

Alkalmazott fizikai módszerek laboratórium

I.: Gamma spektroszkópia

Pál Balázs*
Somogyfoki Réka*,^m, Tuhári Richárd*,^m

2019. szeptember 26.

Abstract

Az *Alkalmazott fizikai módszerek laboratórium* első alkalmával a gamma-spektroszkópia témakörét jártuk körül a labormunka során, melyen különböző radioaktív elemeket tartalmazó minták gamma-spektrumait vizsgáltuk. A labor ideje alatt megismerkedtünk a méréshez használt berendezéssel, egy germánium félvezető detektorral, és a hozzá tartozó eszközökkel. Felügyeltük a detektor előzetes beállítását és elvégeztük a rendszer energiakalibrációját, majd egyéni mérőfeladatokat hajtottunk végre a laborvezető utasításai alapján. Végezetül meghatároztuk ezek esetében a detektor hatásfokát is. Az egyéni feladat során egy ismeretlen, sárga színű, kristályos felületű anyag gamma-spektrumának vizsgálatát kellett elvégezniem.

1. BEVEZETÉS

A gamma-spektroszkópia módszere arra a megfigyelésre alapul, miszerint a γ -bomlásra képes magok karakterisztikus hullámhosszú, és így meghatározott energiájú fotonokat bocsájtanak ki magukból, mikor gerjesztett állapotból egy alacsonyabb állapotba kerülnek. Ezek a fotonok egy detektorban képesek leadni az energiájukat, amely energiát képesek vagyunk detektálni.

A labormunka során egy nagy tisztaságú germánium félvezető detektor segítségével mértük ki különböző anyagok gamma-spektrumait, melyben az elhaladó nagyenergiás γ -fotonok - Compton-szórás, fotoeffektus, vagy párkeltés során - ionizálják a környezetüket, ezzel elektron-lyuk párokat keltve a félvezetőben. A detektorra kapcsolt feszítőfeszültség ezeket a kialakult párokat eltávolítja egymástól, megakadályozva azok gyors rekombinációját, előidézve egyúttal egy áramimpulzus létrejöttét a félvezetőben. Ez az impulzus detektálható és a foton által leadott energiával arányos. Sok hasonló foton energiájának megméréseével megkapjuk a minta pontos gamma-spektrumát, mely alapján a mintában található elemek beazonosítható válnak.

2. ENERGIAKALIBRÁCIÓ

A mérés során nem közvetlenül a detektorba csapódó fotonok energiáját, hanem az érzékeny, félvezető részében ionizáció hatására létrejövő áramimpulzusok nagyságát vagyunk képesek mérni. Ezeket az impulzusokat egy ún. „amplitúdó-analizátor” folyamatosan rögzíti. Az analizátor feladata, hogy egy adott áramerősség tartományt egyenlő szélességű *bin*ekre felosztson, majd számolja, hogy a mérés ideje alatt minden tetszőleges $[I, I + \delta I]$ *bin*be hány darab áramimpulzus érkezik a detektorból. Ennek a jele egy számítógépre van kötve, melyen egy mérőszoftverrel valós időben követhetjük ezen hisztogram fejlődését. Az adott minta aktivitásától függően, viszonylag rövid idő alatt már jól felismer-

hető válik a gamma-spektrum ismert alakja, a mintában található elemekre jellemző karakterisztikus foto-csúcsokkal együtt.

Az energiakalibráció során egy olyan ismert spektrumú anyagot helyezünk a detektorba, melynek karakterisztikus csúcsait könnyen azonosítani tudjuk és ismerjük a pontos energiájukat. Ezzel viszonylag pontosan meg tudjuk határozni az analizátorunk skálázását és annak *bin* – energia függvényét. Ezt követően már egy ismeretlen mintából származó csúcsokhoz tartozó energiákat is meg tudjuk mondani.

Esetünkben ezt a kalibrációt egy ^{232}Th tartalmú, Auer-gázégő izzóharisnyájával végeztük el. A mérést $t = 30$ s hosszan végeztük, mely során $N = 3473$ áramimpulzust észleltünk. Az általunk használt analizátor névlegesen 4096 *bin*-re bontja fel a mért áramimpulzus-spektrumot, azonban a mi mérésünk során csak 4083 *bin* működött, feltehetően a műszer hibájából fakadóan. Néhány karakterisztikus csúcs azonosítása után a mérőszoftver segítségével elvégeztük a koordináta-tengely transzformációt, mely *bin* helyiértékekből keV mértékegységbe váltja át a skálánkat. Az alábbi összefüggést kaptuk az illesztés után:

$$E = 0.9255 \cdot \text{BIN} - 1.7343 \quad (1)$$

ahol $[E] = \text{keV}$, BIN pedig az adott *bin* helyiértéke 0 és 4083 között. Ezáltal az X-tengelyen az energiaskála $E = -1.7343$ keV és $E = 3777.0822$ keV értékek között húzódott, magyarul kb. 2 keV-el mértünk minden helyen többet, mint a valós érték. Megjegyzendő, hogy ez nem a minden helyen vett pontos eltérés, hanem csak egy közelítő becslés, mely igazán csak a kalibráció során az illesztéshez használt foto-csúcsaink közötti szakaszra megfelelő.

3. A HATÁSFOK MÉRÉSE

A detektorba érkező fotonok nem 100%-os valószínűséggel adják le az energiájukat, hanem vannak

*Eötvös Loránd Tudományegyetem

^mMérőtársak

esetek, amikor a foton egyszerően kölcsönhatás nélkül áthalad azon. Az összes mért és összes detektor felé kibocsájtódott foton arányát hívjuk a detektor hatásfokának, melyet η -val jelölünk. Ennek értéke az egyes energiatartományok más és más lehet, így minden foto-csúcsra egy individuális értéket fogunk kapni az η -ra eredményül.

Ennek kiértékelését egy külön szoftverrel végeztük, mely a foto-csúcsok centroidjainak pontos energiájából, valamint a használt minta anyagi- és geometriai tulajdonságaiból számította ki számunkra az egyes foto-csúcsokhoz tartozó energiaértékeken mérhető hatásfokot. Ezeknek értékeit a 3. táblázatban közlöm.

4. EGYÉNI FELADAT KIÉRTÉKELÉSE

4.1. A MINTA SPEKTRUMÁBAN TALÁLHATÓ CSÚCSOK AZONOSÍTÁSA

Az egyénileg történő mérés során egy kb. 1 cm átmérőjű, sárga színű, kristályos külsejű kődarabot kellett megvizsgálnom. Az anyag gamma-spektrumát $t = 1073$ s hosszú mérés során vettem fel, mely során $N = 264077$ áramimpulzust észleltem. A teljes lemért spektrumot a 1. ábrán illusztráltam, míg a 2. és 3. ábrán ugyanezen spektrum egyes, kinagyított részeit jelenítettem meg a részletgazdagság reményében.

A mérőprogrammal 6 foto-csúcsot vizsgáltam meg, melyeknek felvettem a csúcsterületüket, és azok hibáját, valamint meghatároztam a csúcs pontos, mért helyét. Olyan csúcsokat választottam ki, melyek valamelyik ismert, természetes bomlási családból származhatnak, és melyeket - egy kivételével - könnyen azonosítani is tudtam. Ezen csúcsok pontos képét a 4. - 9. ábrákon vizualizáltam.

A 6 lemért csúcs közül csak 5 darab pontos adatait sikerült egyértelműen, γ -energiákat tartalmazó standardizált táblázatokból leolvasnom (Firestone és tsai., 1997 és S.Y.F. Chu és Firestone, 1999). Ezek adatait energia szerinti növekvő sorrendben az 1. táblázatban gyűjtöttem össze. Az utolsó, az ábrákon Unknown felirattal ellátott, 764.24 keV-es csúcs mibenlétére azonban ezen táblázatok alapján felállítható hipotézisek mindegyikét cáfolnom kellett. A 2. táblázatban azok a magok szerepelnek, melyek 50 napnál nagyobb felezési idővel rendelkeznek és 760 keV, valamint 766 keV között bocsájtanak ki γ -fotonokat. Az 50 napos alsó határ megvalósítása a laborban található minta korából fakadó döntés volt. A minta évek óta a laborban áll, így ennél alacsonyabb felezési idejű anyagok már biztosan teljesen elbomlottak benne. A lehetségesen szóbajövő magok közül azonban mindegyik esetén sok másik csúcsnak is meg kellett volna jelennie a spektrumban, ennél jelentősen nagyobb intenzitásokkal, melyek közül azonban egy sem volt megtalálható.

4.2. AZ AKTIVITÁS KISZÁMÍTÁSA

A mintában található radioaktív elemek A aktivitását az alábbi képlet segítségével határozhatjuk meg:

$$A = \frac{S}{t \cdot I(E, n) \cdot \eta(E, n)} \quad (2)$$

ahol S az adott foto-csúcs alatti nettó terület, t a mérés időtartama, $I(E, n)$ az adott energiájú γ -fotonok intenzitása, az úgynevezett „elágazási arány”, míg végül $\eta(E, n)$ a detektálási hatásfok (Ebaid, 2010).

Ezen adatok mindegyike ismert és az (1). és (3). táblázatból kiolvasható. Az egyes csúcsokhoz tartozó aktivitásértékek hibái a standard hibaterjedés szabályai alapján az alábbi képlet segítségével számíthatók ki:

$$\Delta A = \left(\frac{\Delta S}{S} + \frac{\Delta t}{t} + \frac{\Delta I}{I} + \frac{\Delta \eta}{\eta} \right) \quad (3)$$

A számításokban az I intenzitás és a t időmérés hibáját 0-nak vettem. A kapott értékeket a 4. táblázatban közltem. Ezen adatok felhasználásával már megkapható a mintában található ^{235}U mennyisége, mely a táblázatokban ugyanígy van jelölve, valamint az ^{238}U mennyisége is, mely a táblázatban is jelölt leányelemvel, a $^{234}\text{Pa}^m$ maggal szekuláris egyensúlyban tartózkodik, tehát aktivitásuk megegyezik. Az aktivitás megadható a következő összefüggésből is:

$$A = \lambda N \quad (4)$$

ahol $\lambda = \ln(2) / T_{1/2}$ a bomlási állandó, N pedig a részecskeszám. Az utóbbi az A és λ ismeretében már megadható, mely értékeket szintén a 4. táblázatban közltem. A részecskeszámok vizsgálatával kiszámíthatjuk az ^{235}U és ^{238}U arányát a mintában. Természetes körülmények között az ^{235}U részecskék aránya 0.72%, míg a maradék tulajdonképpen csak ^{238}U . A jelenlegi arány a következő:

$$C_{^{235}\text{U}} = \frac{32.21 \cdot 10^{16}}{32.21 \cdot 10^{16} + 7.46 \cdot 10^{18}} = \frac{3.22 \cdot 10^{17}}{7.78 \cdot 10^{18}} \approx 0.0413 = 4.13\% \quad (5)$$

$$C_{^{238}\text{U}} = \frac{7.46 \cdot 10^{18}}{7.78 \cdot 10^{18}} \approx 0.9587 = 95.87\% \quad (6)$$

Melynek relatív hibája megegyezik az N hibájával, így határozottan kijelenthető, hogy a mintában található $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ arány jelentősen nagyobb, mint ahogy az a természetben előfordul, így feltehetően enyhén dúsított urántartalmú mintát vizsgáltam.

A teljes (súlyozott) aktivitás és annak hibájának kiszámításához használhatjuk a mérésleírásban is megtalálható képleteket, melyeket külön itt nem közlök. Az aktivitás részletes számítása ezek alapján az . függelékben található. Ezek alapján a végleges érték a következő:

$$\langle A \rangle = (2,287 \pm 0,055) \text{ Bq} \quad (7)$$

5. ÁLTALÁNOS SZÁMÍTÁSI FELADATOK

5.1. HÁTTÉRSUGÁRZÁS

A detektorba normális esetben rengeteg, légköri radonból származó γ -foton csapódna. Ezen hatást elkerülendő, a detektor vastag ólomtéglából rakott „házikóval” van körbevéve, így kiszűrve a levegőből és a falakból érkező sugárzás jelentős részét. Ahhoz,

hogy az ólomburok fontosságát megérthessük, két mérést végeztünk el. Az első alkalommal a burkot teljesen bezárva, behelyezett minta nélkül mértük meg a háttérsugárzás mértékét, majd második alkalommal ugyanúgy minta nélkül, azonban a burok „ajtáját” kinyitva, rajta egy téglányi rést hagyva indítottunk el egy hasonló mérést.

A két mérést összehasonlítható értékeket a 5. táblázatban közlöm, mely tartalmazza az aktivitásokat és azok $1/\sqrt{N}$ -es relatív hibáját is. Feladatunk volt kiszámítani, hogy teljesen burok nélkül, gömbszimmetrikus geometriát és lineáris függést feltételezve,

mekkora lenne az észlelt γ -fotonok aktivitása? Ezeket figyelembe véve azt mondhatjuk, hogy 1 téglakivétele a burokból $2,75 \text{ Bq} - 1,07 \text{ Bq} = 1,68 \text{ Bq}$ -val növeli az aktivitást az $1,07 \text{ Bq}$ -es zárt állapothoz képest. Megfigyeléseink szerint a burkot kb. 33 db téglából alkotta, melyből megadható már a burok nélküli aktivitás pontos nagysága:

$$A_0 = 1,07 \text{ Bq} + 33 \cdot 1,68 \text{ Bq} = (56,51 \pm 1,19) \text{ Bq} \quad (8)$$

Ahol a hibát a nyitott ajtajú rendszer hibája alapján számoltam.

-
- [1] Richard B Firestone és tsai. “The 8th edition of the Table of Isotopes”. *Proceedings of the 9th International Symposium on Capture gamma-ray spectroscopy and related topics. V. 2.* 1997.
 - [2] L.P. Ekström S.Y.F. Chu és R.B. Firestone. *The Lund/LBNL Nuclear Data Search.* 1999. URL: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>.
 - [3] Yasser Ebaid. “Use of gamma-ray spectrometry for uranium isotopic analysis in environmental samples”. *Rom Journ Phys* 55 (2010. jan.).
 - [4] Wang Baosong Huang Xiaolong. *LNE – LNHB/CEA Table de Radionucléides.* 2011. URL: http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/U-235_tables.pdf.
 - [5] Wang Baosong Huang Xiaolong. *LNE – LNHB/CEA Table de Radionucléides.* 2010. URL: http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Pa-234m_tables.pdf.

APPENDIX A - AZ AKTIVITÁS SZÁMÍTÁSA

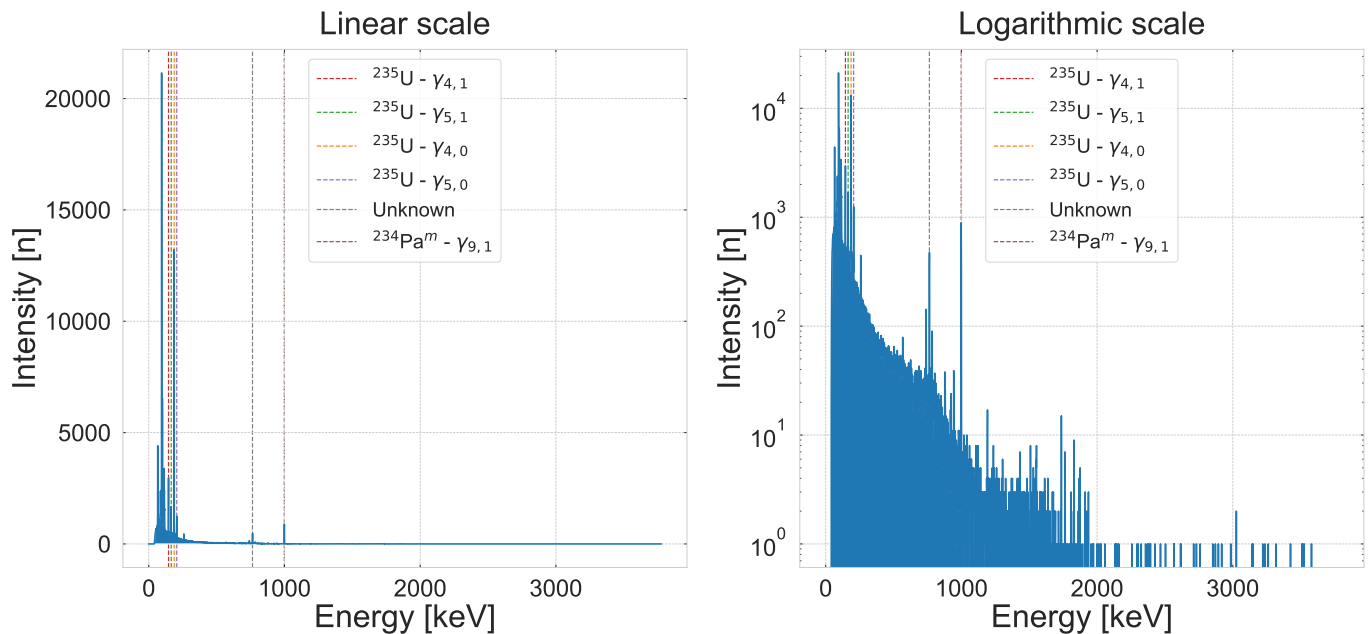
A minta teljes súlyozott aktivitása megkapható az alábbi számításból, felhasználva a [4.](#) táblázatban található értékeket:

$$\begin{aligned}
 \langle A \rangle &= \frac{\frac{1,709 \text{ Bq}}{(0,079 \text{ Bq})^2} + \frac{2,552 \text{ Bq}}{(0,163 \text{ Bq})^2} + \frac{3,037 \text{ Bq}}{(0,115 \text{ Bq})^2} + \frac{2,667 \text{ Bq}}{(0,133 \text{ Bq})^2} + \frac{36,722 \text{ Bq}}{(2,717 \text{ Bq})^2}}{\frac{1}{(0,0786 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,163 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,115 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,133 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(2,717 \text{ Bq})^2}} = \\
 &= \frac{755,273 \frac{1}{\text{Bq}}}{330,150 \frac{1}{\text{Bq}^2}} = 2,287 \text{ Bq}
 \end{aligned} \tag{9}$$

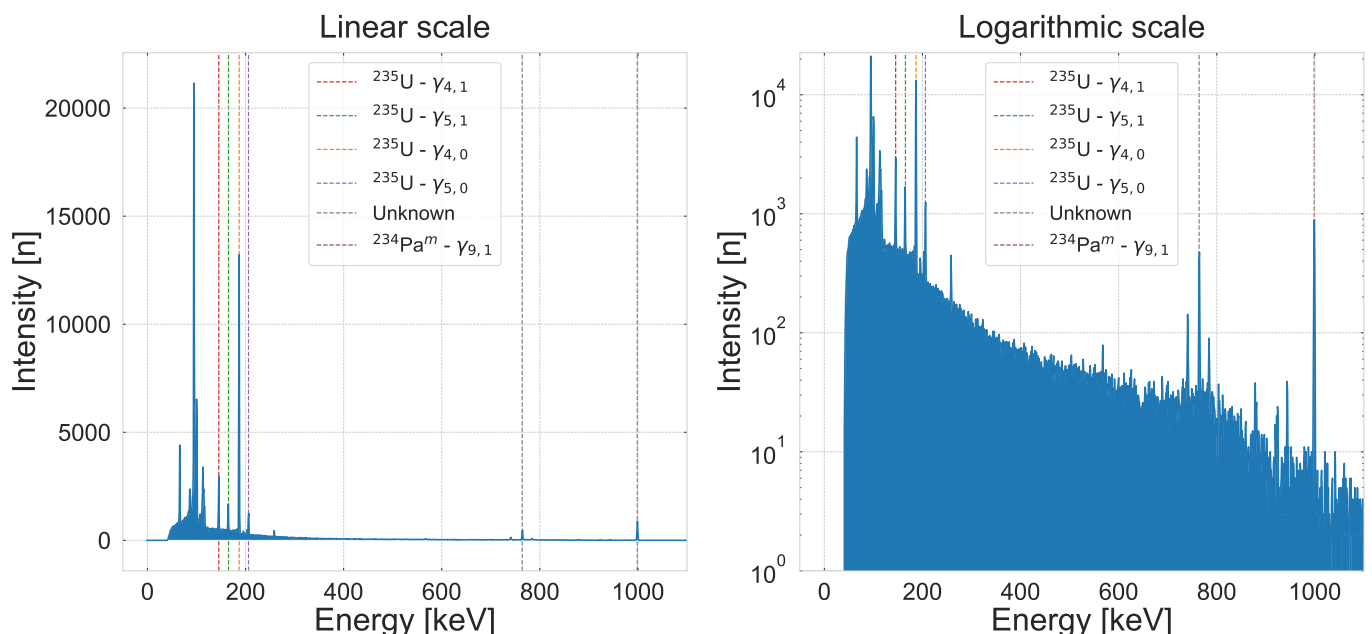
Ennek hibája megadható a következő módon:

$$\begin{aligned}
 \sigma_{\langle A \rangle} &= \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{(0,0786 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,163 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,115 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(0,133 \text{ Bq})^2} + \frac{1}{(2,717 \text{ Bq})^2}}} = \\
 &= \frac{1}{\sqrt{330,150 \frac{1}{\text{Bq}^2}}} = 0,055 \text{ Bq}
 \end{aligned} \tag{10}$$

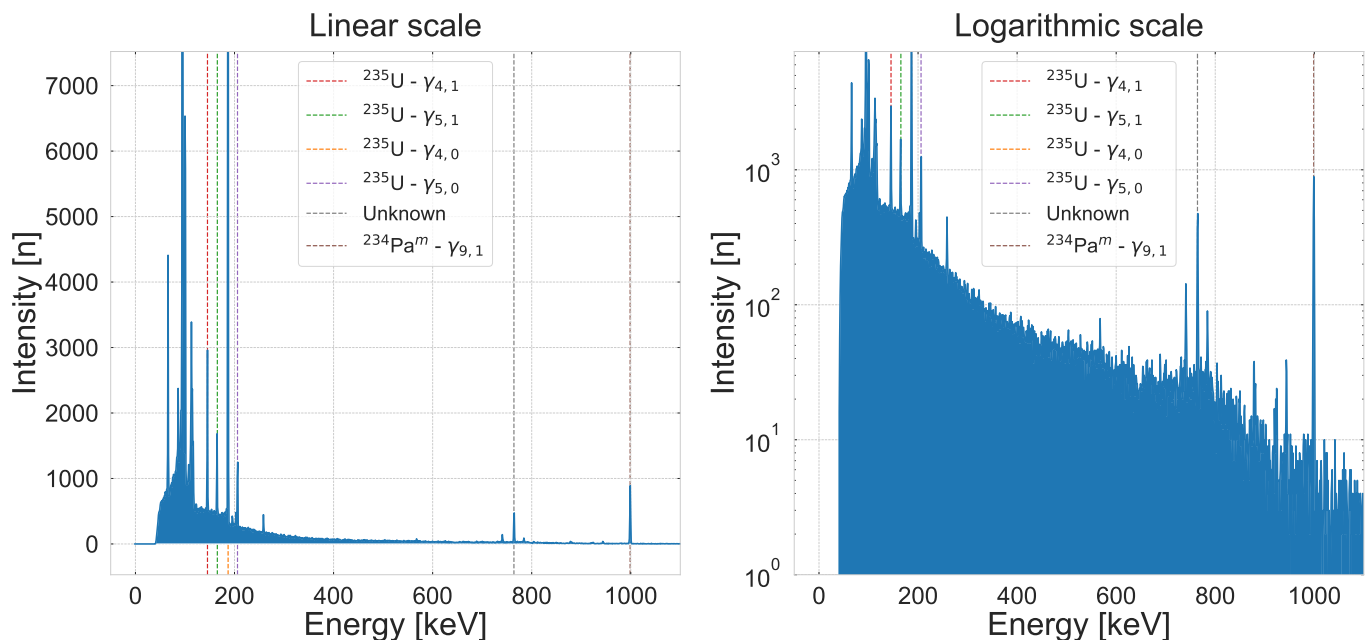
APPENDIX B - ÁBRÁK



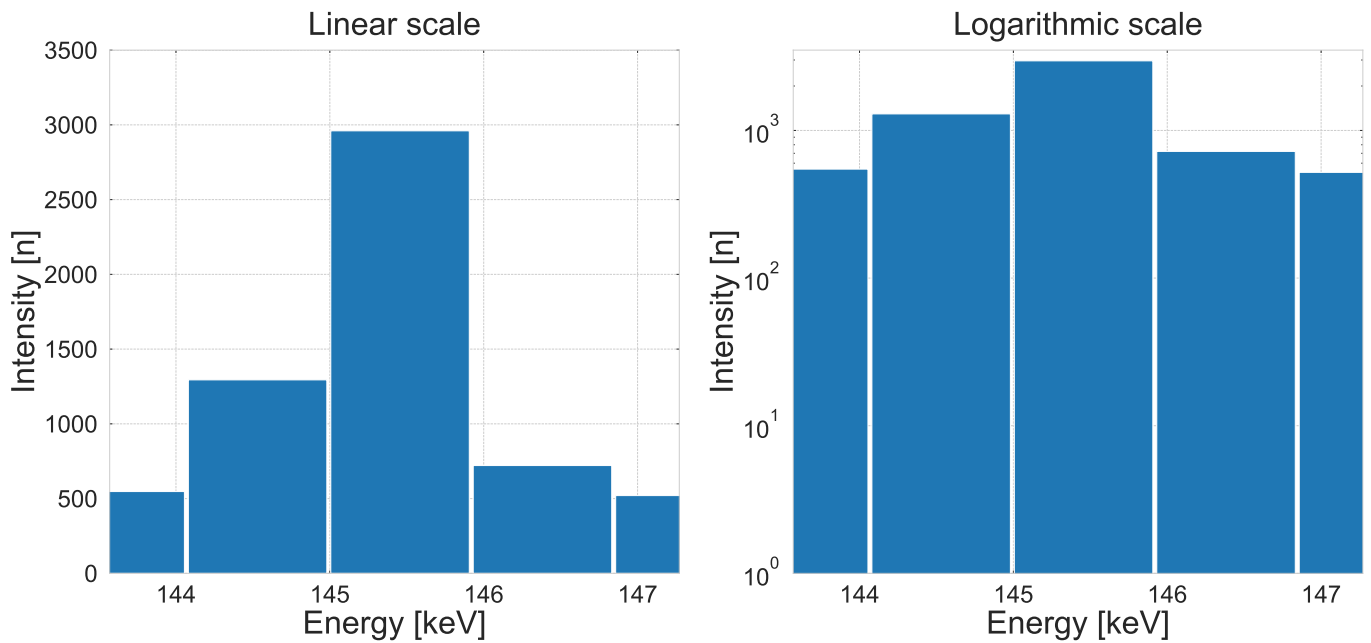
1. ábra. Az általam vizsgált anyag teljes lemért gamma-spektruma. Az egyes karakterisztikus csúcsok színes, szaggatott vonallal vannak jelölve.



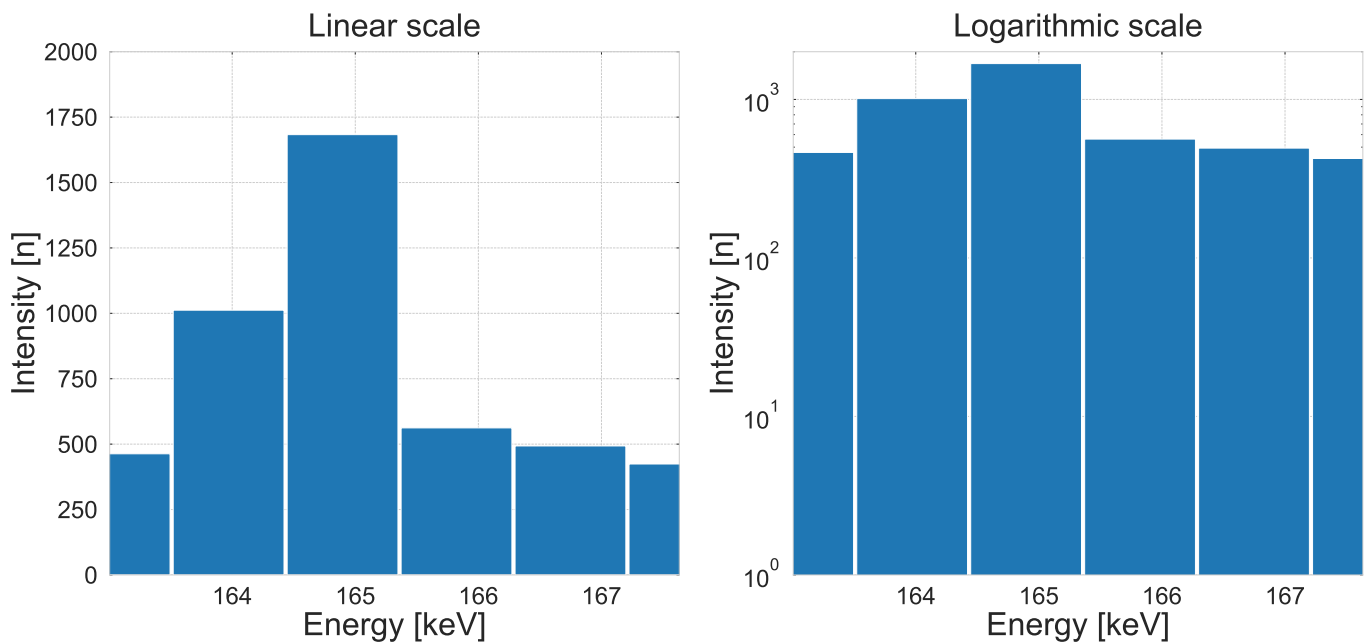
2. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektruma a 0 keV – 1100 keV intervallumban. Az egyes karakterisztikus csúcsok színes, szaggatott vonallal vannak jelölve.



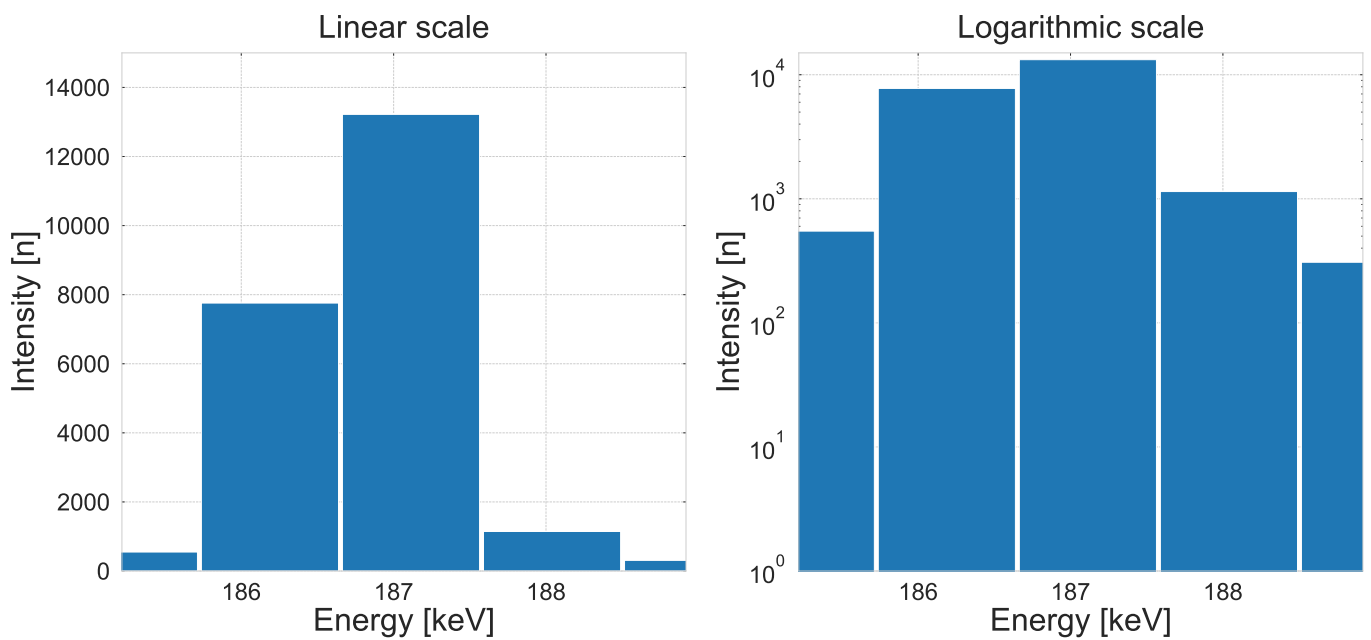
3. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektruma a 0 keV – 1100 keV intervallumban. Az ábrán a (2)-es ábrán szereplő y -tengely alsó harmada van megjelenítve. Az egyes karakterisztikus csúcsok színes, szaggatott vonallal vannak jelölve.



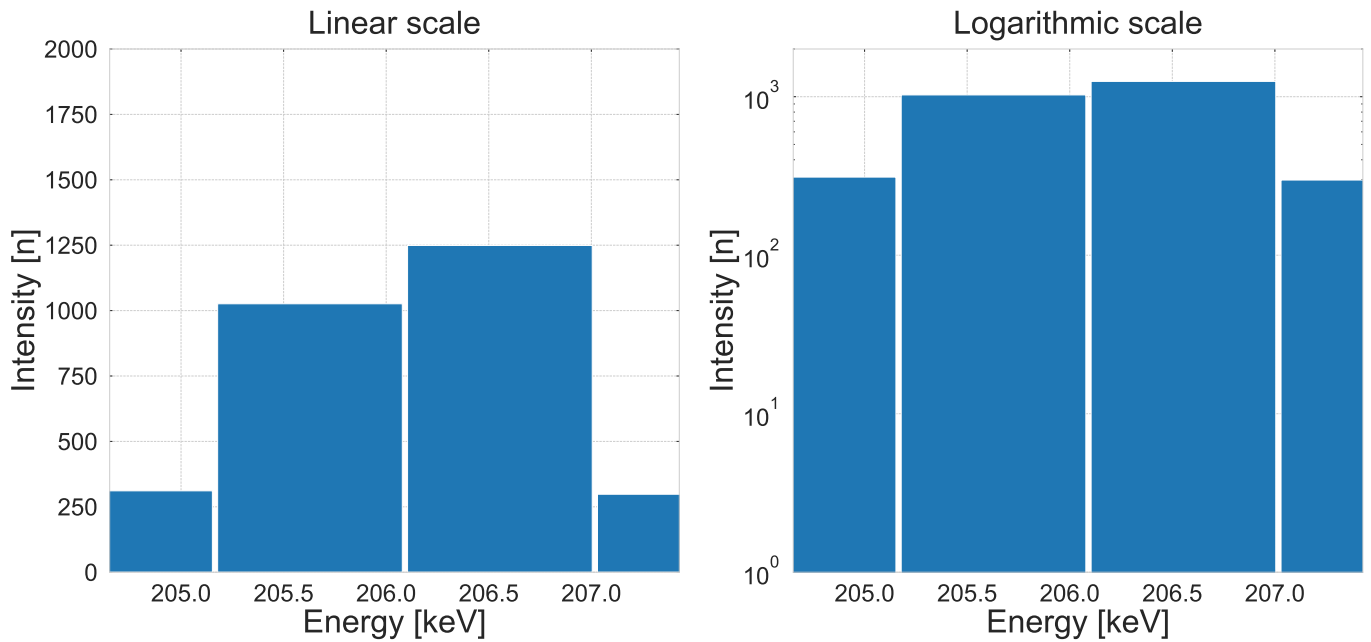
4. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található ^{235}U , $\gamma_{4,1}$ tranziensből származó fotonjának foto-csúcsa.



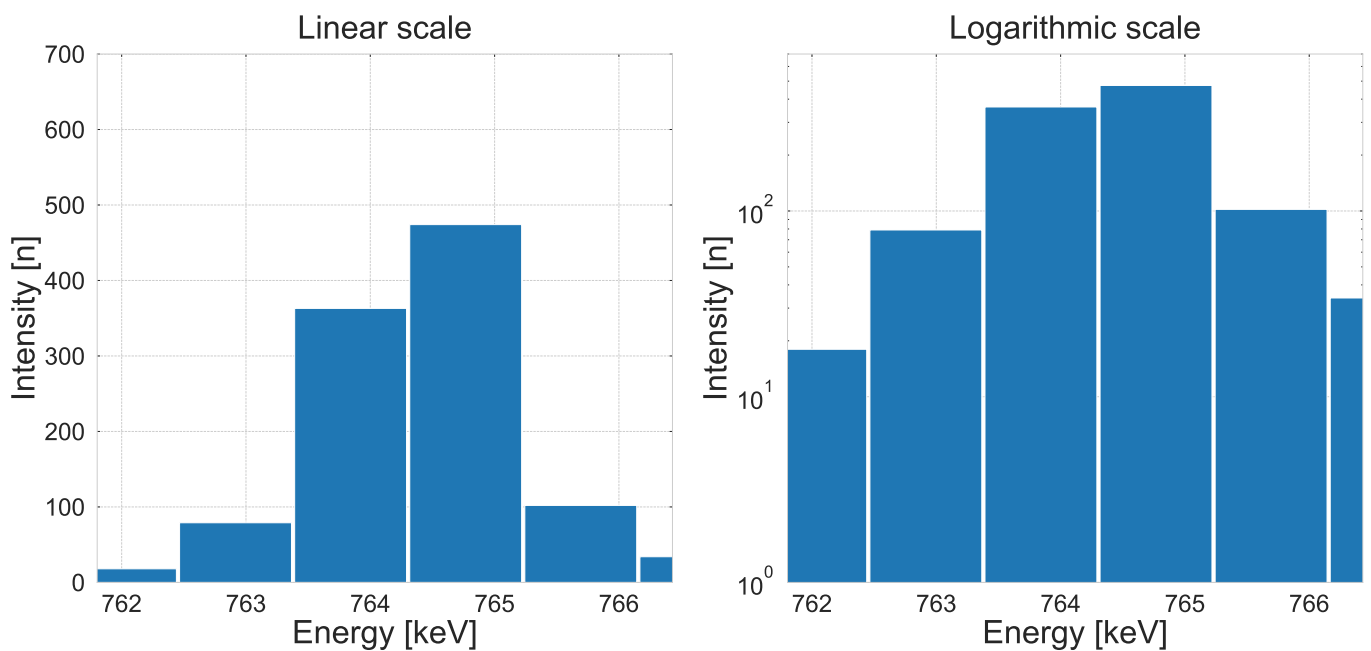
5. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található ^{235}U , $\gamma_{5,1}$ tranziensből származó fotonjának foto-csúcsa.



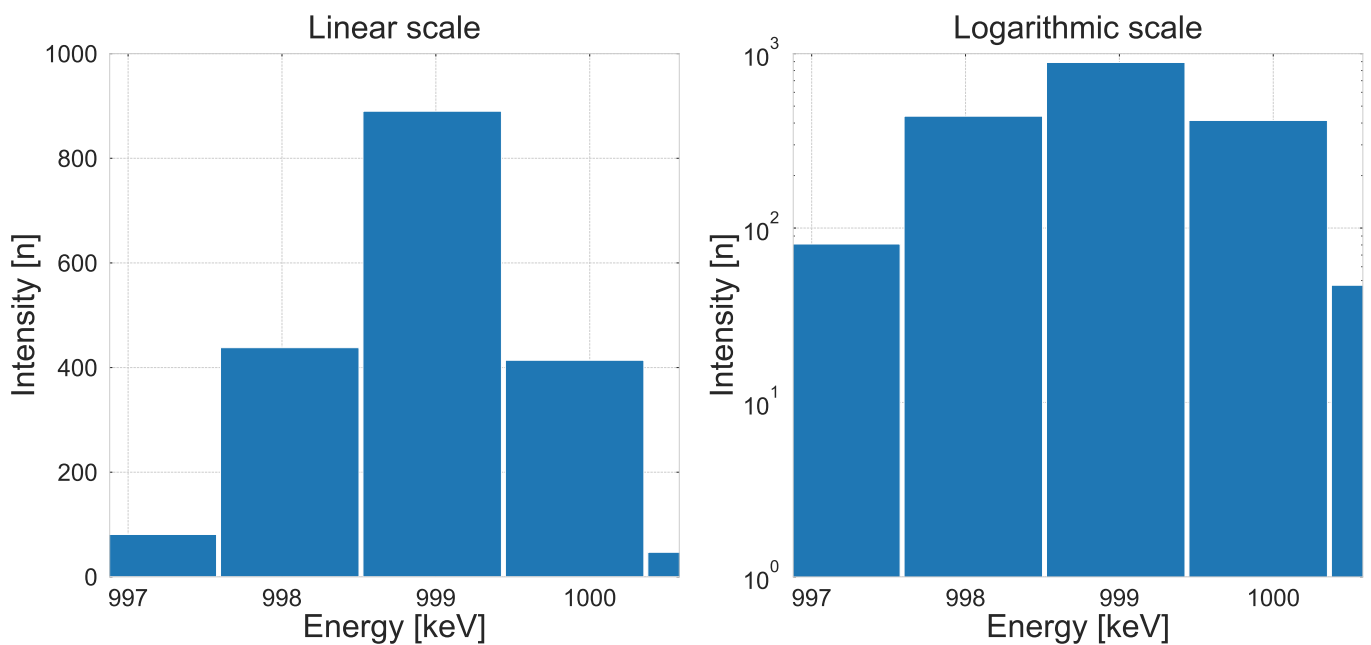
6. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található ^{235}U , $\gamma_{4,0}$ tranziensből származó fotonjának foto-csúcsa.



7. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található ^{235}U , $\gamma_{5,0}$ tranziensből származó fotonjának foto-csúcsa.



8. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található ismeretlen eredetű foto-csúcs.



9. ábra. Az általam vizsgált anyag gamma-spektrumában található $^{233}\text{Pa}^m$, $\gamma_{9,1}$ tranziensből származó fotonjának foto-csúcsa.

APPENDIX C - TÁBLÁZATOK

Izotóp	Mért E_γ [keV]	Valós E_γ [keV]	Intenzitás [%]	Tranziens	$S_{\text{csúcs}}$	$\delta S_{\text{csúcs}}$ [%]
^{235}U	145, 28	143, 768	13, 20	$\gamma_{4,1}$	3375	2, 35
^{235}U	164, 75	163, 358	5, 855	$\gamma_{5,1}$	1976	4, 05
^{235}U	186, 79	185, 722	63, 41	$\gamma_{4,0}$	20836	0, 73
^{235}U	206, 10	205, 316	5, 465	$\gamma_{5,0}$	1666	2, 86
?	764, 24	?	?	?	1550	2, 16
$^{234}\text{Pa}^m$	998, 77	1001, 441	$8, 56 \cdot 10^{-1}$	$\gamma_{9,1}$	914	3, 75

1. táblázat. A gamma-spektrum kiértékelésekor vizsgált csúcsok adatai, $t = 1073$ s mérési idő és $N = 264077$ db detektált jel után ([Huang Xiaolong, 2011](#) és [Huang Xiaolong, 2010](#)).

Izotóp	E_γ [keV]	Intenzitás [%]	Felezési idő
^{243}Cm	760	0	29, 1 év
^{249}Cf	760	$2 \cdot 10^{-2}$	351 év
^{150}Eu	762, 03	$2, 8 \cdot 10^{-2}$	36.9 év
^{239}Pu	763, 61	$2.22 \cdot 10^{-8}$	24110 év
^{241}Am	763, 9	$2 \cdot 10^{-7}$	432.2 év
$^{110}\text{Ag}^m$	763, 944	22, 14	249.79 nap
^{152}Eu	764, 900	$2, 15 \cdot 10^{-1}$	13.537 év
^{160}Tb	765, 28	2, 140	72.3 nap
^{252}Es	765, 30	$1, 83 \cdot 10^{-1}$	471.7 nap
^{192}Ir	765, 8	$1, 49 \cdot 10^{-3}$	73.831 nap

2. táblázat. A 764.24 keV-es csúcsot okozható, 50 napnál hosszabb felezési idejű magok listája ([S.Y.F. Chu és Firestone, 1999](#))

Izotóp	Mért E_γ [keV]	η [%]	$\delta\eta$ [%]
^{235}U	145, 28	$1, 33059 \cdot 10^{-1}$	2, 218
^{235}U	164, 75	$1, 23267 \cdot 10^{-1}$	2, 336
^{235}U	186, 79	$1, 00812 \cdot 10^{-1}$	3, 085
^{235}U	206, 10	$1, 06556 \cdot 10^{-1}$	2, 129
?	764, 24	$2, 1255 \cdot 10^{-2}$	2, 16
$^{234}\text{Pa}^m$	998, 77	$2, 7098 \cdot 10^{-2}$	3, 75

3. táblázat. A detektor η hatásfoka az egyes foto-csúcsok energiatartományjaiban

Izotóp	A [Bq]	δA [%]	ΔA [Bq]	λ (1/s)	N [db]	δN [%]
^{235}U	1.790	0.046	0,079	$3.12 \cdot 10^{-17}$	$5.74 \cdot 10^{16}$	$= \delta A$
^{235}U	2.552	0.064	0,163	$3.12 \cdot 10^{-17}$	$8.18 \cdot 10^{16}$	$= \delta A$
^{235}U	3.037	0.038	0,115	$3.12 \cdot 10^{-17}$	$9.74 \cdot 10^{16}$	$= \delta A$
^{235}U	2.667	0.050	0,133	$3.12 \cdot 10^{-17}$	$8.55 \cdot 10^{16}$	$= \delta A$
?	?	0.043	?	?	?	$= \delta A$
$^{234}\text{Pa}^m$	36.722	0.074	2,717	$4.92 \cdot 10^{-18}$	$7.46 \cdot 10^{18}$	$= \delta A$

4. táblázat. Az egyes foto-csúcsokhoz tartozó aktivitás értékek, bomlási állandól, valamint részecskeszámok és ezek hibái

Pozíció	Mérés ideje [s]	N [db]	A [Bq]	δA [%]
Nyitott	100	275	2.75	0.06
Zárt	601	642	1.07	0.04

5. táblázat. A háttérsugárzás mérése során kimért értékek