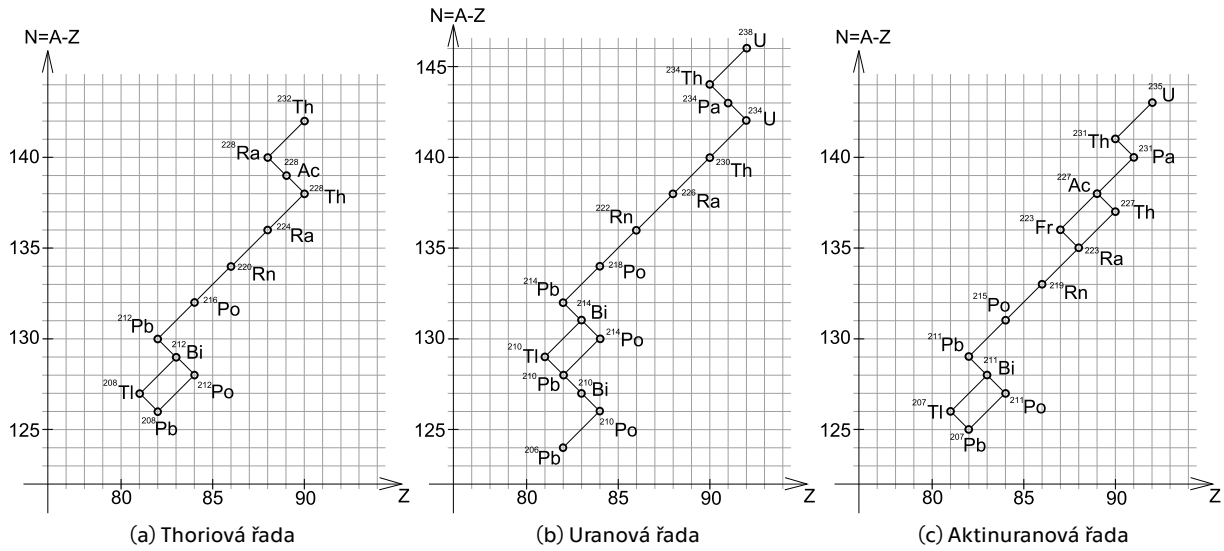
Reference

- [1] Praktika FJFI ČVUT, Spektrum gama záření <http://praktika.fjfi.cvut.cz/GammaSpektr/node1.html>

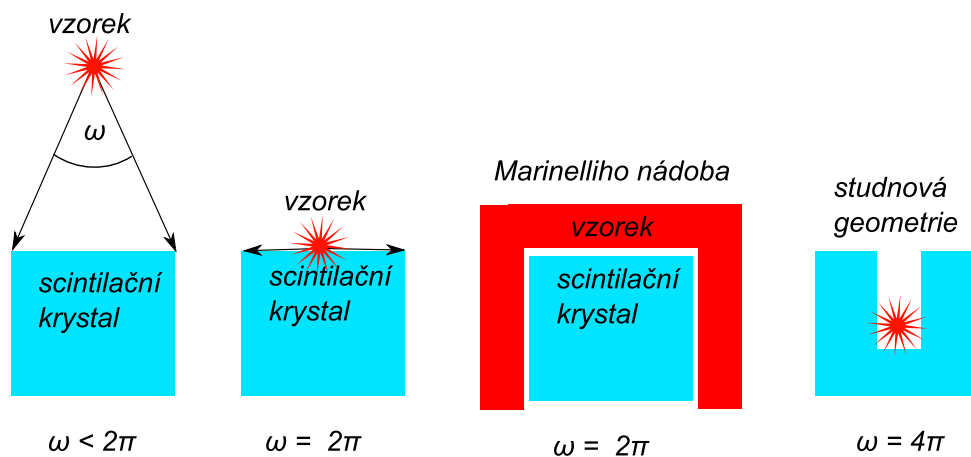
²přístroj je sice zkalibrován, ale pouze jednobodově, hodnoty na opačném konci spektra nemusí „sedět“ přesně

- [2] Praktika FJFI ČVUT, Stanovení radionuklidů - zářičů gama - ve vzorcích životního prostředí http://www.fjfi.cvut.cz/kjch/materialy/RCHP/GS_ZP.pdf
- [3] Vojtěch Ullmann: Detekce a spektrometrie ionizujícího záření <http://astronuklfyzika.sweb.cz/DetekceSpektrometrie.htm#4>
- [4] Tabulka γ -zářičů <http://www.csupomona.edu/~pbsiegel/bio431/genergies.html>.
- [5] Rozpadová řada (Wikipedia) http://cs.wikipedia.org/wiki/Rozpadov%C3%A1_%C5%99ada
-

Datum poslední aktualizace návodu: 3. prosince 2020



Obrázek 1: Přírodní rozpadové řady



Obrázek 3: Geometrie měření vzorků