

Radiometrie 3 (RM 3)

Neutronenaktivierung von Silber

Grundlagen

Durch Reaktionen zwischen Atomkernen und Teilchen (z.B. Protonen, α -Partikel, Neutronen) oder Photonen kann die Bildung anderer stabiler oder instabiler Nuklide erfolgen. Neutronen besitzen keine Ladung und benötigen daher keine Energie zur Überwindung der Coulomb-Barriere des Targetkerns, so dass Neutronen aller Energiegruppen (schnelle Neutronen n_s mit einer Neutronenenergie $E_n > 10$ keV, intermediäre Neutronen n_i mit E_n 0,4 eV...10 keV oder thermische Neutronen n_{th} mit $E_n < 0,4$ eV) Kernreaktionen auslösen können.

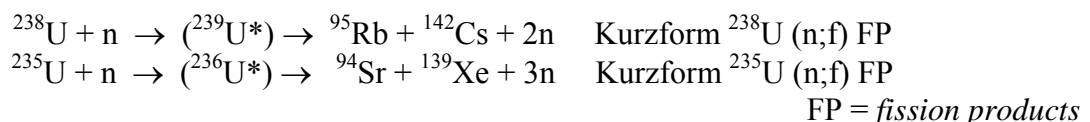
Neutroneninduzierte Kernreaktionen sind:
 Austauschreaktionen wie



Einfangreaktionen wie



oder Spaltungsreaktionen wie



Bei diesen Reaktionen wird die freiwerdende Bindungsenergie auf Grund der Massenverhältnisse praktisch vollständig auf das aus dem gebildeten Kern emittierte Teilchen übertragen bzw. es erfolgt Emission von Photonenstrahlung. Bedeutung besitzen derartige Kernreaktionen u.a. für die Energiegewinnung, die Isotopenproduktion und die Materialanalyse.

Sind die durch Austausch- oder durch Einfangreaktionen gebildeten Nuklide („Folgekerne“ oder „Tochterkerne“) wie in den angeführten Beispielen instabil („radioaktiv“), so spricht man von einer NEUTRONENAKTIVIERUNG.

Die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von solchen Reaktionen wird durch den Aktivierungsquerschnitt σ_A angegeben, der stark von E_n abhängt. Besonders hohe Werte für σ_A treten bei der Reaktion mit thermischen oder mit intermediären Neutronen auf. Auf der Abb 1. ist die Energieabhängigkeit des Aktivierungsquerschnittes von Silber dargestellt.

Für Aktivierungsreaktionen können Neutronenquellen, wie z. B. der Kernreaktor, Neutronengeneratoren (z.B. Ausnutzung der Reaktion $^3_1\text{H} + ^2_1\text{H} \rightarrow ^4_2\text{He} + n_{(14\text{MeV})}$), Isotopenneutronenquellen (z.B. des Typs $^9_4\text{Be}(\alpha, n) ^{12}_6\text{C}$) benutzt werden.

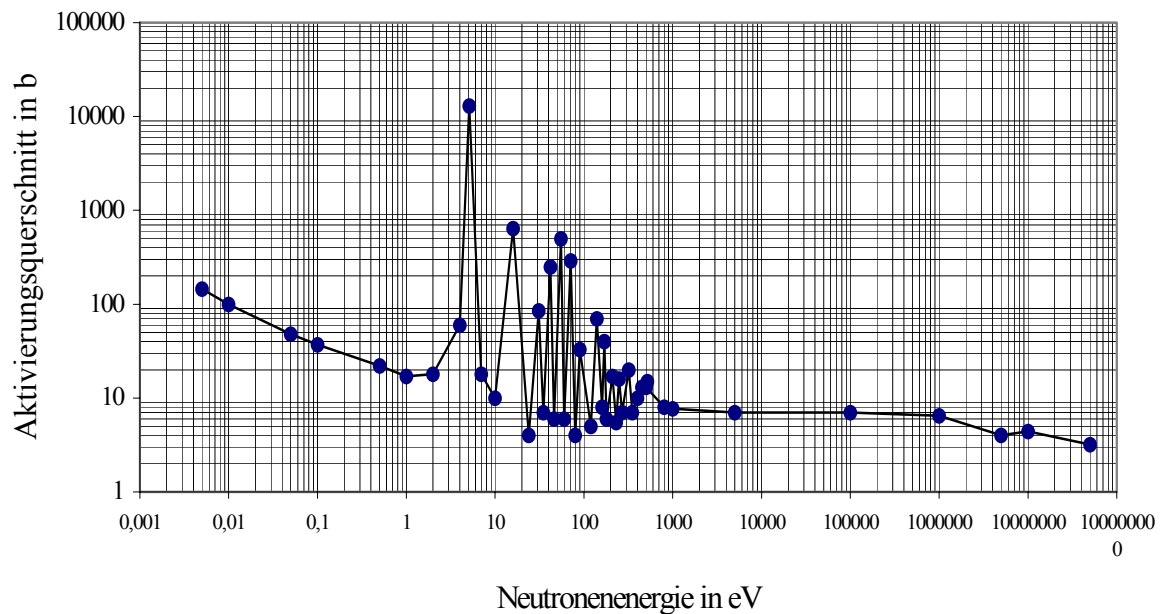


Abb. 1 Aktivierungsquerschnitt von Silber

In den meisten Fällen erfolgt die Aktivierung der Proben durch thermische und intermediäre Neutronen, die durch „Abbremsung“ der von den Quellen emittierten energiereichen (schnellen) Neutronen durch Stoßprozesse mit leichten Kernen (H, D oder C) erzeugt werden. Als sogenannte Moderatorsubstanzen dienen daher Wasser, schweres Wasser, Polyethylene oder Graphit.

Für den Fall, dass in der bestrahlten Probe ein radioaktives Nuklid entsteht, ist dessen Aktivität nach folgender Beziehung berechenbar:

$$A_{(t)} = N_A \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \int \varphi_E(E) \sigma_A(E) dE \quad (1)$$

$A_{(t)}$ = Aktivität (zu Bestrahlungsende)

$\varphi(E)$ = spektrale Neutronenflussdichte

t = Bestrahlungszeit

N_A = Anzahl der aktivierbaren Kerne

$\sigma_A(E)$ = neutronenenergieabhängiger mikroskopischer Aktivierungsquerschnitt

λ = Zerfallskonstante des gebildeten Radionuklids

Für den Fall, dass thermische Neutronen mit einer Energieverteilung, die einem Maxwell-Spektrum entspricht, und eine mittlere Energie von 0,025 eV besitzen und die Probe treffen, gilt $\varphi(E) = \varphi_{th}$ und es kann direkt mit den tabellierten $\sigma_{A,th}$ -Werten gerechnet werden. Dies kann vorausgesetzt werden, wenn sich die Neutronen nach ihrer Abbremsung im Temperaturgleichgewicht (25 °C) mit den Atomen ihrer Umgebung befinden. Für exakte Berechnungen muss jedoch der Einfluss der Energieabhängigkeit des Aktivierungsquerschnitts und des vorhandenen Neutronenenergiespektrums auf die Aktivierungsrate berücksichtigt werden.

Neutronenaktivierung von Silber

Natürliches Silber besteht aus den beiden stabilen Isotopen 107 und 109, die mit thermischen und intermediären Neutronen über Einfangreaktionen vom Typ $(n;\gamma)$ die drei Radionuklide Ag-108, Ag-110 und Ag-110m bilden können. In den Tabellen 1 und 2 sind die notwendigen Daten dieser Kerne für Berechnungen und Vergleiche mit den Experimenten zusammengefasst. Aus der Aktivierungsgleichung (1) ergibt sich, dass die zu Bestrahlungsende vorhandene Aktivität A_t der verschiedenen radioaktiven Silberisotope von den Größen $d\phi(E)$, $\sigma_A(E)$, λ , N_A und t abhängt. Es ist daher prinzipiell möglich, bei einer Neutronenaktivierungsanalyse (NAA) N_A direkt aus dem gemessenen Wert von A zu berechnen (= Absolutverfahren der NAA). Insbesondere wegen der Schwierigkeit, verlässliche Daten für die spektralen Flussdichten in der zu aktivierenden Probe zu erhalten, wird in der Praxis hauptsächlich das Relativverfahren der NAA genutzt, bei dem die Analyse durch Bestimmung des Zusammenhangs zwischen A und N mit Hilfe von Vergleichsproben ähnlicher Dimension und Zusammensetzung erfolgt, die unter analogen Bedingungen bestrahlt werden. Berechnungen unter Nutzung der Beziehung (1) sind bei der Planung einer NAA unumgänglich, da sie die Abschätzung der zu erwartenden Aktivität einer zu analysierenden Probe gestatten. Diese Vorausberechnung ist für die Handhabbarkeit des aktivierten Materials und die notwendigen Strahlenschutzmaßnahmen bei der Bearbeitung und Messung von großer Bedeutung.

Im durchzuführenden Experiment erfolgt die Aktivierung der Silberproben in der in Abb.2 dargestellten Cf-252-Neutronenquelle. Die bei der spontanen Spaltung von Cf-252 gebildeten schnellen Neutronen werden durch Paraffin moderiert, dadurch entsteht ein Neutronenspektrum, das in Abb. 3 schematisch dargestellt ist. Die aktuelle Neutronenflussdichte verändert sich entsprechend der Halbwertszeit des Cf-252 und beträgt ca. $10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ für thermische und etwa $2,5 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ für intermediäre Neutronen (1.7.98)

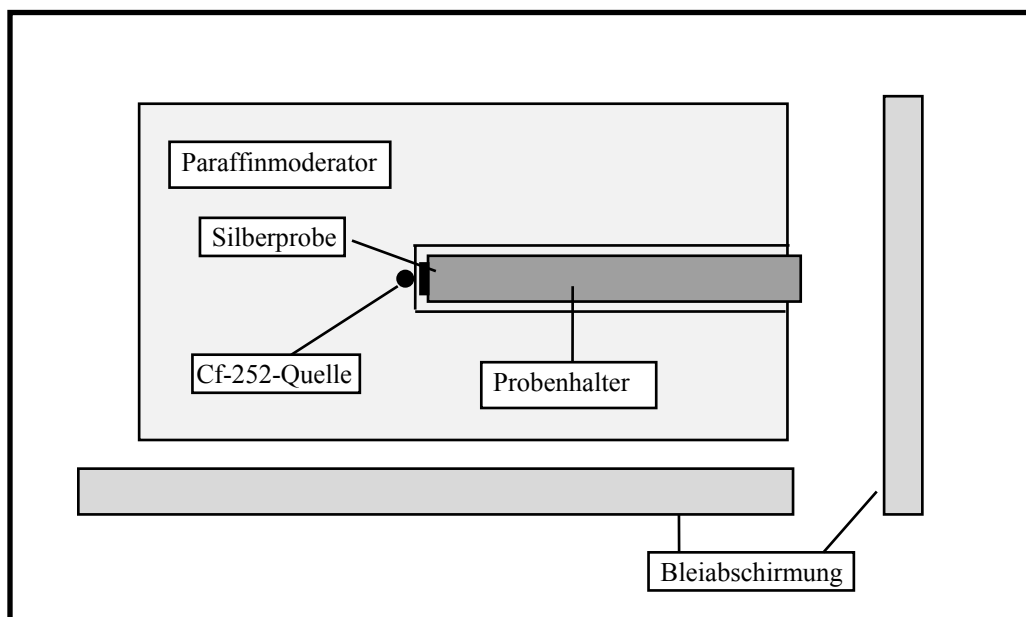


Abb. 2 Aufbauprinzip der Bestrahlungsanlage (paraffinmoderierte Cf-252-Quelle)

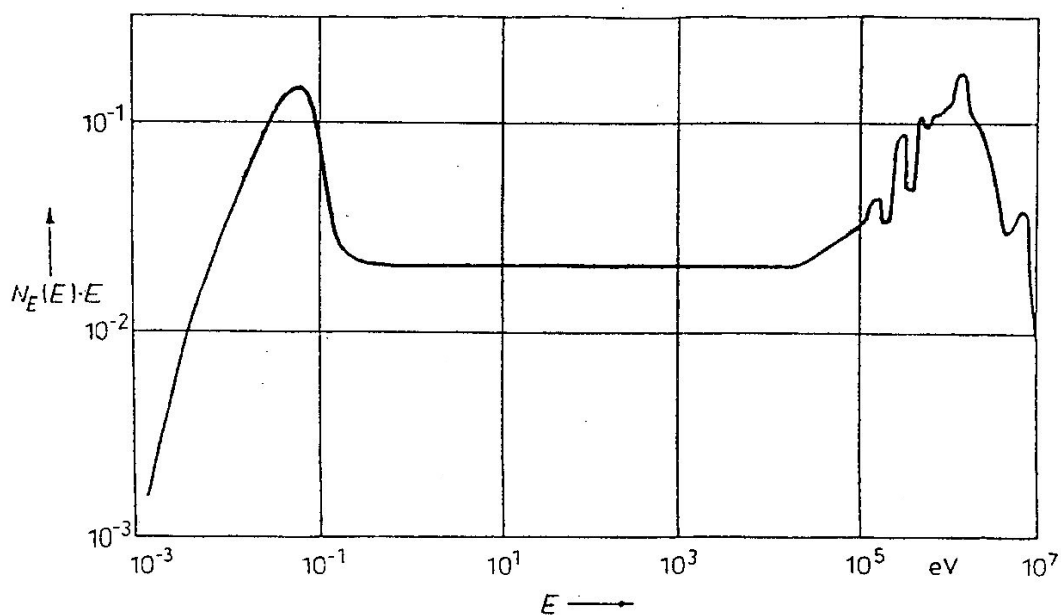


Abb.3 Moderiertes Spaltneutronenspektrum (sog. Gleichgewichtsspektrum)

Tab. 1 Daten der natürlichen Silberisotope

Isotop	Häufigkeit im natürlichen Isotopen- gemisch	Aktivierungsquerschnitt $\sigma_{A,th}$ (Voraussetzung Maxwell-Spektrum) Resonanzaktivierungsintegral I_r (1/v-Spektrum, $E_n > 0,5$ eV) und Aktivierungswahrscheinlichkeit σ_{pr} im vorliegenden Neutronenspektrum			
		für Bildung von			
Ag -107	51,83 %	Ag-108 :	$\sigma_{A,th}$ 37 b	I_r 94 b	σ_{pr} 50 b
Ag -109	48,17 %	Ag-110 :	$\sigma_{A,th}$ 86 b	I_r 1377 b	σ_{pr} 380 b
		Ag110m:	$\sigma_{A,th}$ 4,5 b	I_r 72 b	σ_{pr} 6 b

b \rightarrow barn = 10^{-24} cm²

σ_{th} und I_r nach Technical Report Series No 273 Handbook on Nuclear Activation Data IAEA Wien 1987

Tab. 2 Daten der gebildeten, radioaktiven Silberisotope

Isotop	Halbwertszeit	Emission von Elektronen E_{max} / Wahrscheinlichkeit der Emission	Emission von Photonen Energie/Wahrscheinlichkeit der Emission
Ag-108	2,41 min	1,77 MeV / 99 %	632 keV / 1,7 %
Ag-110	24,6 sec	2,24 MeV / 50%	657 keV / 4,5 %
		2,82 MeV / 40 %	
Ag-110m	250 d	0,087 MeV / 58 %	657 keV / 90 %
		0,53 MeV / 35 %	

Die gegebenen Werte gestatten unter Verwendung der Beziehung (1) die Berechnung folgender Daten:

- Maximal erzielbare Probenaktivität („Sättigungsaktivität“) einer Ag-Probe, die sich aus den Sättigungsaktivitäten der Silberisotope zusammensetzt;
- Notwendige Bestrahlungszeiten für die gewünschte Annäherung an die Sättigungsaktivitäten (z.B. 75%, 95% bzw. 99 %) für die verschiedenen Ag-Isotope.
- Einfluss der Ag-110m-Aktivität auf das Ergebnis kurzzeitiger Neutronenaktivierungen.

Die Aktivitätsmessung der Ag-Isotope erfolgt durch Messung der β -Strahlung. Eine sehr gute Zählausbeute η wird bei Verwendung einer Detektorkombination Plastszintillator-PSEV erzielt. Bei bekanntem η der vorliegenden Messanordnung (Abb. 4) kann entsprechend der Beziehung

$$A = \eta Z \quad (2)$$

die Probenaktivität bestimmt werden. Jedoch ist es insbesondere bei β -Strahlung schwierig, η exakt zu bestimmen, da dieser Wert von verschiedenen Faktoren (z.B. Geometrie-, Absorptions-, Selbstabsorptions-, Lichtausbeutefaktor) beeinflusst wird. Daher erfolgt in der Praxis wieder die Anwendung einer Relativmessung bei der lediglich die Konstanz von η gewährleistet sein muss.

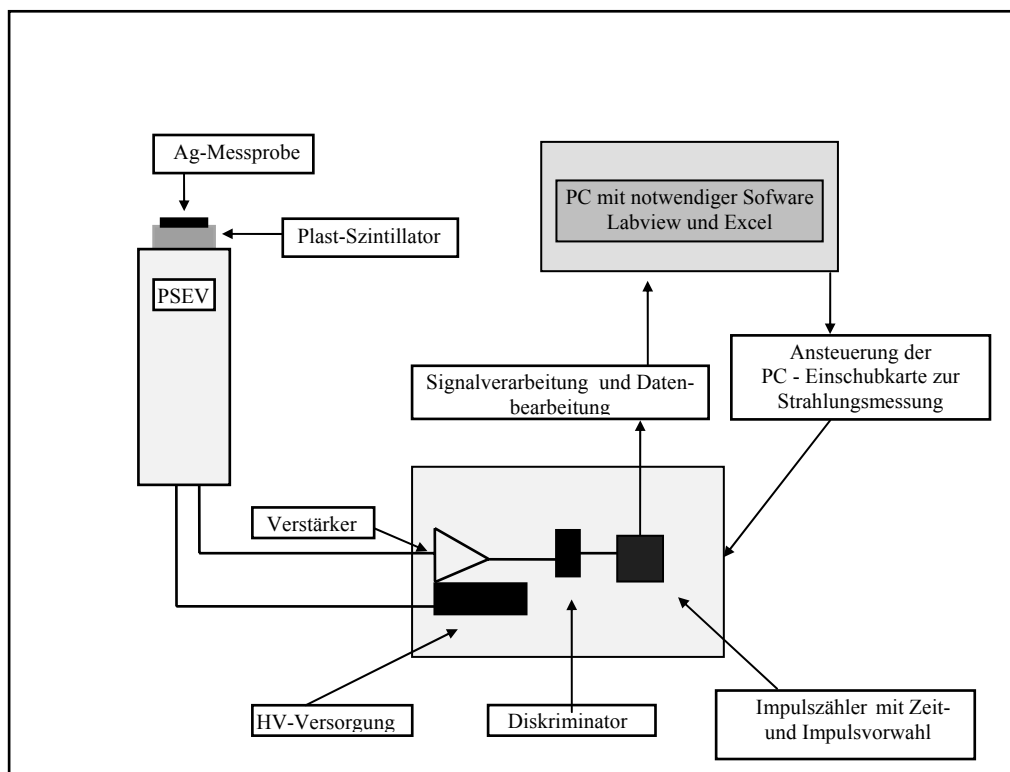


Abb. 4. Schema der Messanordnung für aktivierte Silberproben

Aufgabenstellung

- Optimierung für die Impulszählung mit der gegebenen Messanordnung (Festlegung des Diskriminatorpegels U_{Dis} bei vorgegebener Arbeitsspannung $U_{\text{D,A}}$ des Detektors, um ein optimales Verhältnis zwischen Probenzählrate Z und der Untergrundzählrate Z_0 zu erzielen.).
- Berechnung der Bestrahlungszeit t , bei der $> 95\%$ der Sättigungsaktivität der kurzlebigen Silberisotope erreicht wird. Abschätzung der zu erwartenden Probenaktivität.
- Planung der Messbedingungen für die Aufnahme einer Abklingkurve der interessierenden Silberisotope (Festlegung der maximaler Zeit zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn t_{St} , der Messzeit t_{M} , der Gesamtessdauer t_{G} und ggf. des Messabstandes t_{A} zwischen dem Start der Einzelmessungen.)
- Aufnahme einer Abklingkurve.
- Bestimmung der Halbwertszeiten von Ag-108 und Ag-110 durch Zerlegung der komplexen Abklingkurve.
- Berechnung des Isotopenverhältnisses Ag-107/Ag-109 in der Silberprobe.
- Bestimmung des Silbergehaltes einer Münze unter Anwendung des Relativverfahrens der NAA.

Hinweise zum Experiment

Zubehör:

1. PC mit Einschubkarte für Kernstrahlungsmessung. Softwaregesteuerter Ablauf mittels LABVIEW und Auswertung der Messergebnisse unter EXCEL
2. Kernstrahlungsdetektor (Plastszintillator mit PSEV)
3. Silberproben (Massenangabe auf den Proben)
4. Probenhalter für Einführung in die Neutronenquelle und Fixierung auf dem Detektor
5. Abgeschirmte Neutronenquelle (Cf-252) mit Paraffinmoderator

Versuchsdurchführung und Auswertung

(Einzelheiten auf Platzanleitung)

1. Alle Einstellungen der notwendigen Messparameter (Detektorspannung U_{D} ; t_{M} , t_{A} usw.) werden am PC vorgenommen. Desgleichen erfolgt die Speicherung aller Messwerte, deren Auswertung, sowie die Ausgabe der Ergebnisse am gleichen PC.
2. Die Bestimmung des günstigsten Diskriminatorpegels U_{Dis} wird durch die Aufnahme von Wertepaaren Z_0 und Z einer Standardprobe möglich. (U_{Dis} zwischen 0 und 100 mV bei vorgegebener U_{A} -siehe Platzanleitung- variieren)
3. Die Silberstandardprobe wird in die Neutronenquelle eingebracht und bis zum Erreichen der Sättigungsaktivität von Ag-108 bestrahlt.
4. Während der Bestrahlungszeit wird unter den optimierten Bedingungen bezüglich U_{A} und U_{Dis} wird durch mehrfache Messungen die Untergrundzählrate Z_0 ermittelt.
5. Die Silberstandardprobe wird aus der Neutronenquelle entnommen, **gleichzeitig** wird der PC gestartet (damit erfolgt Festlegung von t_0 der Abklingkurve) und möglichst rasch die Probe auf dem Detektor fixiert. Der Wert t_{St} kann dann aus dem Kurvenverlauf ermittelt werden, Z für t_0 folgt aus der Extrapolation der Abklingkurve.
6. Die Silberanalysenprobe wird in der Neutronenquelle bestrahlt (analog Pkt..3).
7. Messung der Silberanalysenprobe entsprechend Pkt. 5.
8. Darstellung und Auswertung der gemessenen Abklingkurven (unter Berücksichtigung von Z_0 !) entsprechend der Aufgabenstellung erfolgt unter Nutzung des Kalkulations-

programms EXCEL, wobei zunächst die Bestimmung der Halbwertszeiten aus den erhaltenen Diagrammen erfolgt. Werden aus der Grafik die Werte für $T_{1/2}$ von Ag-108 und von Ag-110 annähernd richtig bestimmt, ermöglichen die weiteren Programmschritte eine genaue Auswertung der Abklingkurve zur Ermittlung der entsprechenden Z_0 -Werte bzw. der Zerfallskonstanten λ .

9. Angabe und Diskussion des Analysenergebnisses.

10. Fehlerbetrachtungen (Grundlagen siehe Anleitungen RM 1 und F2).

Versuchsvorbereitung

Die Versuchsvorbereitungen zu den Versuchen RM 1, RM 2 und RM 3 sowie FA 2 sind auf Grund der Versuchsthematik in einem Zusammenhang zu sehen.

Literaturhinweise

W. Stolz	Radioaktivität (Grundlagen, Messungen, Anwendungen) B.G. Teubner Verlagsgesellschaft 4. Auflage 2003
L. Herforth, H.Koch	Praktikum der Radioaktivität und der Radiochemie J. A. Barth, Verlag der Wissenschaften 3. Auflage 1992
Ilberg u. a.	Physikalisches Praktikum für Anfänger Auflage 1994
W. Jung	Abiturwissen Physik Weltbild Verlag 1992

Schwerpunkte

- Charakterisierung der Arten ionisierender Strahlung (Entstehung, Eigenschaften)
- Grundgrößen bei der Messung von Kernstrahlung
- Detektoren zum Nachweis ionisierender Strahlung (Typen, Funktionsweise)
- Neutronenquellen und Neutronendetektoren
- Wechselwirkungsprozesse von Neutronen mit Stoffen
- Grundlagen und Anwendungsgebiete der Neutronenaktivierungsanalyse