

FSS

Folyadékszcintillációs spektroszkópia

Bevezetés

A radioaktív sugárzások detektálásának technikája a felfedezés után nagyon nagy fejlődésen ment keresztül. A korai időkben a sugárzások hőhatásán alapuló detektorokat építettek, majd felfedezték a szcintillációs detektor első fajtáit, melyek ZnS festékrétegből álltak. A radioaktív sugárzás becsapódásakor látható fényfelvillanás keletkezik a cink-szulfidban. Ez a szcintilláció. Rutherford idejében ezt mikroszkóppal számlálták. A fotoelektronsokszorozó kifejlesztése volt a nagy technikai lökés, ami a szcintilláló anyagokon alapuló detektorok elterjedését előidézte. Az emberi szem helyett a fotoelektronsokszorozó számolja a felvillanásokat, elektromos jelet állít elő belőlük, sőt a jel nagyságát is meg tudjuk pontosan vizsgálni a mai digitális technológiákkal. A szcintillációs detektorok összefoglalva mindig két részből állnak: van egy szcintillátoranyag ahol a látható fényfelvillanások keletkeznek, és van mellette egy vagy több fotoelektronsokszorozó.

A folyadékszcintillációs detektor annyiban speciális, hogy a szcintillátor anyaga folyadék. Ennek a ténynek nagy előnyei lehetnek néhány esetben. A folyadékban el lehet ugyanis keverni a szintén folyadék mintákat. Ekkor a bomló radioaktív anyagok közvetlenül a felvillanásra képes molekulák mellett helyezkednek el. Ilyen esetben a kis energiájú radioaktív sugárzások, melyeknek rövid a hatótávolsága, azok is képesek ionizálni a detektoranyagot. Ilyenek például az 500 keV-nél kisebb energiájú béta-sugárzások, vagy a természetes alfa-sugárzás, melynek a milliméternél rövidebb a hatótávolsága. Becsomagolt detektorokba ezek a sugárzások nem tudnak bejutni, és így ezek vizsgálatára különösen jó megoldás a folyadékszcintilláció.

A folyadékszcintillációs detektorokban legelterjedtebben mért izotópok a ^3H (trícium) és a ^{14}C (radiokarbon). Ezek béta bomló izotópok, az elektronok maximális energiája 18,6 keV ill. 156 keV (Table of Isotopes 8th Edition, 1996). Ezek nagyon kicsi energiának számítanak az általában MeV nagyságrendű bomlási energiákhoz képest. További béta-bomló izotópokat is lehet ugyanezzel a technikával detektálni, de ezek részleteire most nem térünk ki. A folyadékszcintillációval alfa-bomlásokat is lehet vizsgálni. A természetes alfa-sugárzó izotópok alfa-részecskéinek energiája nagyjából 5-8 MeV tartományban van, ezek a sugárzások egységnyi úton több molekulát tudnak ionizálni (ugyanis egy elektronnal történő ütközéskor annak több energiát adnak át nagyobb tömegük miatt, mint amennyit egy azonos energiájú elektron át tud adni egy másik elektronnak), ezért hamarabb megállnak, mint egy azonos energiájú elektron. Az 5MeV-es alfa-sugárzás hatótávolsága levegőben ugyan 3,5 cm, de folyadékban kisebb, mint 1 mm. Ezért a folyadékszcintilláció itt is egy jól használható technika.

A vizek tríciumaktivitásának meghatározása egyrészt környezetvédelmi okokból elterjedt a világon, másrészt a felszín alatti vizek korának meghatározására is használható. Kis aktivitások esetében a tríciumot dúsítani is szokták. A múlt században a trícium béta-spektrumának alakjából próbálták következtetni a bomlásban keletkező antineutrínó tömegére. A spektrum végének alakja valóban függ a neutrínó tömegétől, de olyan kicsi különbségeket kell megmérni, hogy a technika pontossága még a mai napig sem teszi

lehetővé a neutrínó tömegének ilyen mérésekre alapuló becslését. Ezt napjainkban más úton mérik.

A radiokarbon is felhasználják sokféle tudományos kutatásban. Általában biológiai minták vizsgálata során használják. A sok szénatomot tartalmazó biológiai anyagokban nyomjelzőként radiokarbon atomokat juttatnak be a mintába, és vizsgálják, hogy mennyi kötődött meg, és hova.

Az alfa-sugárzásra ismert alkalmazások között legelterjedtebb a radon mérése. A természetes vizekben mindig előforduló radon mérésére a folyadékszintilláció az egyik legalkalmasabb módszer. Így mérték fel például a felszín alatti vizek radontartalmát az USA-ban, elkerülendő a nagy aktivitású vizek lakossági felhasználását.

A folyadékszintillációnak számos más alkalmazása is van. Ilyenek például a neutrínódetektorok. A Napból érkező neutrínók bármilyen anyagban található elektronokkal kölcsön tudnak hatni rugalmas szórás folyamatával. Ilyenkor egy neutrínó az energia és az impulzuszemlegmaradás törvényeinek megfelelően energiát ad át egy elektronnak (meglöki) és így mozgó elektron keletkezik, ami már tudja a közeget ionizálni, ezért detektálható. Ezen az elven alapul például a Borexino neutrínódetektor, ami Olaszországban a Gran Sasso Nemzeti Laboratóriumban foglal helyet. Ez az Appenninek közepén egy autó-alagút leágazásában van, kb. 1700 méter vízzel ekvivalens kőzet árnyékolásában. A neutrínók átjönnek a hegyen, mert alig hatnak kölcsön az anyaggal, és a Borexino detektorában meglöknek egy elektront. Ez az anyag egy folyadékszintillátor (ún. pszeudokomén). A keletkezett látható fényfelvillanásokat tükrök segítségével fókuszálják a fotoelektronsokszorozókra, így detektálják a neutrínókat. A kísérletben van fontossága a radonnak is. Ez ugyanis a legfontosabb háttér a laboratóriumban, és a radon előszeretettel oldódik bele a folyadékszintillátor anyagokba, ezzel elektromos jelet hoznak létre, amit el kell választani a neutrínók okozta elektromos jelektől.

Trícium és a radiokarbon keletkezése és bomlása

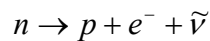
A Földön található természetes radioaktív izotópok között vannak olyanok, melyeknek nagy felezési ideje. Ezek a Föld anyagának keletkezése során keletkeztek, például urán, tórium, ^{40}K . A rövid felezési idejű izotópok, mint a trícium és a radiokarbon napjainkban is keletkeznek, így lehet az, hogy nem bomlottak még el. Ezek az izotópok a felső légrétegekben jönnek létre a kozmikus sugárzás hatására. A nagyenergiájú kozmikus protonok, amik a Napból, vagy a Naprendszeren túlról érkeznek, a felső légrétegben az ott lévő anyaggal kölcsönhatva neutronokat hozhatnak létre. A neutronok semleges részecskék és nekiütközhetnek a légköri nitrogén molekulák atommagjának. A neutronok egy ilyen molekula egyik atomjának atommagjából aztán bizonyos valószínűséggel ki tudnak ütni egy protont, vagy magukkal tudnak rántani még két nukleont, egy neutront és egy protont. Az első esetben a ^{14}N izotópban egy proton helyét egy neutron foglalja el, ezzel a rendszám eggyel csökkent, és az 5730 év felezési idejű ^{14}C keletkezik. – A második említett esetben kirepülő proton és két neutron alkotja a 3-as tömegszámú hidrogént, a tríciumot, miközben az igen stabil ^{12}C marad vissza. A trícium felezési ideje 12,3 év. Mindkét radioaktív izotóp keletkezése után diffúzióval szétterjed az egész légkörben és az egyes légköri körforgási ciklusok résztvevőjeként beépülhet az élő szervezetekbe a hidrogén, illetve a szénatomok helyre, hiszen kémiai tulajdonságaik ugyanazok. A felszíni vizek ilyen módon természetes folyamatok miatt tartalmaznak radioaktivitást. Ezek a radioaktív izotópok az ember szervezetébe is beépülnek (már a kialakulásunk óta), így saját magunk is radioaktívak vagyunk, ha nem is nagy mértékben. Egy átlagos ember aktivitását kiszámolhatjuk, ha tudjuk, hogy benne kb. 7 kg hidrogén és 16 kg szén található (Ed Uthman, *Elemental Composition of the Human Body*, http://web2.airmail.net/uthman/elements_of_body.html). Ezen felül mérések alapján tudjuk, hogy a trícium elemgyakorisága 10^{-18} , a radiokarboné pedig 5×10^{-12} .

Ezek után a felezési idők alapján már meghatározhatjuk a keresett aktivitásokat. A hidrogénnek kb. néhány Bq, a radiokarbonnak kb. 4000 Bq az aktivitása egy átlagos emberi testben (70 kg). A trícium és a radiokarbon mérése a sugárvédelmi gyakorlatban is sokszor használt technika.

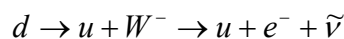
A trícium bomlása a következő folyamat során megy végbe.



A tríciumban két neutron és egy proton található, a héliumban két proton és egy neutron. A különbség az, hogy a trícium egyik neutronja átalakult protonná. Ez a béta-bomlás a nukleonok szintjén:



A neutronban lévő három valencia-kvark közül kettő d és egy u kvark, a protonban csak annyi a különbség, hogy az egyik d kvark helyett u kvark foglalja el a valencia-kvarkok egyik helyét. Azaz egy d kvark alakul át u kvarkká. Ilyenkor egy W^- bozon keletkezik, ami a gyenge kölcsönhatás közvetítő részecskéje, és ennek bomlása során keletkezik az elektron és az antineutrínó:



A radiokarbon bomlása teljesen analóg. Csak az atommag szinten van különbség:



A nukleon szinten már ugyanúgy egy neutron alakul át protonná, mint a trícium esetében. (Megjegyzés: ellenőrizzük a töltés, a barionszám és az elektronikus leptonszám megmaradását a folyamatokban.) A leptonszám megmaradási törvénye miatt van az, hogy az elektronnal együtt mindig antineutrínó keletkezik a béta-negatív bomlásokban.

A mérési elrendezés

A radioaktív sugárzások anyagon áthaladva energiát adnak le, főként azért, hogy a pályájukat környező atomokat ionizálják vagy gerjesztik. Az atomok és molekulák azonban nem maradnak sokáig gerjesztve, hanem rövid idő alatt visszajutnak a gerjesztés nélküli alapállapotukba. Eközben a fölös energiától valamilyen úton módon megszabadulnak a már említett szcintilláció jelensége során. A radioaktív bomlásban keletkezett részecske, például egy béta-bomlásban keletkezett elektron anyagon történő áthaladása során rengeteg molekulát vagy atomot tud gerjeszteni. Így egy jól szcintilláló anyag esetén a szcintilláció során általában egyszerre sok látható foton keletkezik, és szalad szét a tér minden irányába. Amikor a közeg (detektoranyag) folyadék, akkor beszélünk folyadék-szcintillációról. Ilyenkor a szcintilláló közeget (tekintve, hogy általában több alkotóból áll) gyakran hívjuk koktélnak. A koktélok anyaga sokféle lehet. Azonban az összetételük mindig a következő szerint alakul: van egy oldószer, ami a koktél anyagának túlnyomó többségét alkotja. Ehhez kevernek kis százalékban ún. primer szcintillátort és szekunder szcintillátort. Az oldószer ugyanis olyan látható fényt bocsát ki, ami nem optimális. A fotonok a felvillanás után a fotoelektronszorzóra esnek, és annak fotokatódján fotoeffektussal elektronokat ütnek ki. Ezen folyamat hatásfoka függ a foton hullámhosszától. A szcintillációban keletkezett fotonok

ebből a szempontból nem a legoptimálisabbak. A két szcintillátor anyag eltolja a hullámhosszat az optimális irányba (magnöveli).

A fotoelektron-sokszorozó

A sugárzások detektálásánál általában azt a feladatot kell megoldani, hogy a sugárzás által leadott energiát valamilyen módon elektromos jellé alakítsuk. Ezt teszi meg a fotoelektronsokszorozó, ami a felvillanásokban lévő fotonokat alakítja át mérhető nagyságú elektromos jellé. A működésének lényege az, hogy a megszámlálható fotonok egy vékony fémmel (pl. berilliummal) bevont üvegablakra esnek, és e fémből foto-effektussal elektront löknek ki. Ezeket az elektronekat néhány száz volt feszültséggel felgyorsítjuk, és befókuszáljuk egy speciális fémfelületre, az ún. dinódára. A dinóda olyan anyag, melyre az elektronek becsapódva, ott újabb elektronekat löknek ki. Egy becsapódó elektron kb. 3 másik, de kisebb energiájú, vagyis lassúbb elektront hoz létre. Ezeket aztán újra felgyorsíthatjuk, és egy újabb dinódára vezethetjük, ahonnan már ~ 9 elektron fog kirepülni. A sort tovább lehet folytatni. A gyakorlatban 8-12 dinóda alkalmazásával egy fotonból kb. egymillió elektront is sokszorozhatunk, és ha ezek egy ellenálláson rövid idő alatt áthaladnak, akkor egy jól megfigyelhető áramimpulzust kapunk. Ezt elektronikus egységekkel fel lehet dolgozni. Például meg lehet számolni, hány ilyen impulzus érkezett, vagy meg lehet vizsgálni egyenként az áramlökések nagyságát is. – Jegyezzük meg, hogy a fotoelektron-sokszorozó egy igen kis zajú erősítőnek tekinthető.

A laboratóriumi gyakorlatban egy TriCarb 1050 típusú detektort használunk. A vizes mintákat 20 ml térfogatú küvetta helyezésére, a műszer belsejében lévő fotoelektron-sokszorozók a küvetta helyezett köztételekben (szcintilláló folyadékban) keletkező felvillanásokat megszámlálják. Ezzel a módszerrel a vízminták radioaktivitása meghatározható.

A jelek feldolgozása: amplitúdó-analizátor

Egy felvillanás során keletkezett fotonok számát nevezzük fényhozamnak (L). A fényhozam arányos a detektorban leadott energiával. Nagyobb energiájú részecske ugyanis több molekulát fog gerjeszteni, és így több foton villan fel. Megjegyezzük, hogy nem a teljes leadott energia alakul át felvillanássá, csak 10-20%. A többi molekula más folyamattal veszti el gerjesztési energiáját (pl. ütközések). Ez az ún. fénykonverziós hatásfok más az elektronekra és más az alfa-részecskékre is. Az alfa-részecskék ugyanis fajlagosan (mint említettük) jobban ionizálnak, így magasabban gerjesztett állapotok keletkezhetnek, mik nagyobb valószínűséggel gerjesztődnek le nem fotonkibocsátás útján.

A detektorban a felvillanásokat két fotoelektronsokszorozó nézi, melyek fotokatódjainak felülete legyen A . Ez nem fedi le a teljes térszöveget, nem veszi körbe teljesen a mintát. Már ezért sem tudjuk az összes felvillanó fotont egy adott bomlás esetén detektálni. Továbbá a fotokatódra érkező fotonok 80%-a egyszerűen átmegy fotokatódon, ami olyan vékony, hogy szinte átlátszó. A maradék 20% fog fotoelektront kelteni csak, azonban ez a kb. 20% ez minden bomlás során ugyanannyi egy adott detektorban, azaz a keletkezett fotoelektronok száma arányos a fényhozammal. A fotoelektronsokszorozó ezek után felsokszorozza az elektronekat. Az anódra beérkező elektronek száma szintén arányos az eddig említett paraméterekkel, így a fényhozammal is. Ebből keletkezik egy elektromos jel, ami kb. néhány mikroszekundum idejű, és az alakja elektronikusan meghatározott. A jel magassága arányos ezek miatt a fényhozammal. A jel magasságát egy analóg-digitál-konverter megméri, és átalakítja egy 1-4096 közötti egész számmá. Ezt a számot hívjuk csatornaszámmal. Ez a jelünk amplitúdójával arányos. Emiatt a fényhozammal is és a köztételekben leadott energiával.

Ezért a csatornaszámot kalibráció útján energia mértékegységű mennyiséggé fogjuk átalakítani.

A fényhozam mértékegysége a kiloelektronvolt-elektron-ekvivalens: keVee. Megadja hogy egy 1 keV energiájú elektron által keltett fotonok számánál (N_I) hányszor több keletkezett az adott bomlásban (N). $L=N/N_I$, $[L]=\text{keVee}$. Amikor béta-bomlásról van szó, akkor az L megadja ténylegesen az elektron energiáját, amikor alfa-bomlást detektálunk, akkor nem. Akkor más az említett fénykonverziós hatásfok, és egy E MeV energiájú alfa-részecske csak kevesebb fényhozamot kelt, általában néhány száz keVee-t. Egy 1 keV-es alfa részecske nem ugyanannyi fotont kelt, mint egy 1 keV-es elektron. Ez az elemi effektus.

Az amplitudo-analizátor meghatározza a jel magasságát, és ebből a kalibráció után energiára kalibrált csatornaszámunk lesz. A radioaktív minta beütéseinek amplitudóját egyenként meghatározza a műszer, és gyakoriság-eloszlást készít belőle. Ez a folyadékszintillációs spektrum. A mérés során a trícium, a radiokarbon és a radon spektrumát is tanulmányozzuk .

A radon alfa-spektroszkópiája

A mintavétel után a minta 10 ml-ét a küvettába juttatjuk. Ez úgy történik, hogy a térfogat pontos beállítása után a vizet a küvettába bemért 10 ml folyadék-szintillátor anyag, esetünkben OptiFluor O alá fecskendezzük. Az OptiFluor O ugyanis nem vízzel elegyedő folyadék. A készített minta nem lesz egyfázisú, hanem a szcintillációk a kevésbé sűrű szcintillátor fázisban történnek, míg maga a vízminta a sűrűbb alsó fázisba kerül. A folyamat során elkerüljük, hogy a radon a fecskendőbe került vízből a levegőbe távozhasson. (Egyébként a radon szívesen szökik ki a vizekből.) A küvettát ezután gyorsan bezárjuk, és parafilmmel körültekerjük háromszor, hogy a benne lévő levegő megfelelően be legyen zárva. A radon atomjai diffúzióval átmennek a szcintillátor fázisba, és egy-két óra alatt kialakul a koncentrációk egyensúlya. Az OptiFluor O speciálisan olyan anyag, amely nemcsak hogy szcintillációra képes, de még a radont sokkal jobban is oldja, mint azt a víz teszi, ezért a radon-atomok többsége a szcintillációs fázisban lesz a diffúziós egyensúly beállta után. A felső fázisban elbomló radon alfa-részecskéi annyi szcintillációs fotont keltenek, mint egy kb. 150 keV energiájú elektron. A mérési tartományt ennek megfelelően kell majd beállítani. Ezzel készen állunk a TriCarb műszer használatára. A műszert úgy kell beállítanunk, hogy az a radon alfa-sugárzásának legjobban megfeleljen, és más dolgunk nincs, mint megszámolni a keletkezett áramimpulzusokat, más néven beütéseket egy adott idő alatt (ez általában 15 perc).

A minta radon-tartalmának meghatározása

Először azt határozzuk meg, hogy a mintánk hány elektromos jelet keltett percenként. Ennek nálunk is szokásos jele a CPM, azaz Counts Per Minute. Ez nem feltétlenül azonos a bomlások számával, mert a detektorunknak lehet 100%-nál kisebb hatásfoka is. A mérés során felhasználjuk egy korábbi olyan mérés eredményét, amikor ismert aktivitású radonos oldatok CPM-jét határoztuk meg. Ezen kalibrációs mérés eredménye a kalibrációs görbe, ami a CPM és a 10 ml-es minta aktivitását összeköti. A minta térfogata ismert, ezért az aktivitás-koncentráció is meghatározható. Ennek jele c , és

$$c = \frac{A}{V},$$

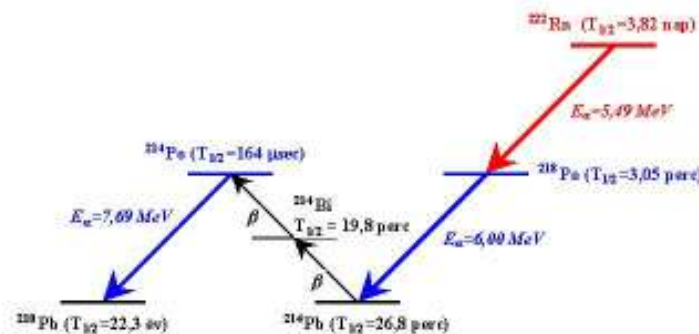
ahol A a minta aktivitása (a mintában másodpercenként történő bomlások száma) és V a minta térfogata. Az aktivitás-koncentrációt Bq/l-ben mérjük. Ismert radon-koncentrációjú mintákkal elvégzett kalibráció eredménye a következő lett:

$$c = \frac{CPM - 10}{1.98} Bq/l$$

A radon aktivitásából azután a benne lévő radon-atomok száma is meghatározható. Ennek alapja az az összefüggés, hogy az N darab radioaktív izotópot tartalmazó rendszerben a másodpercenkénti bomlások száma arányos N-nel, és az arányossági tényező a λ .

$$A = \lambda N = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} N$$

A λ neve bomlási állandó, mértékegysége 1/s, $T_{1/2}$ az izotóp felezési ideje, a radon esetében 3,8 nap. A hosszú felezési idejű izotópok (kb. millió év) mennyiségét általában ppm-ben szokás megadni, ami milliónkénti részecskét (parts per million) jelent. A rövidebb felezési idő esetében magát az aktivitást, vagy aktivitáskoncentrációt adjuk meg.



A radon bomlása után az ábra szerinti további bomlások mennek végbe. Ebből a radon alfa-bomlása 5,5 MeV energiával zajlik, és a leányeleme a ^{218}Po alfa-bomlása következik 6,0 MeV energiával. Ezután két béta bomlás kb. 20 perc felezési idővel, majd egy újabb alfa-bomlás, a ^{214}Po bomlása, 7,7 MeV energiával. A folyadékszintillációs spektrumon három diszkrét csúcsot és egy folytonos háttér szerű béta-régiót fogunk látni. A 6,0 MeV és az 5,5 MeV energiánál lévő csúcsok azonban a csúcsok félérték-szélességénél közelebb vannak egymáshoz, ezért ezt egy csúcsnak látjuk.

Mérési feladatok

1. Vegyük fel a trícium standard spektrumát 20-szor, 1 perces mérési idővel.
 - a) Határozzuk meg a minta aktivitását a minta megadott adataiból.
 - b) Határozzuk meg a minta detektálásának hatásfokát az A csatornában.
 - c) Határozzuk meg a CPM-ek szórását, és hasonlítsuk össze azzal, amit a gép kiír!
 - d) Hogyan számolhatja ki a gép a mérés bizonytalanságát már egyetlen mérésből?
 - e) Mentsük el a spektrumokat egy excel fájlba. Dolgozzuk fel az excel fájl tartalmát! Először számoljuk ki a az egyes spektrumok átlagos energiáját, majd nézzük meg ezek átlagát. Hányad része ez a maximális energiának?
 - f) Konstruáljunk egy átlagos spektrumot, az egyes spektrumok átlagolásával. Nézzük meg, hogy mennyire térnek el a beütések ettől az átlagspektrumtól! Számoljuk ki egy-egy adott csatornaszámhoz tartozó beütések szórását, és ábrázoljuk a szórás függvényében az átlagos beütések számát minden csatornaszámhoz. Mit tudunk erről mondani?

2. Vegyük fel a radiokarbon energiaspektrumát 5-ször 3 perces mérési idővel.
 - a) Határozzuk meg az átlagos energiát, és vessük össze a maximális energiával. Az arány miért tér el a trícium esetétől? (Gondoljunk vissza a Korszerű fizikai módszerek laboratóriumi gyakorlat MSP mérésére:
<http://ion.elte.hu/magfiz/msp/msp.htm>)

3. Mérjük meg egy rádium standard spektrumát 10 perces mérési idővel.
 - a) Értelmezzük a spektrumot!
 - b) Határozzuk meg a csúcsok fényhozamát, és vessük össze az ismert alfa-energiákkal.
 - c) Határozzuk meg a hányszor kisebb az alfa-részecske fénykonverziós hatásfoka az elektronénál. Energiafüggetlen lehet ez?
 - d) Határozzuk meg a minta radontartalmát, és számoljuk ki hány darab rádiumatom van a mintában.