

FILOZOFSKI FAKULTET UNIVERZITETA U NOVOM SADU

Marija I. Kakaš

NEUTRONSKA AKTIVACIONA ANALIZA ALUMINIJUMA
-Diplomski rad-

rađen u
Institutu za nuklearne nauke "Boris Kidrič" u Vinči
1968 god.

Ovaj rad rađen je u grupi nuklearne spektroskopije fizičke laboratorije Instituta za nuklearne nauke "Boris Kidrič" u Vinči.

Zahvaljujem se Dr. Lazaru Marinkovu, koji je predložio temu i omogućio da se ovaj rad realizuje, na pomoći u svim etapama rada.

Želim, takođe, da se zahvalim Laboratoriji za visoku aktivnost, koja je ovaj rad finansirala, a posebno drugu Drašković Radetu, koji je pripremio materijal za rad i pomogao mi korisnim savetima.

Zahvalnost dugujem i svim članovima grupe nuklearne spektroskopije za pokazano razumevanje i pomoć.

Marija Kakaš

S A D R Ź A J

strana

U V O D.....	1
1. AKTIVACIONA ANALIZA.....	2
1.1. Moguće reakcije pri aktivaciji i izvori neutrona.....	2
1.2. Teorijske osnove aktivacione analize.....	4
1.3. Metod merenja.....	5
1.4. Osetljivost i tačnost neutronske aktivacione analize.....	6
2. METOD MERENJA AKTIVNOSTI.....	9
2.1. Fizičke osnove gama-scintilacione spektrometrije.....	10
2.2. Kvalitativna analiza spektra.....	12
2.3. Kvantitativna analiza spektra i određivanje aktivnosti.....	15
3. OPIS EKSPERIMENTA I REZULTATI.....	18
3.1. Kvalitativna analiza rastvora kojim je vršena dekontaminacija.....	19
3.2. Analiza aluminijuma.....	22
4. DISKUSIJA REZULTATA.....	26

U V O D

Aktivaciona analiza je jedan od metoda za određivanje prisustva malih količina elemenata u nekom materijalu. Zahvaljujući visokoj osetljivosti i tačnosti, ovaj metod je našao široku primenu pri rešavanju niza zadataka.

Najveća primena aktivacione analize je u nuklearnoj tehnici kada se vrše analize materijala koji se koriste za građenje nuklearnih reaktora i materijala koji se koriste za nuklearne reakcije u reaktorima, kao i u tehnici poluprovodnika za kontrolu nečistoća u poluprovodničkim materijalima, jer se sa promenom koncentracija nečistoća menjaju i njihove karakteristike pogodne za rad. Metod aktivacione analize se takođe koristi u geologiji, geohemiji i nekim drugim oblastima.

U ovom radu je izvršena neutronska aktivaciona analiza aluminijuma koji se koristi za izradu "kenera" (posuda u koju se stavlja materijal koji se ozračuje). Takođe je izvršena analiza rastvora kojim je izvršena dekontaminacija "kenera" posle vađenja iz reaktora. Cilj je bio da se odrede nečistoće koje se nalaze u aluminijumu i nečistoće koje kontaminiraju "kenor" u reaktoru i procesu neposredno posle vađenja iz reaktora.

Poznavanje vrsta i količina prisutnih nečistoća je potrebno zbog toga, što se one pri ozračivanju aktiviraju zahvatom neutrona, doprinoseći smanjenju fluksa kojim se ozračuje dati uzorak, a povećavaju ukupnu aktivnost što otežava rad sa "kenerom" u procesima posle vađenja iz reaktora.

Izloženi materijal je podeljen u četiri poglavlja. Proces aktivacije, teorijske osnove, metod merenja i tačnost aktivacione analize dati su u prvom poglavlju. U drugom poglavlju su izneti princip detekcije i rada scintilacionog spektrometra, kao i kvalitativna i kvantitativna analiza spektra. Opis eksperimenta i dobijeni rezultati izloženi su u trećem poglavlju, a diskusija rezultata je izvršena u četvrtom poglavlju.

1. AKTIVACIONA ANALIZA

Proces aktivacione analize se sastoji u merenju aktivnosti koja je nastala ozračivanjem neutronima ili nekim ubrzanim naelektrisanim česticama. Svaki nastali radioizotop ima svoje karakteristike raspada-poluživot, vrstu i energiju zračenja-na osnovu kojih se identifikuje, a merenjem aktivnosti se određuje količina.

1.1. MOGUĆE REAKCIJE PRI AKTIVACIJI I IZVORI NEUTRONA.

Za ozračivanje se koriste protoni i reakcije tipa (p,n) , (p,pn) , $(p,2p)$, $(p,2n)$, deuteroni i reakcije tipa (d,p) , (d,n) , $(d,2n)$, (d,α) , α čestice i reakcije tipa $(\alpha,2n)$, (α,pn) , fotoni visoke energije, a najčešće termalni neutroni i reakcija (n,γ) .

Primena aktivacione analize pomoću ubrzanih naelektrisanih čestica otežana je zbog velikog broja konkurentnih reakcija, koje mogu da se pojave. Promenom energije čestice možemo izbeći neku od ovih reakcija, ali se time menja i presek osnovne reakcije koja nas interesuje, a samim tim i osetljivost metoda. Korišćenje naelektrisanih čestica ima i druge nedostatke kao što su: ograničen presek snopa čestica dobijenog u ciklotronu, potrebe za različitim brzinama i ograničena debljina mete. Ako meta nije vrlo tanka, presek za aktivaciju će zavisiti od dometa i energije naelektrisane čestice.

Pri ozračivanju sa termalnim neutronima broj konkurentnih reakcija je mali. Moguće su samo pri ozračivanju lakih elemenata i to su reakcije tipa (n,p) i (n,α) . Ostale prednosti korišćenja termalnih neutrona su: i sa minimalnom energijom neutrona može se izazvati reakcija, istovremeno se mogu ozračivati veće količine uzorka i mnogi elementi imaju veliki presek za zahvat termalnih neutrona. Zbog toga je neutronska aktivaciona analiza najčešće primenjivani oblik aktivacione analize, što znači da se i drugi oblici ne koriste kada su pogodniji za dati element.

Izvore neutrona¹ možemo podeliti u dve grupe: tzv. laboratoriske izvore neutrona i nuklearne reaktore.

Najčešći tipovi laboratorijskih izvora su izvori obrazovani prema reakcijama (α, n) , (γ, n) , (p, n) , (d, n) . Prvi tip izvora se dobija mešanjem prirodno alfa-radioaktivnih izotopa (Ra, Po) sa lakim elementima (Be^9 i B^{11}) u prahu. Drugi tip izvora se dobija bombardovanjem lakih ili težih izotopa gama-zracima, čija energija mora biti veća od energije veze neutrona u jezgri. Najveći fluksevi koji se dobijaju pomoću ovih izvora su približno 10^7 n/sec cm^2 , a najveći fluksevi termalnih neutrona (kada se upotrebi kao absorber voda ili parafin) su reda veličine 10^4 n/sec cm^2 . Izvori tipa (p, n) i (d, n) se prave bombardovanjem meta ubrzanim protonima i deuteronomima pri letu pod uglom 0° i 180° . Zavisno od energije protona, odnosno deuterona i vrste mete dobijaju se neutroni različitih energija. Takav tip izvora je izvor sa pulsirajućim snopom neutrona, koji koristi reakciju ${}_1\text{H}^3(d, n){}_2\text{He}^4$ i daje odprilike 10^7 neutrona po impulsu, dužine impulsa 5 μsec , a daje približno 1-10 impulsa u sekundi.

Druga grupa neutronske izvora, nuklearni reaktori, daju maksimalne flukseve neutrona reda veličine i do $10^{14} \text{ n/sec cm}^2$. Neutroni u reaktoru koji se koriste za aktivaciju, obično se dele na brze (energije iznad 10 MeV-a), rezonantne (od 0,4 eV do 1 MeV-) i termalne (manje od 0,4 eV-a). Da bi se dobio fluks termalnih neutrona koriste se usporivači od grafita ili drugih materijala. Usporavanjem neutrona smanjuje se, i njihov fluks, koji je sada znatno manji od maksimalnog u reaktoru.

Pri ozračivanju termalnim neutronima treba uzeti u obzir i mogućnost reakcije sa brzim neutronima, koji se ne mogu potpuno izdvojiti. Od reakcija sa brzim neutronima treba spomenuti reakcije $\text{Al}^{27}(n, \alpha) \text{Na}^{24}$ i $\text{Ni}^{58}(n, p) \text{Co}^{58}$. Takođe treba voditi računa da se pri ozračivanju izotopa sa velikim aktivacionim presekom, posle dužeg ozračivanja, formira dovoljno velika količina novog izotopa nastalog zahvatom jednog neutrona. Ovaj izotop može zahvatom još jednog neutrona da pređe u novi izotop koji se razlikuje od prethodnog za dva neutrona.

1.2. TEORIJSKE OSNOVE AKTIVACIONE ANALIZE. Metod aktivacione analize je zasnovan na teoriji interakcije neutrona sa materijalom. Jezgro stabilnog izotopa A zahvata neutron i prelazi u radioaktivno jezgro izotopa B, koje se zatim raspada sa nekom konstantom raspada λ_B u jezgro novog izotopa C. Ako je izotop C stabilan, što je najčešće slučaj, brzina porasta broja radioaktivnih jezgara izotopa B, zavisi od broja jezgara N_A prisutnih u ozračivanoj meti, aktivacionog preseka σ_A i neutronske fluksa ϕ . Brzina nagomilavanja radioaktivnih jezgara biće određena brzinom njihovog formiranja $\sigma_A \phi N_A$ i brzinom raspada $\lambda_B N_B$

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma_A \phi N_A - \lambda_B N_B \quad (1)$$

Ako sa τ označimo vreme ozračavanja, tada integracijom izraza (1) dobijamo broj radioaktivnih atoma u meti na kraju ozračavanja

$$N_B^{\circ} = \frac{\sigma_A \phi N_A}{\lambda_B} \left[1 - e^{-\lambda_B \tau} \right] \quad (2)$$

a aktivnost uzorka će iznositi

$$A_B^{\circ} = N_B^{\circ} \lambda_B = \sigma_A \phi N_A \left[1 - e^{-\lambda_B \tau} \right] \quad (3)$$

Posle vremena t od prestanka ozračavanja aktivnost će iznositi

$$A_B = A_B^{\circ} e^{-\lambda_B t} = A_B^{\circ} e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}}$$

$$A_B = \sigma_A \phi N_A \left[1 - e^{-0,693 \frac{\tau}{T_{1/2}}} \right] e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}} \quad (4)$$

a broj atoma stabilnog izotopa A iznosiće

$$N_A = \frac{A_B}{\sigma_A \phi \left[1 - e^{-0,693 \frac{\tau}{T_{1/2}}} \right] e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}}} \quad (5)$$

Veza između broja atoma i mase u gramima data je izrazom

$$N = \frac{6,02 \cdot 10^{23} m \theta}{M} \quad (6)$$

gde je (m) masa u gramima, (θ) izotopski sastav, a (M) atomski broj izotopa koji se ozračuje. Zamenom ovog izraza u jednačini (4), izostavljajući indeks B, dobijamo izraz za masu stabilnog izotopa koji se ozračuje

$$m = \frac{MA}{0,602 \sigma_a \phi \left[1 - e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}} \right] e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}}} \quad (7)$$

gde je (A) aktivnost u trenutku (t) izražena kao broj raspada/sec, ϕ fluks neutrona izražen kao broj neutrona/sec \cdot cm², a σ_a aktivacioni presek izražen u barnima (1 barn = 10⁻²⁴ cm²).

1.3. METOD MERENJA. U aktivacionoj analizi može se primeniti kako apsolutan, tako i relativan metod merenja. Pri korišćenju metoda apsolutnih merenja, fluks neutrona se procenjuje pomoću "monitora", a to su zlatna folija, rastvor zlata, ili vodeni rastvor KMnO₄. "Monitor" se ozračuje zajedno sa uzorkom isti period vremena, a zatim se izmeri aktivnost nastala pri ozračivanju. Masa "monitora" je poznata, aktivacioni presek je dovoljno tačno poznat, kao i vreme ozračivanja. Uvrštavanjem ovih i ostalih podataka, karakterističnih za dati izotop koji se koristi kao "monitor", u obrazac (7) može se izračunati fluks termalnih neutrona.

Tačnost apsolutnog metoda zavisi od tačnosti s kojom je poznat aktivacioni presek za dati izotop čija se masa određuje. Pošto ovi preseki nisu uvek dovoljno tačno poznati, veći značaj ima relativan metod merenja u odnosu na "standard" ili "etalon" specijalno napravljen od istog materijala približno istog sastava izotopa kao i uzorak. Uzorak i "etalon" se zajedno ozračuju na istom mestu u reaktoru, posle vađenja iz reaktora podvrgavaju se istim hemiskim obradama (ukoliko se one vrše) i istom načinu merenja aktivnosti. Tada je masa uzorka jednaka

$$m_{uz} = m_{et} \frac{A_{uz}}{A_{et}}$$

Iako relativan metod merenja ima očigledne prednosti nad apsolutnim u pogledu tačnosti, on se ipak ne može uvek primeniti, jer često ne postoje mogućnosti za izradu "etalona" sličnog hemiskog sastava kao uzorak.

Kada se uzorak sastoji iz velikog broja elemenata, potrebno je pre merenja aktivnosti izvršiti hemisko razdvajanje pojedinih izotopa, ili grupa izotopa. Međutim, ako nije neophodno bolje je izostaviti hemisku obradu, jer tom prilikom može doći do gubitaka i inače malih količina izotopa čija se masa određuje.

1.4. OSETLJIVOST I TAČNOST NEUTRONSKE AKTIVACIONE ANALIZE. Osetljivost analize izražava se kao najmanja količina izotopa u gramima koja se još može otkriti i kvantitativno proceniti putem merenja nastale aktivnosti. Osetljivost zavisi ne samo od primenjenog metoda merenja, već i od svojstava ozračivanog izotopa i obrazovanog radioaktivnog izotopa. Veća osetljivost je zapažena pri većim preseccima aktivacije i većim neutronskim fluksevima, kada se obrazuje kratko-živući izotop. U tabeli I¹ je data osetljivost u zavisnosti od vrste elementa koji se ozračuje.

TABELA I

Elementi	Procenjena aktivnost u gramima
Europijum, holmijum, zlato	10^{-12}
Arsen, indijum, iridijum, prazeodimijum, samarijum, skandijum, terbijum, tulijum, volfram, iterbijum	10^{-11}
Antimon, argon, hrom, cezijum, kobalt, bakar, erbijum, gadolinijum, galijum, hafnijum, neodim, paladijum, fosfor, rubidijum, natrijum, tantal, torijum	10^{-10}
Barijum, kadmijum, cerijum, hlor, germanijum, jod, živa, osmijum, platina, kalaj, rutenijum, srebro, telur, ksenon, cink	10^{-9}
Bizmut, molibden, nikl, selen, silicijum, talijum, uran	10^{-8}
Kalcijum, gvožđe, kiseonik, stroncijum, sumpor	10^{-7}
Olovo	10^{-6}

Na osetljivost utiče vreme ozračivanja, jer se pri dužem ozračivanju povećava aktivnost, naročito kod izotopa sa kratkim vremenom poluraspada. Postignuta osetljivost pri radu znatno zavisi od efikasnosti brojača kojim se meri radioaktivnost. Za merenje aktivnosti se najviše koriste scintilacioni brojači (naročito kad je u pitanju gama zračenje), jer su oni najefikasniji.

TABELA II

Element	Aktivaciona analiza $5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$	$10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$	Bakarna varnica	Luk jedno- smerne struje	Plamena foto- metrija	Spektro- fotometr.	Anterometrijska titracija		
Z	1	2	3	4	5	6	7	8	9
11 Na	0,007		0,00035	0,1	20	0,002			
13 Al	0,001		0,00005	0,1	0,2	20	0,002	300	
14 Si	1		0,05	0,1	2	-	0,1		
21 Sc	0,002		0,0001	0,005	-	-	-		
22 Ti	-		-	0,1	-	2	0,03	10	
24 Cr	0,2		0,01	0,05	2	1	0,02	1	
26 Fe	9		0,45	0,5	0,2	2	0,05	2	
27 Co	0,02		0,001	0,5	-	10	0,025	100	
29 Cu	0,007		0,00035	-	0,2	0,1	0,03	10	
30 Zn	0,04		0,002	2	20	2000	0,016	10	
57 La	0,002		0,0001	0,05	-	5	-		
58 Ce	0,1		0,005	0,5	-	20	0,25	500	
59 Pr	0,002		0,0001	0,2	-	100	-		
60 Nd	0,1		0,005	0,2	-	50	-		

	1	2	3	4	5	6	7	8	9
61	Fm	-	-	-	-	-	-	-	-
62	Sm	0,0006	0,00003	0,2	-	100	-	-	-
63	Eu	0,00003	0,0000015	0,02	-	-	-	-	-
64	Gd	0,02	0,001	0,1	-	10	-	-	-
65	Tb	0,004	0,0002	-	-	-	-	-	-
66	Dy	0,00003	0,0000015	0,5	-	10	-	-	-
67	Ho	0,0004	0,00002	0,2	-	-	-	-	-
68	Er	0,02	0,001	0,5	-	-	-	-	-
69	Tm	0,002	0,0001	0,05	-	-	-	-	-
70	Yb	0,002	0,0001	0,1	-	-	-	-	-
71	Lu	0,0003	0,000015	2	-	-	-	-	-

Veća tačnost se postiže ako se koristi relativni metod merenja i u toliko je veća u koliko su koncentracije izotopa u "etalonu" približnije koncentracijama istih izotopa u uzorku.

U tabeli II¹¹ dato je poređenje osetljivosti metode aktivacione analize sa drugih pet spektroskopskih metoda analize malih količina elemenata. Osetljivost je data u mikrogramima po gramu primerka za dve vrednosti fluksa, tako da se vidi kako utiče fluks.

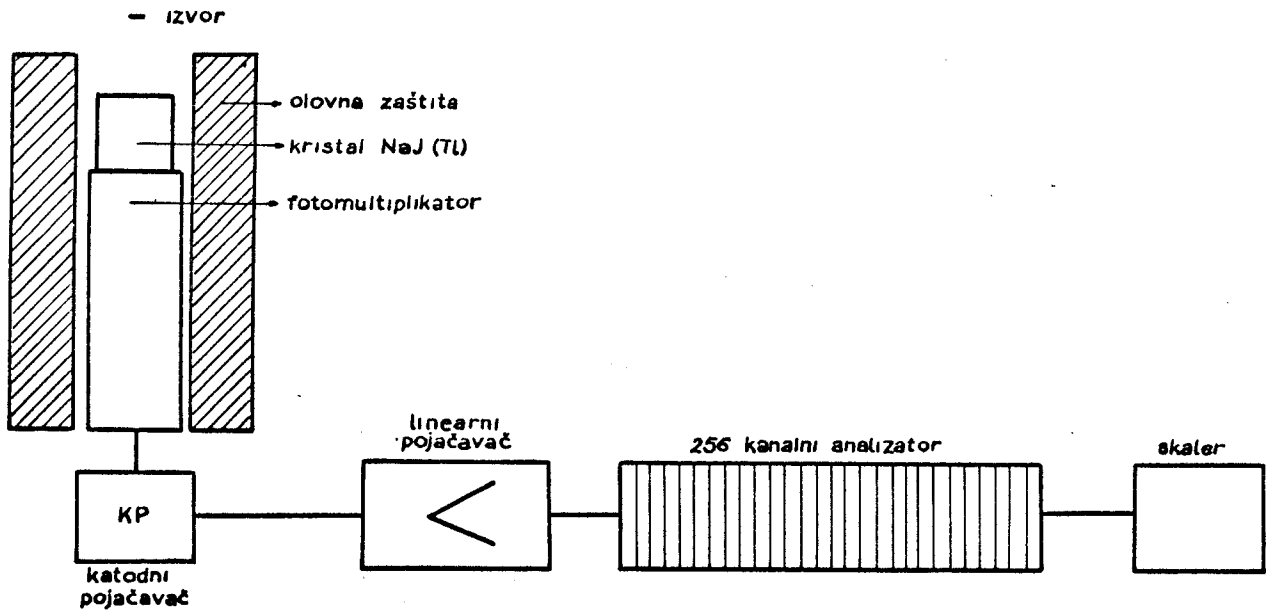
2. METOD MERENJA AKTIVNOSTI

U obrascu za određivanje mase nekog izotopa prisutnog u ozračivanom materijalu, figurišu tabelisane vrednosti karakteristične za dati izotop (aktivacioni presek, poluživot i atomski broj) i vrednosti koje se moraju eksperimentalno odrediti (vreme ozračivanja, fluks neutrona i aktivnost radioizotopa). Ako se koristi relativan metod merenja potrebno je odrediti samo aktivnost (što se svodi na određivanje površine spektralne linije), a ako se koristi metod apsolutnih merenja potrebno je odrediti i fluks neutrona, na napred opisani način.

Merenje aktivnosti je vrlo važna etapa u procesu aktivacione analize, jer se iz snimljenog spektra određuje i vrsta izotopa, prisutnih u datom materijalu i njihova količina.

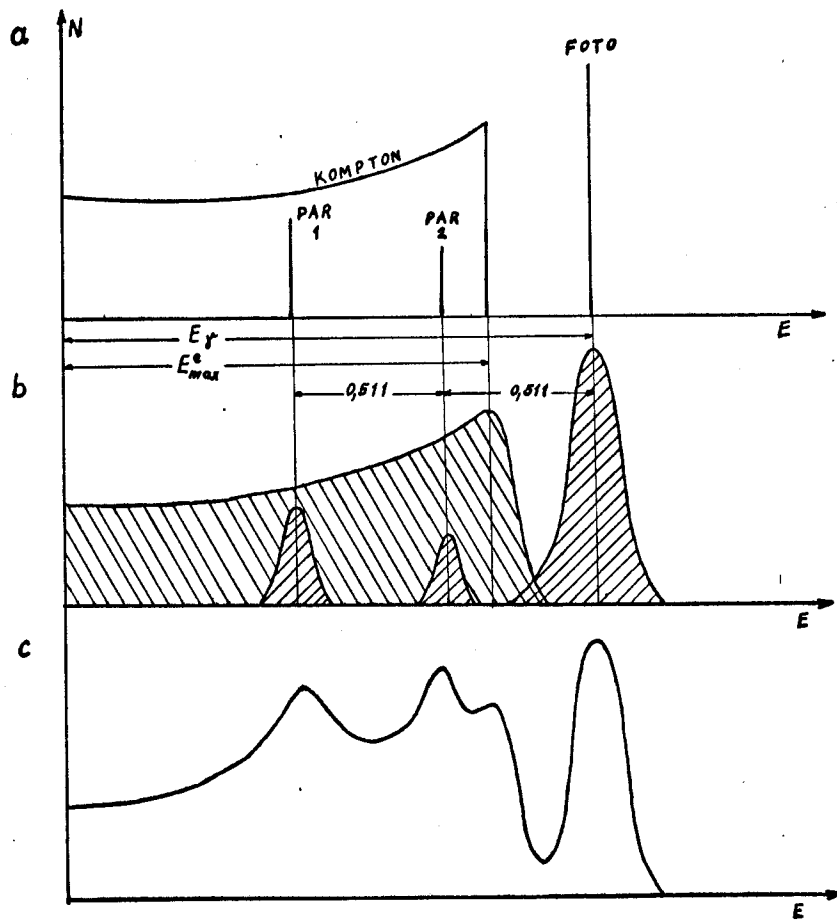
Zbog niza povoljnih osobina, od kojih je najvažnija visoka efikasnost, najpogodniji je i najčešće primenjivan scintilacioni metod merenja aktivnosti. Pri korišćenju beta ili gama scintilacionog spektrometra, ako uzorak ne sadrži veliki broj izotopa, nije potrebno vršiti prethodno radiohemisko razdvajanje, te se isključuju greške koje se pojavljuju u procesima hemijske obrade uzorka.

U ovom radu korišćen je gama scintilacioni spektrometar sa kristalom NaJ(Tl) dimenzija 5,08 cm x 5,08 cm i 256-kalnim analizatorom. Blok šema spektrometra data je na slici 1.



Sl.1

Blok šema scintilacionog spektrometra.



Sl.3

2.1. FIZIČKE OSNOVE GAMA-SCINTILACIONE SPEKTROMETRIJE.

Gama zračenje može da interaguje sa materijom^{2,3,4,5} na tri načina: fotoelektričnim efektom, Komptonovim efektom i efektom stvaranja parova elektron-pozitron.

Pri fotoefektu gama zrak nestaje, predajući svu svoju energiju vezanom elektronu. Deo energije se koristi za savlađivanje vezivne energije elektrona u atomu, a ostatak prelazi u kinetičku energiju fotoelektrona. Ako gama kvant ima energiju veću od energije veze K-elektrona, 80% fotoefekta događa se na K-elektronima. Atom koga je napustio fotoelektron, deekscitira se emisijom karakterističnog X-zračenja koje se lako apsorbuje, najčešće procesima sekundarnog fotoefekta. Pošto proces deekscitacije sledi gotovo "trenutno" proces prvobitnog fotoefekta, može se smatrati da se pri fotoefektu apsorbuje celokupna energija upadnog gama kvanta (ukoliko se potpuno apsorbuje energija fotoelektrona i X-zračenja).

Komptonov efekat pretstavlja elastično rasejanje na valentnim elektronima atoma, čija vezivna energija je zanemarljiva u odnosu na energiju fotona, pa se mogu smatrati slobodnim. Kinetička energija koju će primiti elektron, zavisi od energije fotona i od ugla pod kojim će elektron biti izbačen u odnosu na prvobitni pravac fotona. Najveći iznos energije elektron će primiti pri čeonom sudaru, kada elektron izleće u pravcu kretanja fotona, a najmanji iznos će primiti kada je izbačen pod uglom od 90°. Najveća verovatnoća⁵ je da će se foton rasejati pod uglom od 180°, pri čemu elektron prima maksimalni iznos energije

$$E_e^{max} = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{m_e c^2}{2E_\gamma}}$$

Međutim, moguća su i rasejanja fotona pod svim uglovima od 0° do 180°, pri čemu elektron prima iznos energije manji od maksimalnog. Na taj način dobija se čitav spektar energija Kompton-ski rasejanih elektrona od nulte do maksimalne energije.

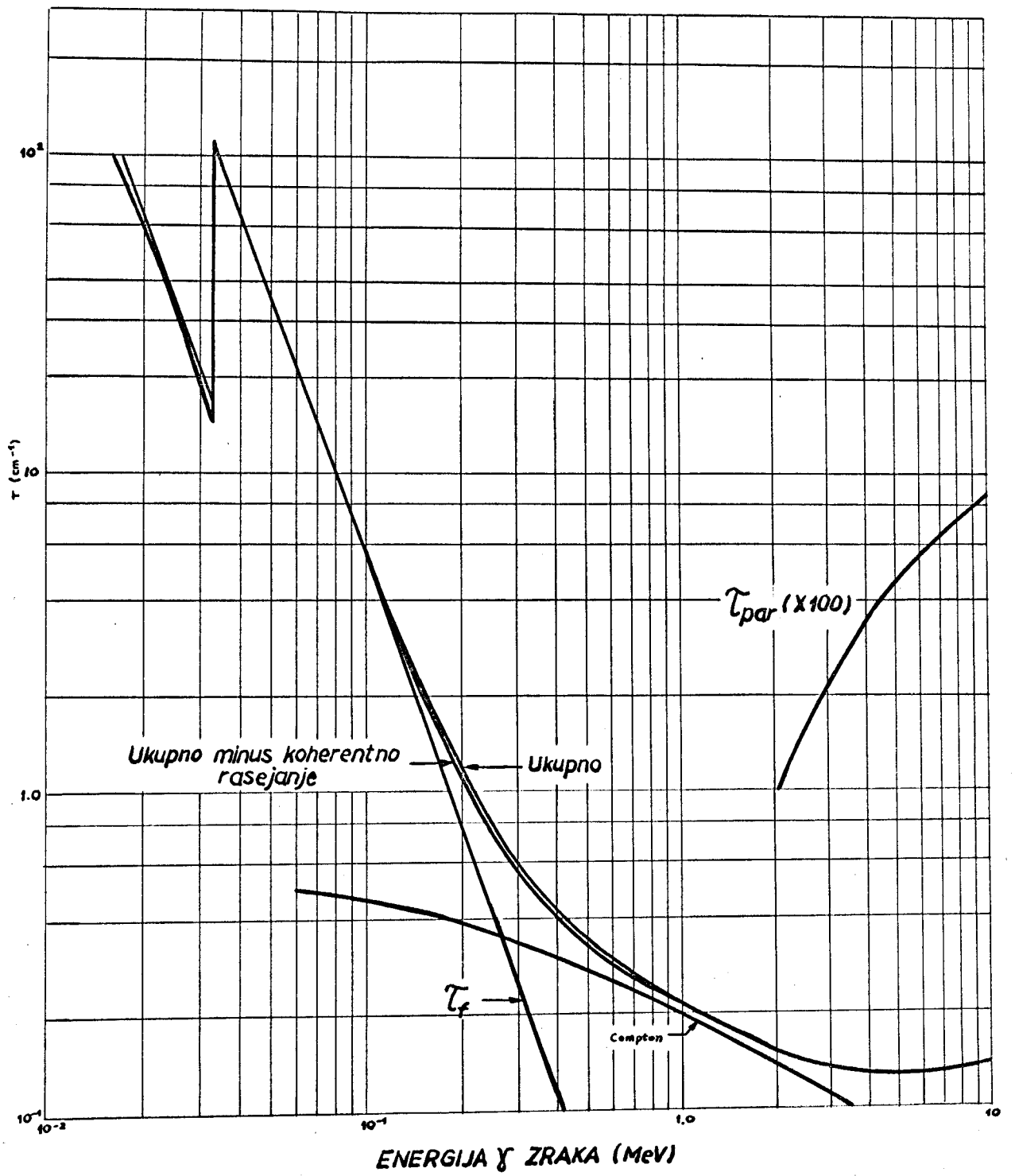
Kreiranje para elektron-pozitron moguće je u Kulonovom polju jezgra, ako gama kvant ima energiju jednaku ili veću

od energije ekvivalentne dvostrukoj masi elektrona u miru (1,022 MeV-a), ili u Kulonovom polju elektrona ukoliko je energija fotona veća od $4 m_0 c^2$ (4,044 MeV-a). Pri tome gama kvant nestaje predajući svu svoju energiju paru elektron-pozitron, čija kinetička energija iznosi $E - 2m_0 c^2$. U polju elektrona pozitron se anihilira dajući dva gama kvanta energija 0,511 MeV-a.

Verovatnoća interakcije fotona sa materijom na jedan od ova tri načina, zavisi od energije fotona i rednog broja Z materijala. Na sl. 2 dati su efikasni preseki (ili apsorpcioni koeficijenti) za sva tri efekta u funkciji energije fotona. Na nižim energijama zračenja (nekoliko stotina KeV-a) predominantan vid interakcije je fotoefekat. Efikasni preseki za fotoefekat raste sa Z kao Z^5 , a opada sa energijom kao E_γ^{-2} na nižim energijama, a na višim kao E_γ^{-1} . Komptonovo rasejanje je predominantan vid interakcije za energije zračenja oko 1 MeV-a. Efikasni preseki za Komptonov efekat opada sa energijom kao E^{-1} , a raste sa Z . Za zračenje energije iznad 2 MeV-a predominantan je efekat obrazovanja parova, čiji efikasni preseki raste sa Z kao Z^2 , a sa energijom prvo linearno, a za $E_\gamma > 4\text{MeV}$ -a kao $\log E$.

Gama zračenje i sa scintilacionim materijalom reaguje na gore opisani način. Sekundarni elektroni koji pri tim procesima primaju deo ili celokupnu energiju gama kvanta, gube ovu energiju na ekscitaciju i jonizaciju atoma sa kojima se sudaraju pri kretanju kroz scintilator. Pri deexcitaciji emituje se svetlost (scintilacija), čija talasna dužina zavisi od vrste scintilatora. Vreme gorenja scintilatora (to je vreme za koje maksimalni intenzitet svetlosti opadne $1/e$ puta) je vrlo kratko i iznosi za NaJ(Tl) $0,25 \times 10^{-6}$ sec na sobnoj temperaturi. Da bi scintilacije bile intenzivnije natrijumjodidu se dodaje mala količina talijuma (optimalna količina iznosi oko 0,1%). Kratko vreme gorenja predstavlja jednu od prednosti scintilacionih detektora, jer omogućava visoku sposobnost vremenskog razlaganja (malo mrtvo vreme).

Važna osobina kristala je da postoji proporcionalnost između intenziteta emitovane svetlosti i apsorbovane energije gama kvanta.



Sl.2

Apsorbcioni koeficijent τ u funkciji energije
gama zraka (za NaJ(Tl))

Deo emitovane svetlosti pada na katodu fotomultiplikatora i posredstvom fotoefekta izbija izvestan broj elektrona. Ovi elektroni se električnim poljem ubrzavaju i usmeravaju prema prvoj dinodi, sa koje posredstvom sekundarne emisije svaki elektron izbacuje nekoliko novih elektrona, koji se zatim ubrzavaju i usmeravaju prema drugoj dinodi itd. Pri broju dinoda od 10 do 15 ukupni koeficijent multiplikacije iznosi od 10^3 do 10^9 . Na poslednju dinodu-kolektor stiže čitava lavina elektrona, te se formira strujni impuls koji se zatim pretvara u naponski. Ove impulse (reda veličine nekoliko volta) potrebno je radi dalje analize pojačati. Zbog toga se preko katodnog pojačavača odvođe u linearni pojačavač, koji pojačava ove impulse do maksimalne amplitude od oko 100 V.

Pošto je pojačanje linearno naponski impuls biće proporcionalan impulsu na izlazu fotomultiplikatora, a ovaj je proporcionalan početnom broju elektrona koje emituje fotokatoda, pošto fotomultiplikator radi linearno. Broj elektrona koje emituje fotokatoda proporcionalan je intenzitetu svetlosti koju emituje kristal, a intenzitet svetlosti je proporcionalan apsorbovanoj energiji gama zračenja. Znači, amplituda na izlazu pojačavača proporcionalna je apsorbovanoj energiji, odnosno energiji zračenja. U intervalu energije od 0,145 do 2,760 MeV-a, proporcionalnost je linearna¹, uz odstupanja do 10%.

Pošto gama kvanti pri različitim procesima interakcije ostavljaju u scintilatoru, preko sekundarnih elektrona, različite iznose energije, to će se na izlazu fotomultiplikatora, odnosno izlazu linearnog pojačavača, dobiti impulsi različitih amplituda. Ovi impulsi se odvođe u višekanalni analizator, koji ih grupiše po veličinama, a zatim se ovako grupisani impulsi odvođe na skaler koji ih odbrojava. Mereči zavisnost broja impulsa od amplitude, koja je proporcionalna apsorbovanoj energiji, dobija se energetski spektar merenog gama zračenja.

2.2. KVALITATIVNA ANALIZA SPEKTRA. Izgled spektra zavisi od energije zračenja, koje emituje izvor, od dimenzija kris-

tala i od rastojanja izvor-kristal.

Proces apsorpcije putem fotoefekta daje liniju čija energija je jednaka energiji gama zračenja. Komptonov efekat će dati kontinualnu raspodelu sa maksimumom intenziteta, koji odgovara maksimalnoj energiji Komptonski rasejanih elektrona. Na ovoj energiji raspodela se naglo prekida. Par efekat će dati jednu liniju sa energijom jednakom energiji gama kvanta, ako se apsorbuju oba anihilaciona gama kvanta; ako jedan anihilacioni gama kvant napusti kristal dobija se linija čija je energija jednaka $E - 0,511 \text{ MeV}$ -a, a ako oba anihilaciona gama kvanta napuste kristal, dobija se linija na energiji $E - 1,022 \text{ MeV}$ -a. Ovakav idealan spektar prikazan je na slici 3a. Zbog statističke prirode procesa u scintilatoru i fotomultiplikatoru, praktično se ne dobijaju idealno uske već proširene linije, koje se popravljavaju Gausovoj raspodeli, a čiji maksimum se poklapa sa položajem idealne linije. Ovako proširene linije se obično nazivaju "peak"-ovima. Iz istog razloga kontinualni deo spektra, koji odgovara Komptonovoj raspodeli, ne prekida se naglo na energiji E_e^{max} , već postepeno opada i kraj se obično superponira sa krajem fotolinije, što dovodi do njene asimetrije. Takav realan spektar dat je na sl. 3c. "Peak" koji odgovara energiji gama zračenja, pravilnije je zvati "peak" totalne apsorpcije, nego "foto-peak", jer se energija gama kvanta može totalno apsorbovati ne samo putem procesa fotoefekta, već i kombinacijom Komptonovog rasejanja i fotoefekta, ili višestrukim Komptonovim rasejanjem, kao i procesom par-efekta ako se apsorbuju oba anihilaciona gama kvanta. Sem ovih linija u spektru mogu da se pojave i linije koje potiču od parazitnog zračenja okoline detektora. Izvestan deo zračenja izvora interaguje sa materijalom zaštite oko detektora, a to je obično olovo. Pri fotoapsorpciji fotona u olovu dolazi do emisije karakterističnog x-zračenja, koje se zatim detektuje. Ova vrsta parazitnog zračenja se dosta efikasno uklanja prevlačenjem unutrašnjeg zida zaštite materijalima sa niskim Z (to su obično kadmijum i bakar), koji apsorbuju x-zračenje olova smanjujući njegov intenzitet sto i više puta, a sami emituju karakteristično zračenje vrlo niskih energija. Ako se foton Komptonski raseje na materijalu zaštite (a najverovatnije je da će se rasejati pod uglom od 180°) njihovom apsorpcijom u kris-

talnu dobija se u niže-energetskom delu spektra tzv. "back - scattering peak", čija energija zavisi od energije primarnog zračenja i ugla pod kojim su fotoni rasejani, ali ne prelazi 400 KeV-a. Ovo parazitno zračenje se može smanjiti povećanjem dimenzija zaštite u odnosu na dimenzije kristala.

Ako gama emisiji konkuriše proces interne konverzije, ili postoji elektronski zahvat, u nisko-energetskom delu spektra pojavljuje se linija čija energija odgovara energiji X-zračenja datog izotopa, koje uvek prati gore pomenute procese. Ako radioizotop emituje dva ili više gama kvanta u kaskadi, obično je vreme zastoja između kaskada suviše kratko u poređenju sa vremenom detekcije, zbog čega se oba kvanta iz kaskade detektuju "istovremeno" dajući liniju čija je energija jednaka zbiru energija gama kvanta u kaskadi. To je slučaj na primer kod kobalta Co^{60} i Na^{24} .

Ukoliko su dimenzije kristala veće "peak-ovi" totalne apsorpcije su istaknutiji u odnosu na Komptonovu raspodelu, a smanjenje rastojanja izvor-kristal proizvodi sličan efekat.

Kvalitativna analiza spektra se svodi na određivanje energija "peak-ova" totalne apsorpcije koje odgovaraju energijama gama zračenja koje emituje izvor. Poznavajući energije gama kvanta, možemo zaključiti koji izotopi emituju dato zračenje, tj. možemo proceniti izotopski sastav izvora.

Pre merenja spektrometar se kalibriše pomoću nekoliko standardnih izotopa, čije energije zračenja su poznate. Ukoliko se detektuje samo gama zračenje mora se upotrebiti neki apsorber koji će eliminisati alfa ili beta zračenje zavisno od vrste raspada.

Kao dopunski podatak za identifikaciju izotopa prema energiji zračenja, meri se promena intenziteta linija u funkciji vremena, te se iz dobijenog grafika može približno oceniti period poluraspada, koji je karakterističan za svaki izotop. Kada imamo smešu nekoliko izotopa, a svaki emituje nekoliko gama kvanta različite energije, tada se dobija prilično komplikovan spektar, u kome imamo superpoziciju više linija pod jednim "peak-om",

zbog relativno slabog energetskog razlaganja scintilacionog spektrometra, ili imamo superpoziciju "peak-a" totalne apsorpcije jedne energije sa Komptonovom raspodelom zračenja druge energije. Tada se približno procenjuje o kojim izotopima se radi, pa se posebno snime spektri tih izotopa, normiraju na jednu od njihovih linija i oduzimaju od ukupnog spektra. Ovo "ljuštenje" može se ponoviti i nekoliko puta što zavisi od složenosti spektra. Ono je naročito neophodno pri kvantitativnoj analizi kada se određuju površine pod "peak-ovima" totalne apsorpcije.

2.3. KVANTITATIVNA ANALIZA SPEKTRA I ODREĐIVANJE AKTIVNOSTI. Kvantitativna merenja intenziteta spektralnih linija, tj. broja fotona date energije emitovanih od strane izvora u jedinici vremena, zahtevaju poznavanje izvesnih parametara spektrometra, a to su detekciona efikasnost, fotodoprinos i fotoefikasnost. Jednom određeni parametri za kristal datih dimenzija, za drugi kristal istih dimenzija i za istu geometriju imaju istu vrednost. Ovo je značajna činjenica, jer se mogu koristiti tabelisane vrednosti ovih parametara, što skraćuje vreme rada, jer treba izmeriti samo površinu pod "peak-om" totalne apsorpcije.

Totalna detekciona efikasnost \mathcal{E}_t se definiše kao odnos broja ukupno detektovanih fotona u spektru N_t prema broju fotona koji su pali na površinu kristala $N_0 \Omega$

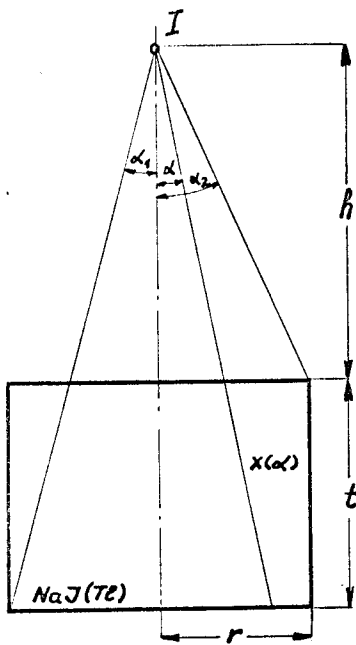
$$\mathcal{E}_t = \frac{N_t}{N_0 \Omega}$$

N_0 je ukupan broj fotona, koji emituje izvor, a Ω je prostorni ugao, koji obrazuju površina kristala i tačkasti izvor, u jedinicama 4π . Za slučaj tačkastog izvora koji se nalazi na osi cilindričnog kristala, totalna efikasnost je data izrazom

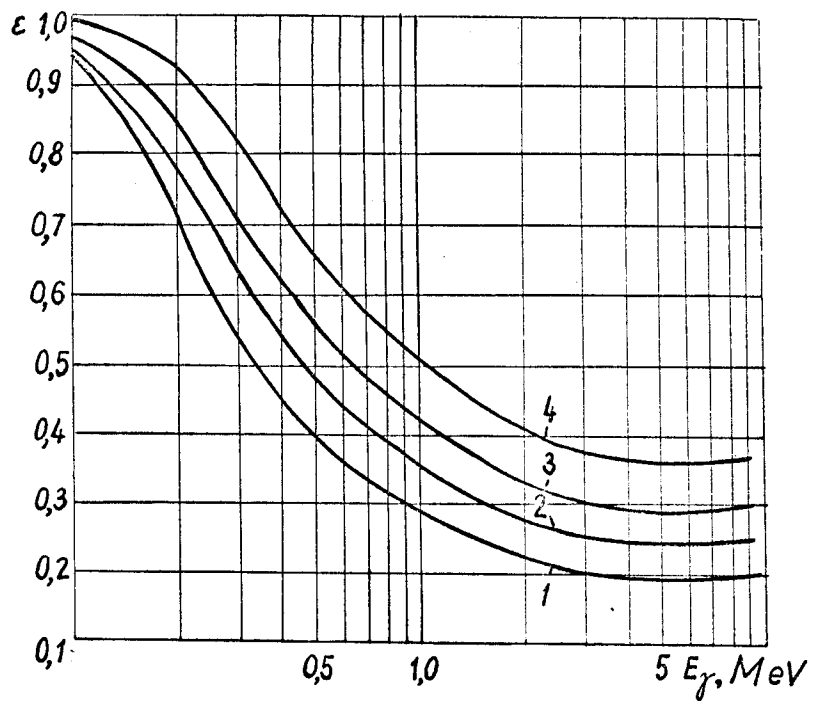
$$\mathcal{E}_t = \frac{\frac{1}{2} \int_0^{\alpha_2} (1 - e^{-\tau X(\alpha)}) \sin \alpha \, d\alpha}{\frac{1}{2} \int_0^{\alpha_2} \sin \alpha \, d\alpha}$$

$$\begin{array}{lll} X = t \sec \alpha & \text{za} & 0 \leq \alpha \leq \alpha_1 = \arctg \frac{r}{h+t} \\ X = r \operatorname{cosec} \alpha - h \sec \alpha & \text{za} & \alpha_1 \leq \alpha \leq \alpha_2 = \arctg \frac{r}{h} \end{array}$$

Značenje pojedinih veličina vidi se na sl. 4. τ je totalni linearni apsorpcioni koeficijent.

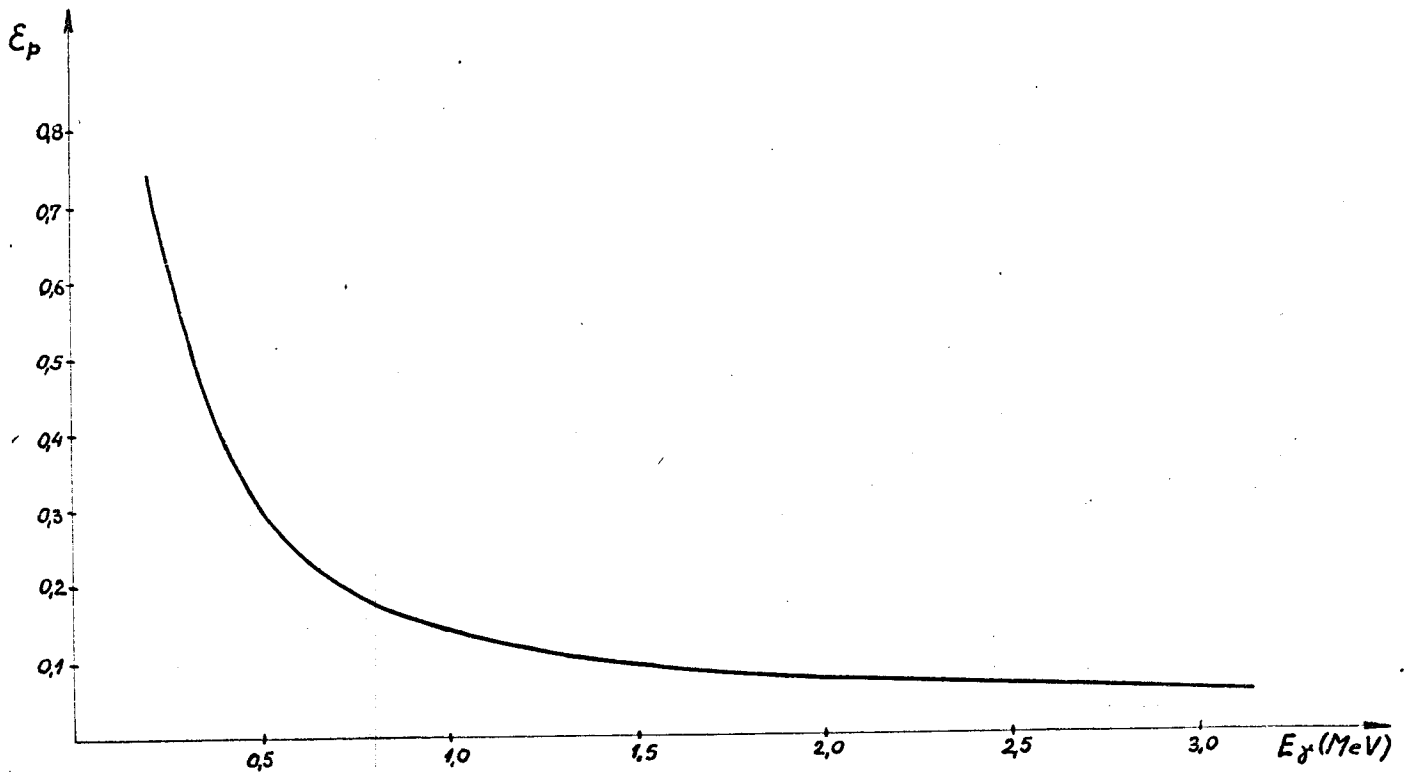


Sl.4



Sl.5

Zavisnost totalne efikasnosti od rastojanja izvor-detektor (kristal NaJ(Tl) 40 mm x 40 mm): (1)-1,6 cm, (2)-4,7 cm, (3)-9,5 cm i (4)-32 cm



Sl.6

Fotoefikasnost u funkciji energije za kristal NaJ(Tl) 50,8 mm x 50,8 mm

Totalna detekciona efikasnost zavisi od energije, atomskog broja i gustine materijala (opada sa porastom energije), zatim od dimenzija kristala (raste sa povećanjem dimenzija) i od rastojanja izvor-kristal (opada kada se rastojanje smanjuje, prolazi kroz minimum i raste kad rastojanje teži nuli). Totalna efikasnost može da se izračuna, ili odredi eksperimentalno. Na sl. 5 pokazana je zavisnost detekcione efikasnosti od rastojanja izvor-kristal u funkciji energije.

Fotodoprinos P_p se definiše kao odnos broja gama kvantata čija je energija totalno apsorbirana i ukupno detektovanih gama kvantata. Postoje metode za njegovo proračunavanje, ali se češće određuje eksperimentalno kao odnos površine pod "peak-om" totalne apsorpcije i površine pod celokupnim spektrom. Fotodoprinos zavisi od energije zračenja (opada sa porastom energije), od dimenzija kristala (raste sa porastom dimenzija) i donekle zavisi od rastojanja izvor-kristal.

Fotoefikasnost ϵ_p predstavlja odnos broja detektovanih fotona u "peak-u" totalne apsorpcije i broja fotona koji su pali na kristal.

$$\epsilon_p = \frac{N_p}{N_0 \Omega}$$

Iz gornjih definicija se vidi da postoji veza

$$\epsilon_p = \epsilon_t P_p$$

Fotoefikasnost se može izračunati ako je poznata detekciona efikasnost (teorijska vrednost) i fotodoprinos određen eksperimentalno. Može se i eksperimentalno odrediti, ako se raspolaze sa izvorom poznate aktivnosti. Fotoefikasnost je tada jednaka količniku površine pod "peak-om" totalne apsorpcije i aktivnosti, sve korigovano za datu geometriju. Intenzitet linije date energije biće

$$I = \frac{N_p}{\epsilon_t P_p \Omega} = \frac{N_p}{\epsilon_p \Omega}$$

U ovom radu korišćene su teorijske vrednosti¹⁰ za fotoefikasnost, date na grafiku na sl. 6. Prostorni ugao je određen prema obrascu $1/2(1 - \cos \alpha)$ gde je $\alpha = \text{arc tg} \frac{r}{h}$, ako je r poluprečnik cilindričnog kristala, a h rastojanje od izvora do površine kristala, kada se izvor nalazi na pravcu ose kristala. Korišćen račun⁸ je pokazao da za izvore koji nisu tačkasti, pri odnosu poluprečnika izvora i detektora manjem od 0,5, razmere izvora ne utiču znatno na prostorni ugao. Zbog toga se mogu koristiti vrednosti prostornog ugla, koje odgovaraju tačkastom

izvoru, pri istom rastojanju izvor-detektor, sa greškom do 4%. U našem slučaju odnos rastojanja izvor-detektor i poluprečnika detektora iznosio je 1,968, a odnos poluprečnika izvora i poluprečnika detektora iznosio je 0,216. Greška zbog uzimanja vrednosti prostornog ugla koja odgovara tačkastom izvoru, za date uslove, iznosi oko 0,5%.

Kada je poznat intenzitet jedne od linija nekog izotopa, tada se njegova aktivnost može izračunati prema obrascu

$$A = \frac{I f}{n_i} = \frac{N_p f}{n_i \epsilon_p \Omega}$$

gde je A aktivnost izražena kao broj impulsa/sec, n_i je broj gama kvanata date energije po jednom raspadu, a f je popravka za mrtvo vreme detektora.

Mrtvo vreme scintilacionog spektrometra sa više-kanalnim analizatorom iznosi $\tau = k + j$, gde je k konstanta instrumenta, a j broj kanala analizatora u kojem je registrovan dati broj impulsa. Ako je N_j broj impulsa registrovanih u j-otom kanalu za vreme t(sec), tada je stvaran broj impulsa sa amplitudama u nekom intervalu na pr. 10-og do 30-og kanala jednak

$$N = \frac{\sum_{j=10}^{30} N_j}{t - \sum_{j=10}^{30} \tau_j N_j}$$

Kad se odredi broj impulsa pod "peak-om" totalne apsorbcije tada je stvarni broj impulsa jednak proizvodu

$$N_p f = N_p \frac{1}{t - \sum_j \tau_j N_j}$$

gde se za vrednost parametra j uzimaju brojevi kanala u kojima su registrovani impulsi koji pripadaju "peak-u" totalne apsorbcije.

Površine pod "peak-ovima" totalne apsorbcije su određivane na sledeće načine:

-Ako je "peak" ležao na približno ravnom fonu, tada je površina linije N_p određena prema obrascu

$$N_p = N - N_{fs} \pm \sqrt{N + N_{fs} (1 + n/m^2)}$$

gde je N zbir impulsa u svim kanalima koje obuhvata linija, n broj kanala koje obuhvata linija, N_{fs} srednja vrednost fona, koja se dobija kao srednja vrednost iz odbroja u nekoliko simetrično odabраних tačaka van linije, m broj tačaka van linije.

-Ako linija nije bila dovoljno razložena (odnosno postojala je superpozicija nekoliko linija bliskih energija) tada je vršeno grafičko razlaganje "ljuštenjem" spektra (pričazano na sl.13) pri čemu je pretpostavljeno da greške u procesu normalizacije nisu bile veće od 10%. Ukupna greška tada iznosi

$$\Delta N_p = \pm \sqrt{N + N_{fs}(1 + n/m^2) + \sum (a_i N_t)^2}$$

gde je N_t odbroj u interpolisanim tačkama.

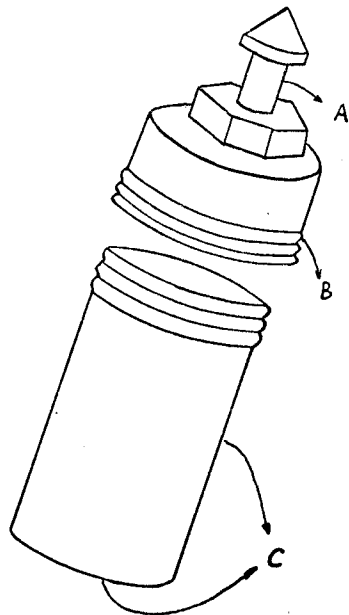
-Kad je linija ležala na Komptonskoj raspodeli, površina je određivana prema obrascu

$$N_p = N - N_c \pm \sqrt{N + N_c + \sum (a_i N_t)^2}$$

Površina pod Komptonском raspodelom je procenjivana interpolacijom dela Komptonске krive prema obliku posebno snimljene Komptonске krive iste, ili približne energije zračenja i uz pretpostavku da se pri tome nije grešilo više od 10%.

3. OPIS EKSPERIMENTA I REZULTATI

Cilj ovog rada je bio, kao što je istaknuto, da se odrede nečistoće koje sadrži aluminijum i nečistoće koje potiču iz sredine sa kojom je "kener" bio u dodiru. "Kener" može da se kontaminira u kanalu reaktora, gde su prisutne pare pojedinih materijala koji se nalaze u reaktoru, a koji usled visoke temperature (preko 200°C) mogu da isparavaju. Drugi izvor kontaminacije je pribor za rad u odelenju za prepakivanje, koji dolazi u dodir sa raznim materijalima prilikom prepakivanja. Pošto "kener" sl.7 nije hermetički zatvoren, gasovi mogu da prodru i u unutrašnjost, te je izvršena spoljna i unutrašnja dekontaminacija, a kao dekontaminacioni rastvor je korišćen etilalkohol. Tako dobijeni "brisevi" analizirani su samo kvalitativno



sl.7

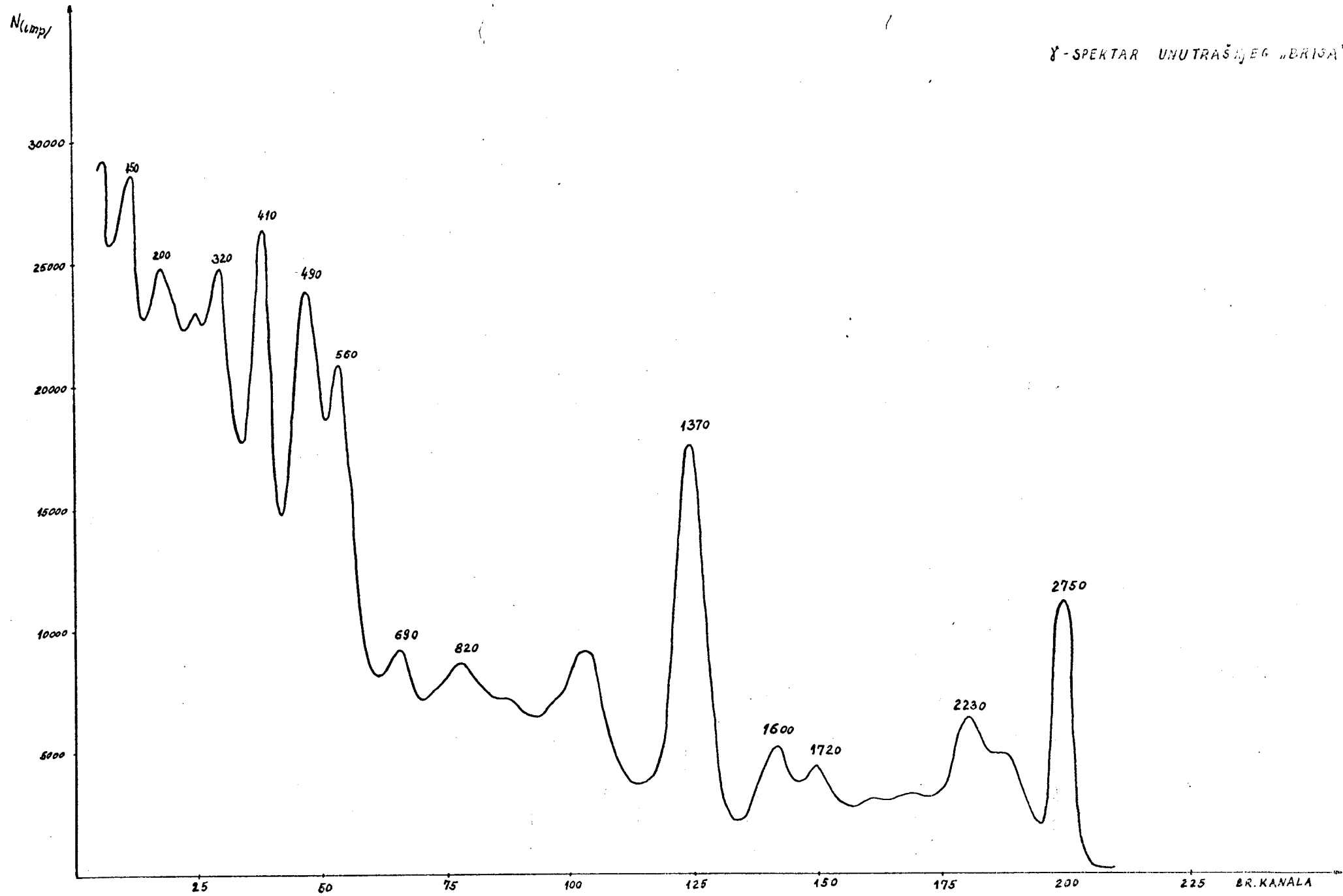
posle početka merenja, izgledao je kao na slici 8. Odah se zapaža da je veoma složen i da je prisutno više izotopa.

Linije na oko 2750 i 1370 KeV-a su pripisane izotopu natrijuma Na^{24} , koji ima poluživot 15 časova i dve intenzivne linije od 1369 i 2754 KeV-a. "Peak-ovi" na oko 2230 i 1720 KeV-a su posledica apsorpcije gama kvanta od 2754 KeV-a putem par-efekta, kada jedan, odnosno oba, anihilaciona gama kvanta napuste kristal. Praćenjem promene intenziteta ovih linija u funkciji vremena sl.11, dobijena je vrednost za poluživot 16 i 14,2 časa, što potvrđuje da ove linije pripadaju Na^{24} .

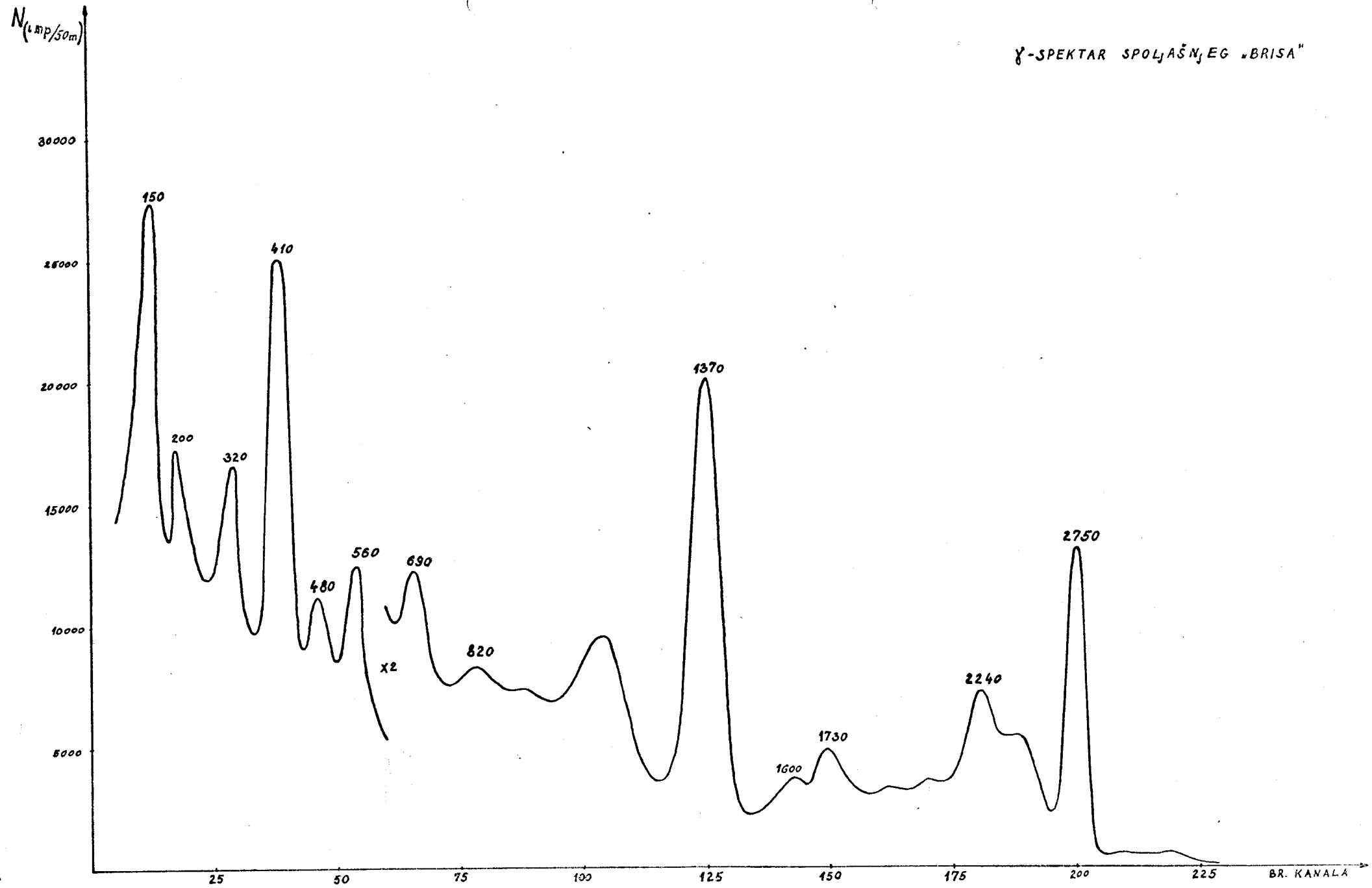
Za linije od 1600 i 820 KeV-a pretpostavljeno je da pripadaju izotopu lantana La^{140} , koji ima poluživot 40,2 časa i linije energije 327, 487, 817, 920 i 1597 KeV-a. Praćenjem promene intenziteta linije od 1600 KeV-a dobijena je vrednost za poluživot 42 časa, a za liniju od 820 KeV-a 55 časova. U spektru postoje i "peak-ovi" koji odgovaraju energijama ostalih linija lantana od 327 i 487 KeV-a. Međutim, ovi "peak-ovi" sadrže linije, i drugih izotopa. Tako je pretpostavljeno da "peak" na 485 KeV-a

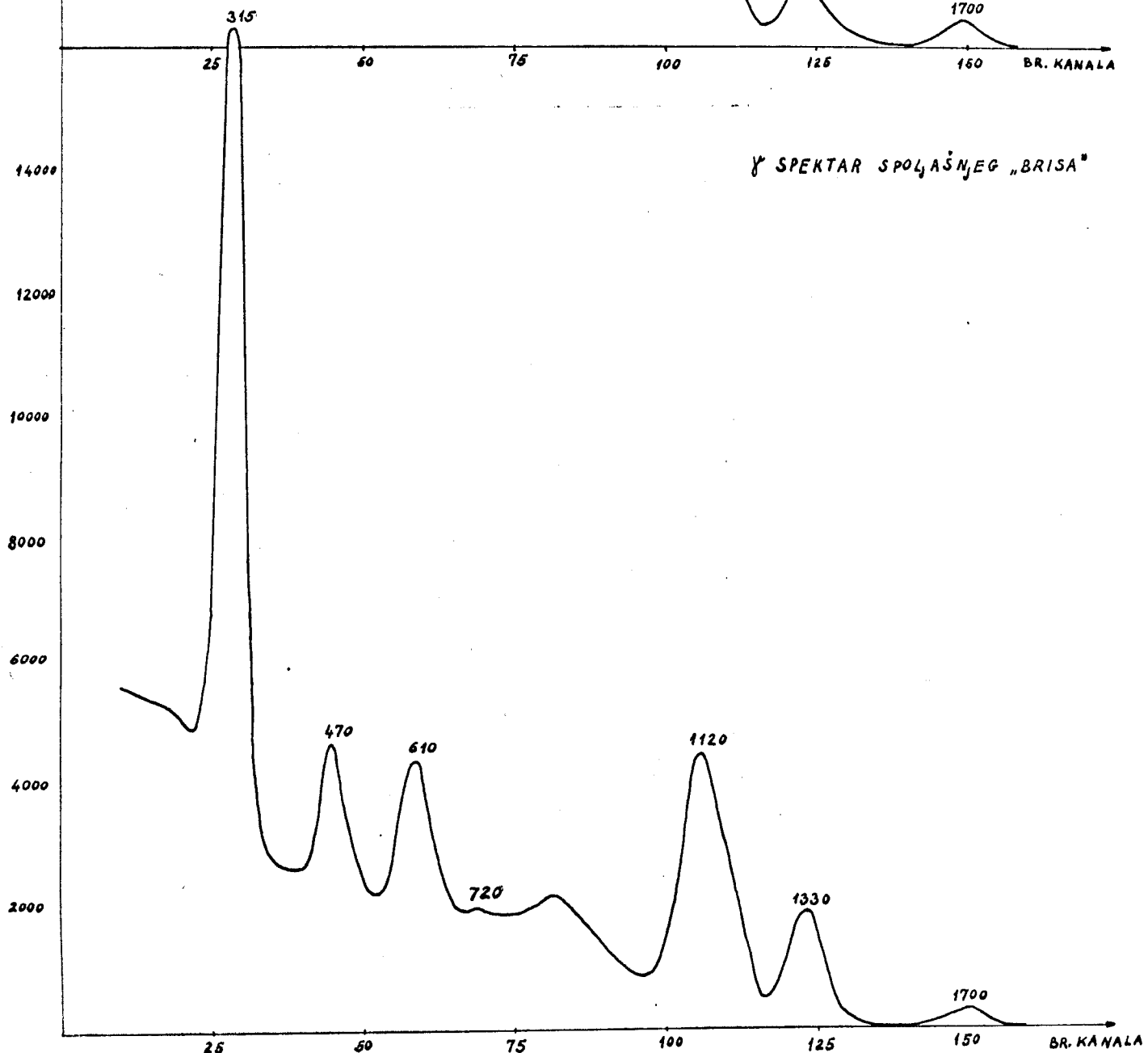
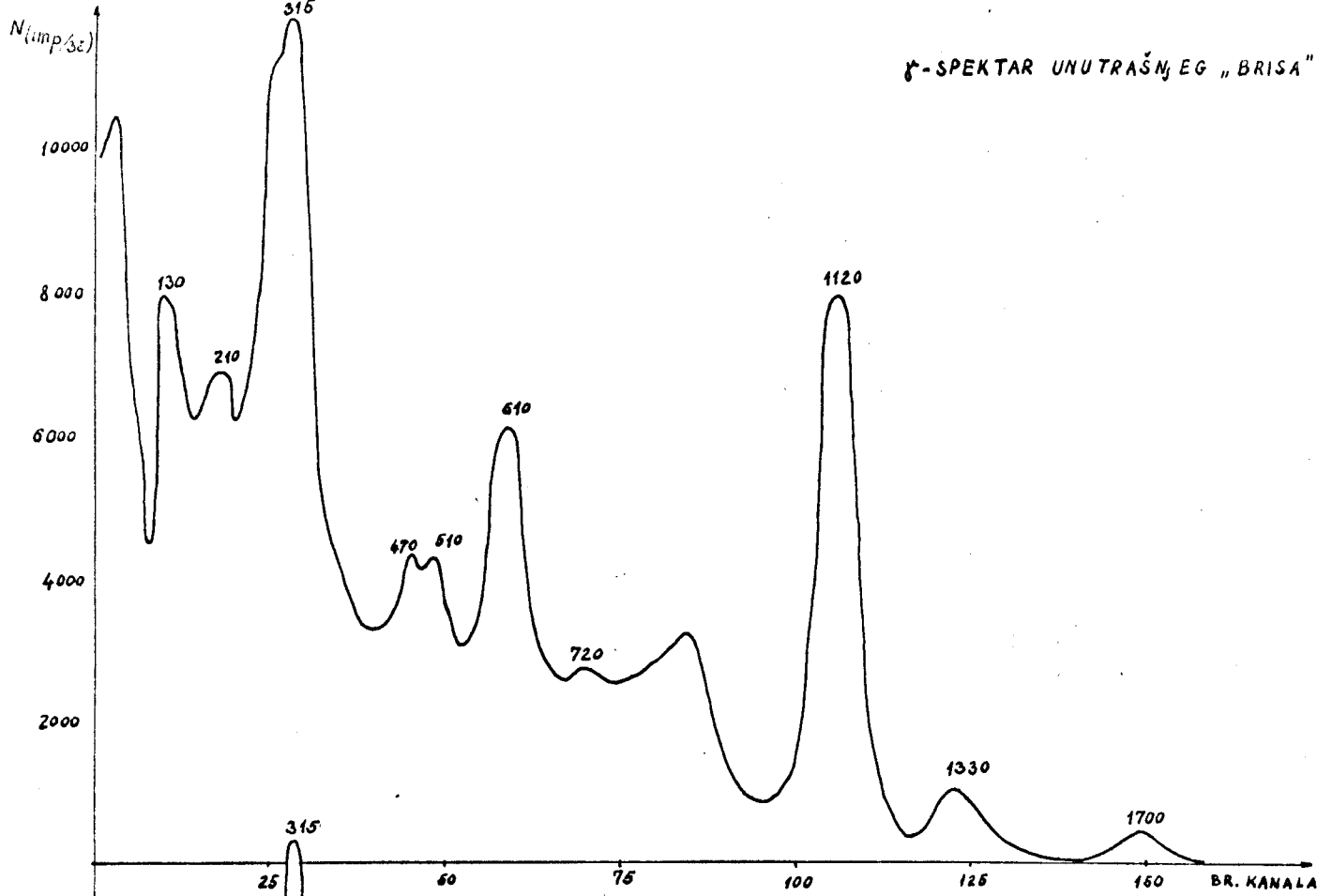
pomoću spektara snimljenih na scintilacionom spektrometru, koji je prethodno kalibrisan pomoću izvora Ir^{192} i Bi^{207} . Podela energetske skale je iznosila 10 KeV-a po kanalu, za niže energije i oko 15-20 KeV-a po kanalu za više energije, zbog odstupanja od linearnosti. Usled toga i energije "peak-ova" nisu mogle biti određene sa većom tačnošću.

3.1. KVALITATIVNA ANALIZA RASTVORA KOJIM JE VRŠENA DEKONTAMINACIJA. Spektar unutrašnjeg "brisa" snimljen dva dana



γ-SPEKTAR SPOLJAŠNJEG „BRISA“

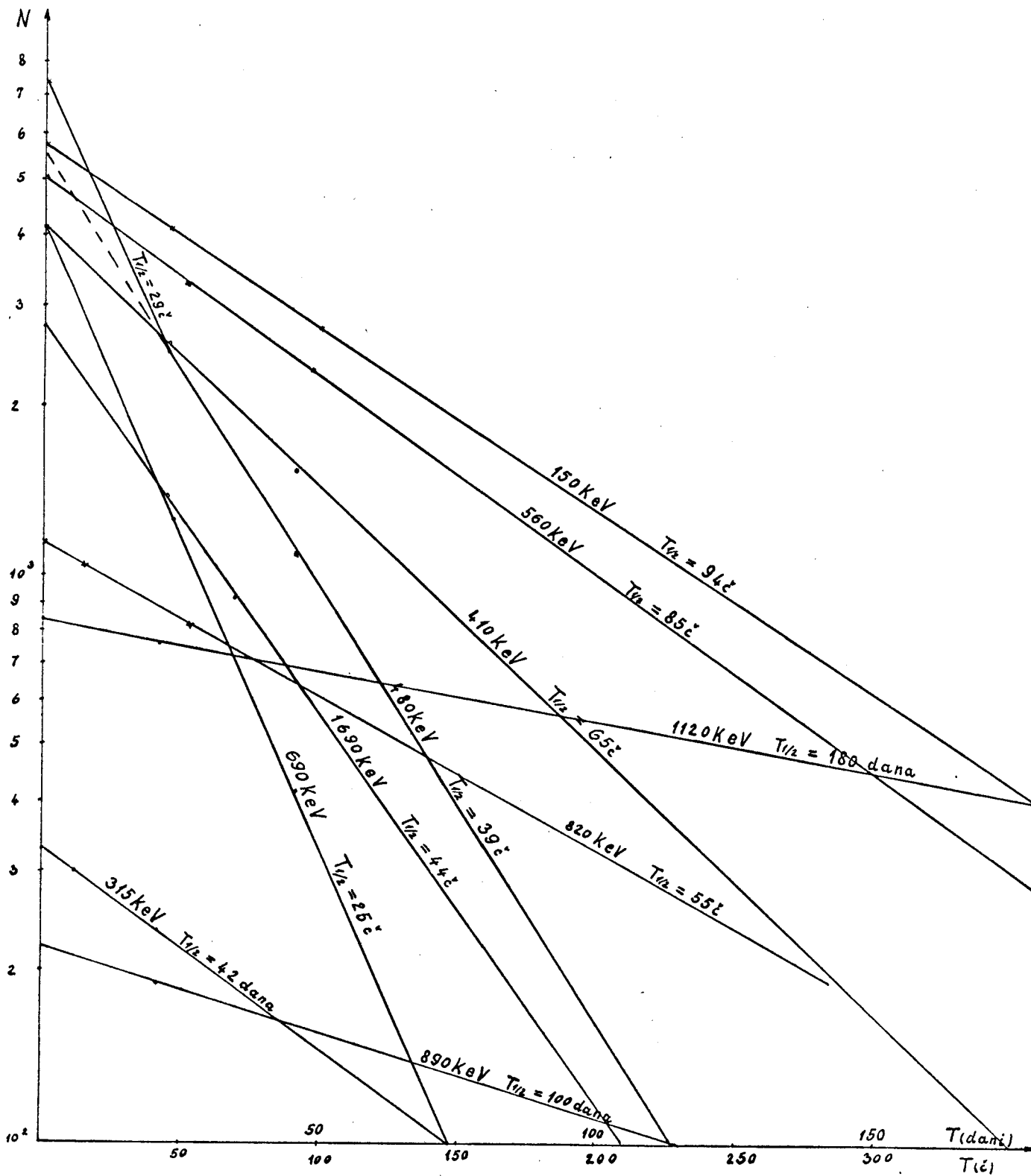




sadrži i liniju volframa W^{187} od 480 KeV-a. Volfram ima poluživot 24 časa i linije od 134,480,550,619,686,774 i 866 KeV-a. Poslednje dve linije su slabog intenziteta te se u spektru ne zapažaju. Linije od 550 i 619 KeV-a nalaze se pod "peak-om" na 560 KeV-a, a linija od 134 KeV-a je pod "peak-om" na oko 150 KeV-a. Intenzitet "peak-a" od 560 KeV-a najvećim delom potiče od linije izotopa antimona Sb^{122} čija je najintenzivnija linija energije 561 KeV-, a slabijeg intenziteta linija od 684 KeV- a i još slabijeg linije od 1130 i 1240 KeV-a, koje se ne mogu zapažati u spektru. Praćenje promene intenziteta "peak-ova" na 480 i 560 KeV-a nije bilo pogodno na spektru unutrašnjeg "brisa", ali je bilo moguće na spektru spoljašnjeg "brisa" sl.9, koji sadrži "peak-ove" na istim energijama, ali ima relativno manje La^{140} , pa su linije na 480 i 560 KeV-a bolje razložene. Vrednost poluživota dobijena za liniju od 480 KeV-a iznosila je 29 časova, a za kasnija merenja 39 časova, dok je za liniju od 560 KeV-a dobijena vrednost poluživota iznosila približno 85 časova. Ove vrednosti se približno slažu sa datim vrednostima za poluživote W^{187} (24 časa) i Sb^{122} (2,8 dana). Praćenje promene intenziteta linija od 690 KeV-a u spektrima oba "brisa" dobijene su vrednosti za poluživot 25 i 29 časova, što potvrđuje da u oba "brisa" ima volframa.

Linija na oko 410 KeV-a pripisana je izotopu zlata Au^{198} , a praćenjem promene intenziteta dobijen je poluživot od 65 časova, što se slaže sa poluživotom zlata od 64,8 časova i energijom gama kvanta od 412 KeV-a. Pošto zlato ima veliki presek za zahvat termalnih neutrona, moguće je da se formira dovoljna količina izotopa Au^{198} , koji zahvatom jednog neutrona prelazi u novi radioizotop zlata Au^{199} . Ovaj izotop ima poluživot 3,2 dana i linije energije 158 i 208 KeV-a. Ove linije postoje u spektru i pripisane su ovom izotopu. Spektar spoljašnjeg "brisa" sadrži takođe sve napred spomenute linije, a to znači i iste izotope.

Spektri oba "brisa" snimljeni posle 34 dana od početka merenja dati su na sl.10. Za "peak-ove" od 315,470 i 610 KeV-a pretpostavljeno je da odgovaraju linijama izotopa iridijuma Ir^{192} , koji ima poluživot 72 dana i linije energije 310,470 i 610 KeV-a.



Sl.11

Promene intenziteta linija u funkciji vremena

Pošto "peak" na 315 KeV-a ima relativno veći intenzitet (u odnosu na "peak" na 470 KeV-a), nego što je to slučaj kod iridijuma i s obzirom da se njegov maksimum nalazi na 315 KeV-a, pretpostavljeno je da on sadrži i liniju monoenergetskog radioizotopa hroma, Cr^{51} od 320 KeV-a. Praćenjem promene intenziteta ovog "peak-a" u funkciji vremena, dobijena je vrednost za poluživot 42 dana. Pošto Ir^{192} ima poluživot 72 dana, a Cr^{51} 27,8 dana, a grubom procenom je nađeno da podjednako doprinose datom "peak-u", ova vrednost je u zadovoljavajućoj saglasnosti sa učinjenom pretpostavkom.

"Peak" od 610 KeV-a ima, takođe, relativno veći intenzitet nego što je to slučaj kod čistog Ir^{192} . To je naročito izraženo u spektru unutrašnjeg "brisa". S obzirom na "peak-ove" na oko 1700 i 720 KeV-a, pretpostavljeno je da ovaj "peak" na 610 KeV-a sadrži i liniju izotopa antimona Sb^{124} od 603 KeV-a. Ovaj izotop ima poluživot 60 dana i linije energije 603,722 i 1690 KeV-a.

Za liniju od oko 290 KeV-a, u spektru unutrašnjeg "brisa" i liniju na oko 360 KeV-a, koja odgovara deformaciji desne strane "peak-a" na 315 KeV-a, nije moglo biti utvrđeno kojem izotopu, ili izotopima pripadaju.

"peak" na 1330 KeV-a odgovara višoj energiji zračenja Co^{60} , dok se druga linija od 1170 KeV-a nalazi pod "peak-om" na energiji od oko 1120 KeV-a. Oduzimanjem normiranog spektra Co^{60} pojavila se jedna linija slabog intenziteta na oko 1290 KeV-a, za koju je pretpostavljeno da pripada izotopu gvožđa Fe^{59} i odgovara njegovoj liniji od 1292 KeV-a. Druga linija gvožđa od 1100 KeV-a nalazi se pod "peak-om" od 1120 KeV-a. Ovaj "peak" odgovara višoj energiji skandijuma od 1120 KeV-a, koji ima i liniju od 889 KeV-a. Obe linije su podjednakog intenziteta, što u našem spektru nije slučaj. Zbog toga se pretpostavilo, da ovaj "peak" na 1120 KeV-a sadrži i liniju cinka od 1115 KeV-a. Cink se delimično raspada emisijom pozitrona, te usled apsorpcije anihilacionih gama kvantata pri anihilaciji pozitrona u spektru cinka se javlja linija od 511 KeV-a. Ovoj liniji u našem spektru odgovara "peak" na oko 510 KeV-a. Praćenjem promene intenziteta

"peak-a" na 890 KeV-a dobijena je vrednost za poluživot od 100 dana, što je najbliže vrednosti poluživota skandijuma Sc^{46} od 85 dana. Praćenjem promene intenziteta "peak-a" na 1120 KeV-a, (unutrašnji "bris") dobijen je poluživot od 180 dana. Ova vrednost je najbliža poluživotu cinka, koji iznosi 245 dana, dok kobalt koji ima poluživot od 1920 dana neznatno utiče na ukupnu promenu intenziteta ovog "peak-a" pošto ga ima najmanje. Oduzimanjem kobalta u spoljašnjem "brisu", takođe se pojavljuje linija gvožđa 1290 KeV-a, koja je u ovom slučaju izražajnije, ali oduzimanjem cinka pojavljuje se samo druga linija gvožđa na oko 1100 KeV-a, dok linija koje bi odgovarale skandijumu nema.

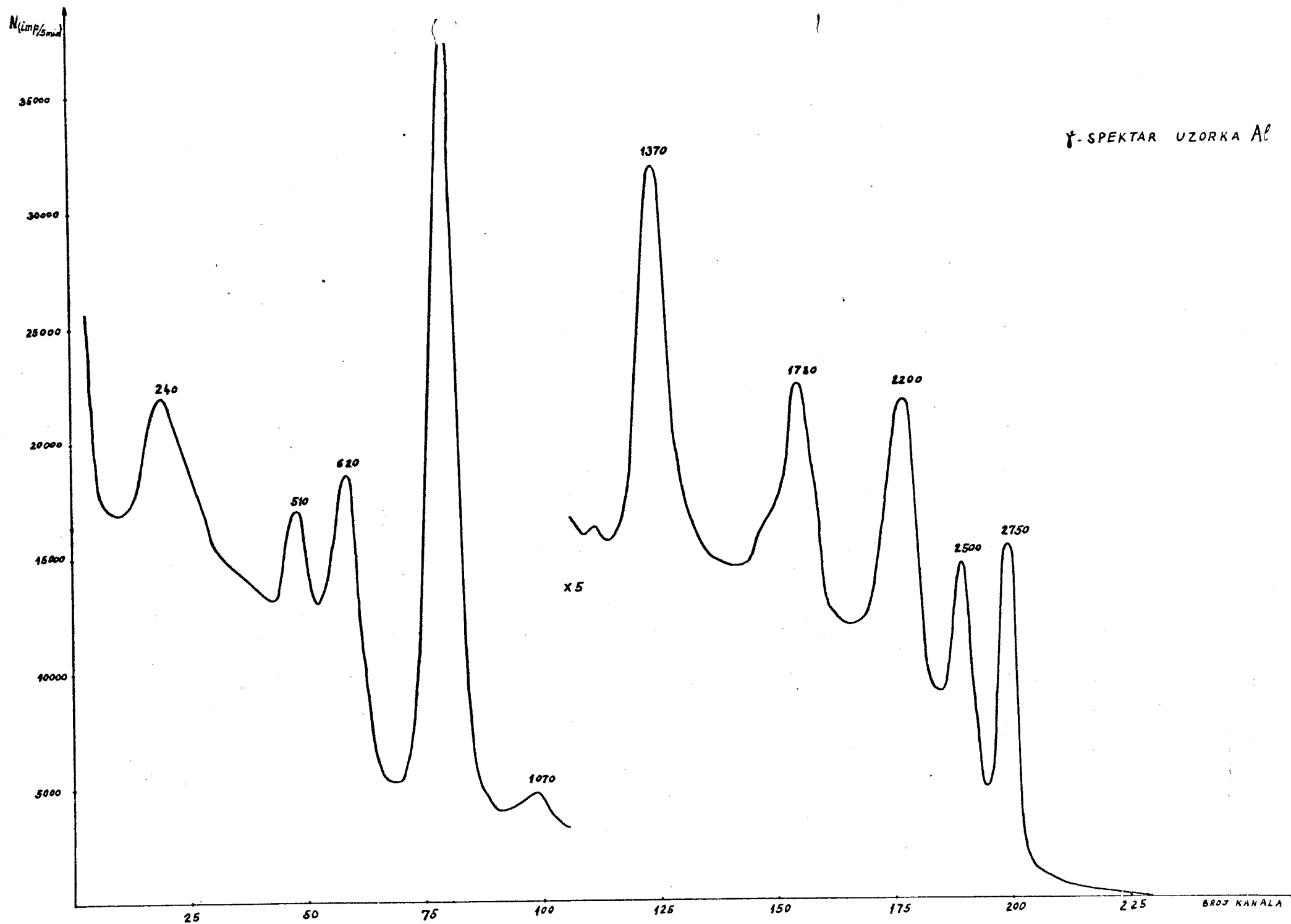
"Brisevi" dakle sadrže sledeće izotope: Natrijum Na^{24} , zlato Au^{198} i Au^{199} , volfram W^{187} , antimon Sb^{122} i Sb^{124} , lantan La^{140} , kobalt Co^{60} , skandijum Sc^{46} , cink Zn^{65} , iridijum Ir^{192} , hrom Cr^{51} i gvožđe Fe^{59} . Spoljašnji "bris" ne sadrži skandijum i one neidentifikovane linije. Relativne količine pojedinih elemenata u "brisevima" se razlikuju.

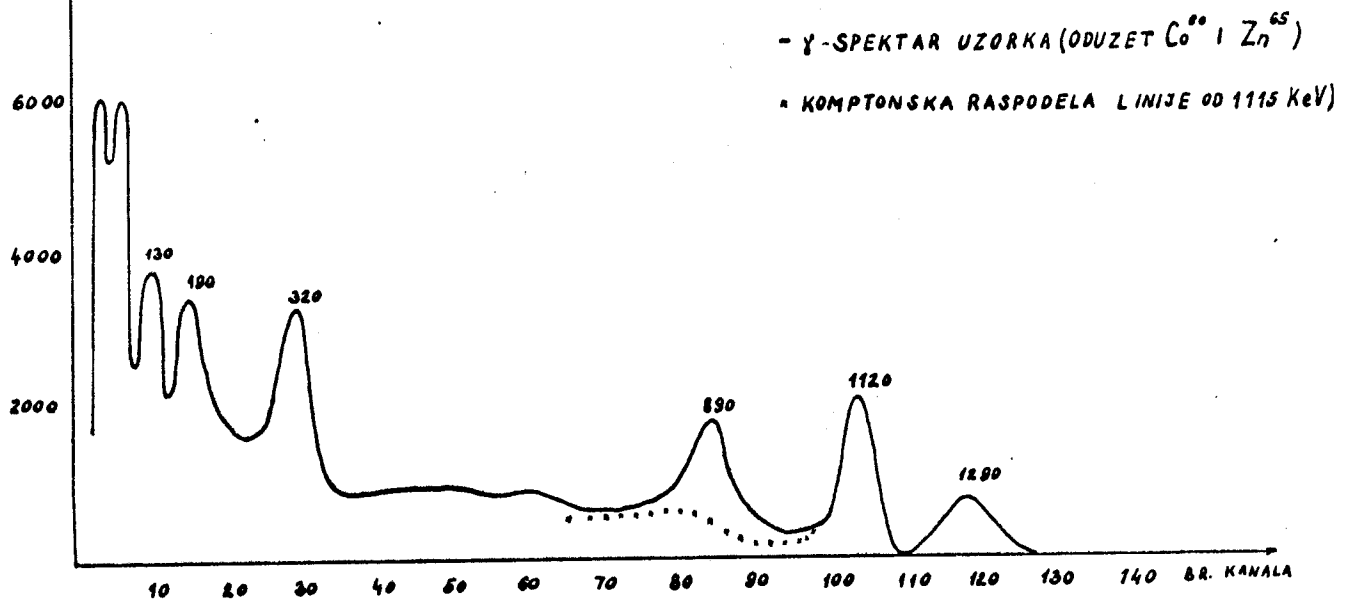
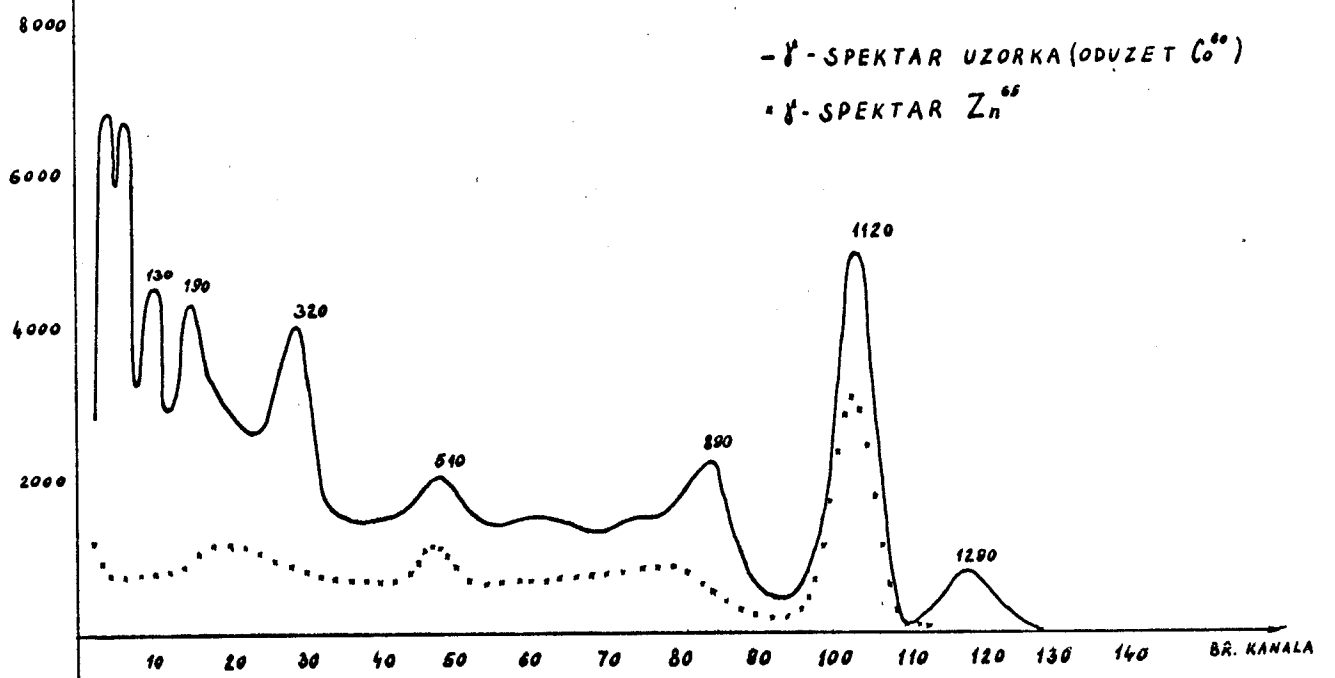
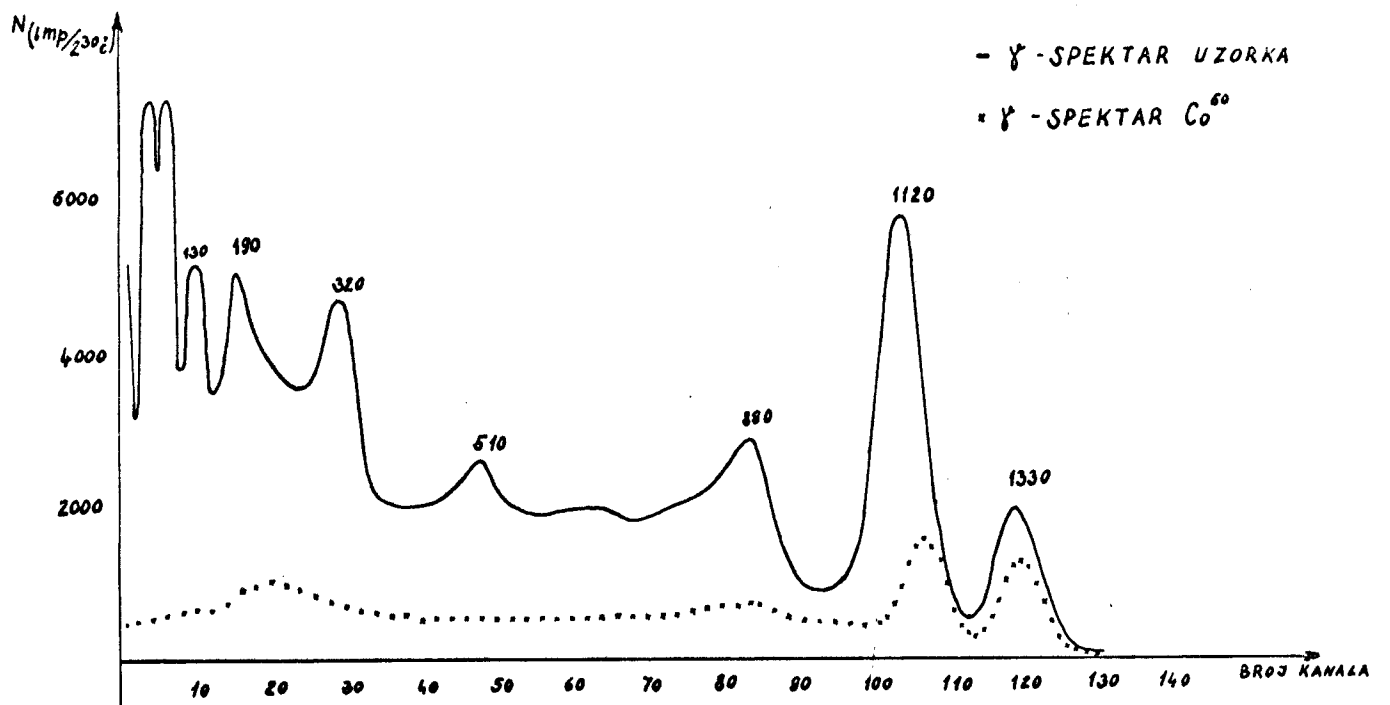
3.2. ANALIZA ALUMINIJUMA. Sa neozračivanog "kenera" uzeta su tri primerka aluminijuma: sa poklopca (uzorak A), sa navoja poklopca (uzorak B) i sa tela i dna "kenera" (uzorak C) sl. 7. Ovo je učinjeno zato, da bi se proverila homogenost sastava materijala od koga je izrađen "kener". Ovi uzorci su istovremeno ozračivani 3,99 dana u istom fluksu neutrona. Pošto je korišćen metod apsolutnih merenja, istovremeno sa uzorcima aluminijuma ozračivano je i zlato, čiji rastvor je poslužio kao "monitor" za određivanje vrednosti fluksa neutrona. Posle ozračivanja određena je aktivnost rastvora izotopa zlata Au^{198} prema intenzitetu linije od 412 KeV-a. Dobijena vrednost je svedena na vrednost aktivnosti u momentu vađenja iz reaktora. Masa zlata je bila poznata pa je iz obrasca

$$\phi = \frac{A_{pot} M}{9602 \theta \sigma_d m (1 - e^{-\lambda T})}$$

izračunata vrednost fluksa. Nađeno je da ona iznosi $(0,776 \pm 0,0142) \times 10^{13}$ neutrona/sec cm^2 . Greška pri određivanju fluksa potiče od greške pri određivanju aktivnosti (t.j. površine pod linijom) i greške s kojom je poznat presek za aktivaciju zlata.

γ-SPEKTAR UZORKA Al



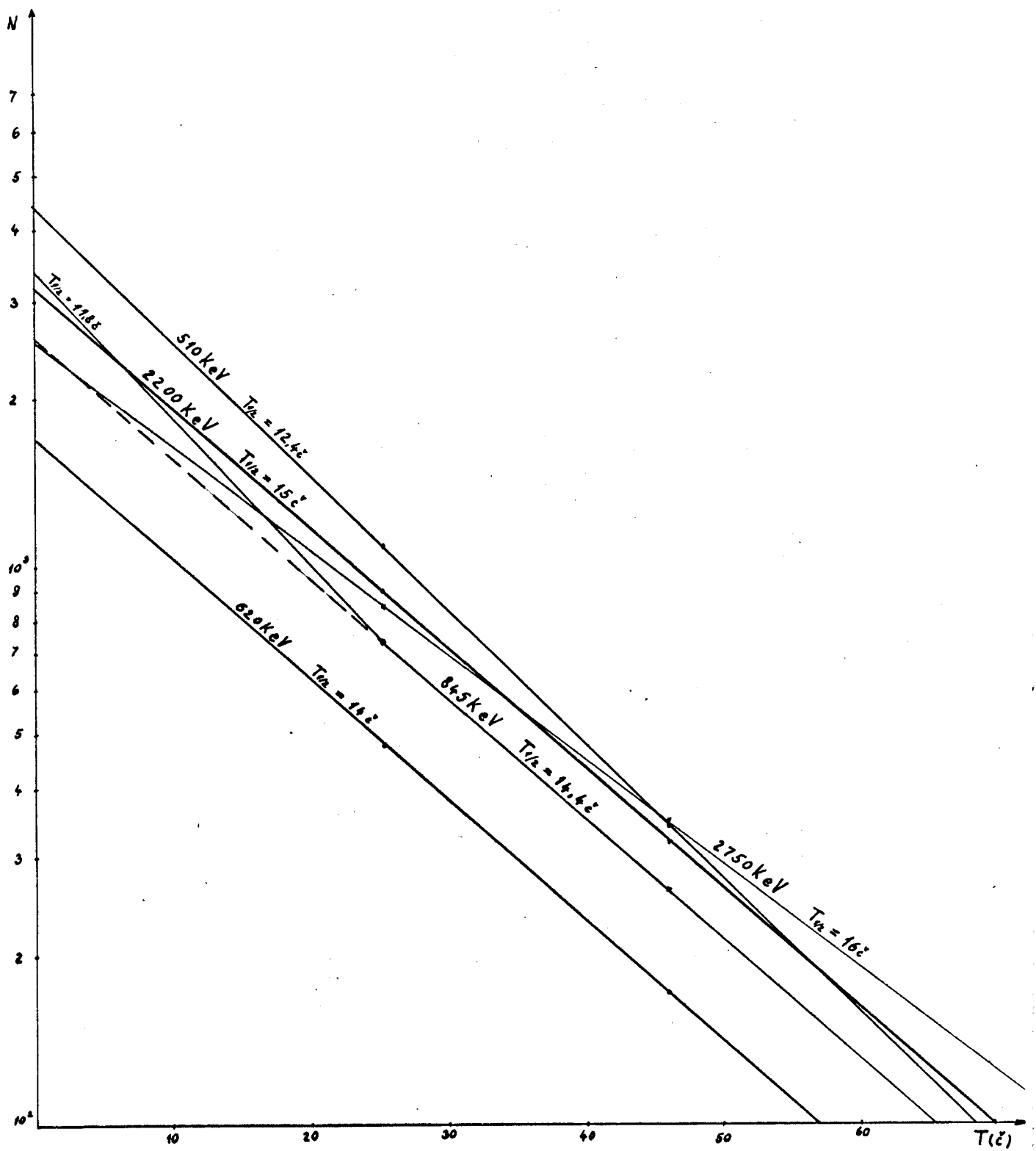


Pokazalo se da sva tri uzorka aluminijuma imaju identične spektre, te će biti izložena kvalitativna analiza samo jednog od njih.

Spektar snimljen 4 časa posle vađenja iz reaktora dat je na sl. 12. Praćenjem promene njenog intenziteta u funkciji vremena, dobijena je vrednost za poluživot 11,8 časova za prva merenja i 14,4 časa za kasnija merenja. Ova druga vrednost najpribližnija je periodu poluraspada izotopa galijuma Ga^{72} od 14,1 čas. Ovaj izotop ima više linija od kojih su najintenzivnije sledeće: 630, 835, 2201, 2500 KeV-a. Sve ove linije postoje u spektru, a vrednosti poluživota dobijene praćenjem promena njihovih intenziteta slažu se sa datom vrednosti poluživota Ga^{72} . Ovi podaci potvrđuju da uzorak sadrži galijum. Međutim, relativni intenzitet "peak-a" na oko 840 KeV-a, u odnosu na ostale linije galijuma, je suviše velik, pa se pretpostavlja da taj "peak" sadrži i liniju mangana Mn^{56} od 847 KeV-a. Mangan ima kratak poluživot, 2,57 časova i još dve linije slabijeg intenziteta od 1811 i 2110 KeV-a. Ove linije se u našem spektru ne vide jasno, jer se superponiraju sa drugim linijama bliskih energija. Na primer "peak" na 1780 KeV-a verovatno predstavlja superpoziciju natrijumovog "peak-a" od 1730 KeV-a (koji nastaje kao posledica procesa apsorpcije natrijumovog gama kvanta energije 2754 KeV-a putem par-efekta, kada oba anihilaciona gama kvanta napuste kristal) i linije mangana od 1811 KeV-a. Linija od 2110 KeV-a verovatno se nalazi pod "peak-om" na 2200 KeV-a. Zbog toga i zbog promene brzine opadanja intenziteta "peak-a" na 840 KeV-a, smatra se da uzorak sadrži i mangan.

Linija od 2750 i 1370 KeV-a pripadaju natrijumu Na^{24} .

Linija od 510 KeV-a pripisana je izotopu bakra Cu^{64} , koji se raspada emisijom pozitrona pri čemu dolazi do emisije gama kvanta od 1340 KeV-a. Intenzitet ove linije je neznatan, ali linija koja nastaje apsorpcijom anihilacionih gama kvanta, pri anihilaciji pozitrona, ima znatan intenzitet. Poluživot bakra je 12,8 časova, a praćenjem promene intenziteta linije od 510 KeV-a dobijena je vrednost za poluživot od 12,4 časa, što potvrđuje pretpostavku da ova linija pripada bakru.



Sl.14

Promene intenziteta linija u funkciji vremena

Široki "peak" čiji maksimum je na oko 240 KeV-a sa-
drži možda i neku liniju, ali se ona ne može uočiti zbog pri-
sustva parazitnog zračenja, koje nastaje rasejanjem gama kvana-
ta na okolini. To je moglo biti učinjeno tek kasnije kada su se
kratkoživuci izotopi raspali.

19. dana posle vađenja iz reaktora, spektar je izgledao
kao na sl. 13a. Odmah se zapaža linija kobalta od 1330 KeV-a i
"peak" na oko 1120 KeV-a, koji prema ranijem iskustvu verovatno
sadrži nekoliko linija. Zbog prisustva "peak-a" na 510 KeV-a za-
ključuje se da ima cinka, a "peak" na 890 KeV-a sugerira prisustvo
skandijuma. Oduzimanjem normiranog spektra kobalta sl. 13d dobi-
jena je nova linija na oko 1290 KeV-a, koja pripada gvožđu Fe^{59} .
Gvožđu pripada i linija na 190 KeV-a, čiji intenzitet je uvećan
zbog prisustva parazitnog zračenja čija energija se kreće oko
200 KeV-a. I ostale linije na niskim energijama potiču od raznih
parazitnih zračenja.

Linija od 320 KeV-a pripada izotopu hroma Cr^{51} .

Uzorci aluminijuma, dakle sadrže sledeće elemente:
mangan, bakar, galijum, natrijum, kobalt, gvožđe, cink, skandijum i hrom.

Za kvantitativnu analizu ovih elemenata bilo je pot-
rebno odrediti intenzitet bar jedne linije, da bi se moglo izra-
čunati aktivnost prema obrascu

$$A = \frac{N_p f}{n_i \epsilon_p \Omega}, \quad A_{poc} = A e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}}$$

a zatim masa izotopa prema obrascu

$$m = \frac{M A_{poc}}{0,602 \theta \epsilon_a \phi \left(1 - e^{-0,693 \frac{t}{T_{1/2}}} \right)}$$

Mangan nije mogao biti kvantitativno određen, jer je jedina njegova
intenzivna linija bila superponirana sa linijom galijuma. Iz istih
razloga ni linija galijuma od 835 KeV-a nije mogla biti korišće-
na, a zbog nemogućnosti procene njene Komptonove raspodele ni po-
vršina linije od 630 KeV-a nije mogla da se odredi. Aktivnost ga-
lijuma je određena na osnovu intenziteta linija od 2200 i 2500
KeV-a. Komptonova raspodela natrijumove linije od 2754 KeV-a, nap
kojoj leži "peak" od 2500 KeV-a, kao i Komptonova raspodela same
linije od 2500 KeV-a, na kojoj leži linija od 2200 KeV-a, procenje-
na je normiranjem natrijumove linije i njene Komptonove raspodele

TABELA III

ELEMENT	Radio- aktivni izotop	Vreme poluraspada	Aktivnost C/gr u momentu vadenja iz reaktora	Broj /ugr elementa po 1 gr Al	Uzorak A	Uzorak B	Uzorak C
Galijum	Ga ⁷²	14,1 čas	3,44	56,6 ± 4,92	56,5 ± 4,84	57,3 ± 5,03	
Bakar	Cu ⁶⁴	12,8 čas.	5,92	5,49 ± 1,05	5,88 ± 1,38	5,92 ± 1,67	
Kobalt	Co ⁶⁰	5,27 god.	0,111	2,56 ± 0,149	2,55 ± 0,148	2,49 ± 0,145	
Gvožđe	Fe ⁵⁹	45 dana	0,00362	81,8 ± 19,8	87,8 ± 20,9	85,0 ± 20,5	
Cink	Zn ⁶⁵	245 dana	0,00538	184 ± 37,4	188 ± 37,9	190 ± 38,7	
Skandijum	Sc ⁴⁶	84 dana	2,18	0,0992 ±	0,101 ±	0,0975 ±	
				± 0,00727	± 0,00791	± 0,00768	
Hrom	Cr ⁵¹	27,8 dana	0,168	7,23 ± 0,656	7,10 ± 0,641	6,84 ± 0,621	
Mangan	Mn ⁵⁶	2,57 čas.					
Natrijum	Na ²⁴	15 čas.					

iz spektra spoljašnjeg "brisa".Aktivnost bakra je određena prema intenzitetu linije od 511 KeV-a.Aktivnost kobalta i cinka su određene prema intenzitetu linija od 1330 KeV-a odnosno 1115 KeV-a iz normiranih spektara tih izotopa.Intenzitet skandijumove linije od 890 KeV-a izračunat je posle oduzimanja normiranih spektara kobalta i cinka i Komptonske raspodele linije od 1120 KeV-a sl.13.Aktivnost gvožđa je izračunata pomoću intenziteta linije od 1290 KeV-a,a hroma pomoću intenziteta linije od 320 KeV-a.Rezultati su dati u tabeli III.

4.DISKUSIJA REZULTATA

Rezultati pokazuju da sva tri uzorka aluminiјuma, sadrže jednake (u granicama grešaka) količine primjesa pojedinih izotopa.Količina mangana,kao što je spomenuto,nije se mogla odrediti.Natriјum je kao nečistoća moguć u aluminiјumu, ali on takođe nastaje i prilikom reakcije aluminiјuma i brzih neutrona $Al^{27}(n, \alpha) Na^{24}$.Nije se moglo proceniti kolika je količina natriјuma kao primese,a kolika količina je nastala u pomenutoj reakciji.Zbog toga nije navedena masa natriјuma.U tabeli IV^a date su neke moguće primese u aluminiјumu i osetljivost tri metoda.

TABELA IV

Određene primese	Osetljivost postojećih metoda analiza u %		
	Spektrohemska	Hemska	Radioaktivaciona
Bariјum			1×10^{-4}
Bizmut		5×10^{-5}	1×10^{-8}
Galiјum	5×10^{-6}	5×10^{-5}	1×10^{-8}
Gvožđe	5×10^{-6}	6×10^{-5}	2×10^{-4}
Kadmijum	5×10^{-7}	5×10^{-6}	1×10^{-7}
Mangan	5×10^{-6}	5×10^{-5}	1×10^{-7}
Bakar	5×10^{-6}	1×10^{-5}	5×10^{-8}
Natriјum	5×10^{-4}		5×10^{-6}
Skandijum			1×10^{-6}
Cink	5×10^{-5}	1×10^{-4}	2×10^{-5}
Hrom	8×10^{-4}	1×10^{-5}	1×10^{-5}

Iz tabela II i IV može se videti da je skandijum, koji izgleda često prati aluminijum, teško odrediti drugim metodama sem metodom aktivacione analize i metodom bakarne varnice.

Aluminijum je izabran za izradu "kenera" zbog niza pogodnih osobina: lak je, lako se čisti i može da se izvalja u tanak lim. Poslednja osobina je potrebna zbog toga što je smanjenje fluksa neutrona proporcionalno debljini materijala kroz koji prolazi, a fluks nesme mnogo da se umanji na putu do uzorka koji se ozračuje. Izotop aluminijuma, koji nastaje zahvatom termalnog neutrona, ima vrlo kratak period poluraspada (2,3 min.), što je takođe povoljna osobina. Nečistoće su nepoželjne i u toliko su neprijatnije, u koliko imaju veći presek za aktivaciju termalnim neutronima i duži poluživot. Od količine izotopa i njegovog poluživota, zavisi dužina perioda posle kojeg će se "kener" moći ponovo upotrebiti i da li će se moći uopšte upotrebiti. Zbog toga su od nadenih nečistoća najneprijatniji cink i naročito kobalt.

Što se tiče nečistoća u "brisevima" može se zaključiti da kobalt, cink, hrom, gvožđe, skandijum i natrijum verovatno potiču od aluminijuma, dok ostale nečistoće dolaze iz sredine sa kojom je "kener" bio u dodiru. Zlato, na primer, verovatno potiče iz odelenja za prepakivanje, jer se ono vrlo često pakuje sa uzorcima da bi poslužilo kao "monitor" za određivanje fluksa neutrona.

Navedene vrednosti grešaka obuhvataju greške pri procenjivanju površine linija, greške sa kojima su poznati aktivacioni preseki i grešku načinjenu pri određivanju fluksa neutrona. Nije uzeta u obzir greška nastala zbog uzimanja teorijskih vrednosti za fotoefikasnost, greška pri određivanju prostornog ugla i greška sa kojom je određen doprinos gama zračenja date energije u procesu raspada datog izotopa (n_1).

L I T E R A T U R A

1. E.I. Stoljarova: "Prikladnaja spektrometrija jonizirujuščih izlučenii" pod redakcij T.D. Latiševa, Moskva 1964, I deo glava IV, II deo glava II i III.
2. P.B. Bell: "The Scintillation Method-Beta and Gamma-ray Spectroscopy", edited by K. Siegbahn, 1955 god.
3. William B. Mott and Roger B. Sutton: "Scintillation an Čerenkov Counters-Nuclear Instrumentation II", editor S. Flugge and coeditor E. Creutz, Berlin 1958 god.
4. R.L. Heath: "Scintillation Spectrometry", Atomic Energy Commission 1964 god.
5. V.I. Kolašnikova i M.S. Kozodaev: "Detektori elementarnih častic" Moskva 1966 god.
6. Marija Radojević: "Neutronska aktivaciona analiza aluminijuma" magistarski rad, Beograd 1963 god.
7. Jelena V. Milanović: "Utica j efekta sabiranja na merenja gama-gama direkcionih korelacija", magistarski rad, Beograd 1967 g.
8. K.A. Petržak i M.A. Bak: "Opredelenii doli izlučenija popadajuščei na krugluj u mišenj ot kruglovo istočnika", Žurnal tehničkoj fiziki Tom XXV br.4 1955 god.
9. C.M. Lederer, J.M. Hollander and I. Perlman: "Table of Isotopes", Sixth Edition, 1967 god.
10. "Vozmušćenie uglovie koreljacii", priloženie 4.
11. W.W. Meinke: "Trace Analysis", edited by J.H. Yoe and H.J. Koch, 1957 g. glava XXIII.
12. Akademi ja Nauk SSSR: "Metodi opredeljenija i analiza redkih elementov", Moskva 1961 g.