

VÍZMINTA RADIOAKTIVITÁSÁNAK MEGHATÁROZÁSA

Mérésleírás

Többnyire fizikus MSc-eknek és felsőbbéves mérnök-fizikusoknak

Zagyvai Péter – Osváth Szabolcs – Bódizs Dénes
BME NTI, 2010

1. Bevezetés

Kérjük, hogy – amennyiben szükséges – a radioaktivitás és a dózisszámítás alapfogalmait ismételjék át!

A természetes vizekben, így a Dunában is jelenlévő radioaktivitás oka a vízzel érintkező anyagokból kioldott természetes eredetű radioaktív izotópok jelenléte, valamint a levegőből a vízbe hulló aeroszolrészecskékhez kötött, leginkább szintén természetes eredetű radioizotópok. Legnagyobb koncentrációban a ^{40}K és a természetes urán és tórium bomlási sorába tartozó radionuklidok megjelenése várható.

Emellett esetenként mesterséges eredetű szennyezés is kimutatható lehet, egyrészt a légköri atomrobbantások, másrészt az 1986-os csernobili atomerőmű-baleset következtében. (Pl. ez utóbbi miatt a Duna vízének radioaktív koncentrációja időlegesen két nagyságrenddel nőtt meg.) Ehhez járul még számos kisebb, folyamatosan ismétlődő kibocsátás, például kórházi szennyvizek.

Az ivóvízfogyasztás és a mezőgazdasági öntözés révén a vízben található radioaktív izotópok az emberi szervezetbe is bekerülhetnek, így a nem radioaktív szennyezések mennyiségének ellenőrzése mellett az emberi fogyasztással kapcsolatban lévő vízmennyiségek radioaktivitásának megállapítása is lényeges.

A vízminta radioaktivitásának meghatározása során először elegendő mennyiségű mintát kell venni a vizsgálandó közegből. A minta mennyiségének megválasztásánál igen fontos, hogy a várhatóan igen kis aktivitáskoncentrációjú radioaktív anyagok mennyisége elérje a mérésre érvényes kimutatási érzékenységet. Nagy térfogatú minták esetében az előnyös mérési határfok eléréséhez szükséges lehet a minta térfogatának csökkentése anélkül, hogy annak radioaktivitása számottevően csökkenne. A dúsítási eljárások alkalmazása után előálló mérőminta alfa-, béta- és gammasugárzó nuklidokat egyaránt tartalmazhat.

Az alfasugárzás mérése általában csak nagymértékben dúsított, kicsiny mintákból, hosszadalmas mintaelőkészítés után oldható meg jó hatásfokkal. A gammasugárzás mérésének fő problémája az alacsony detektálási határfok, melynek oka a gammasugárzás gyenge abszorpciós képessége. Mivel a legtöbb környezeti és számos, sugárvédelmi szempontból fontos mesterséges eredetű radionuklid béta-sugárzó, ezért a minták gyors, rutinszerű vizsgálata a béta-sugárzás mérésével végezhető el. E megoldásnál hátrányos, hogy a mérés nem lehet izotópspecifikus, így a mért összesbéta-intenzitásból csak a béta-sugárzók mennyiségére jellemző összesbéta-aktivitás és -aktiváskoncentráció határozható meg.

Ellenőrzések során első vizsgálatként a mintából származó összesbéta-intenzitást szokás megmérni. Amennyiben a vizsgált vízminta aktivitásának értéke ezt indokolja, akkor γ -spektrométer segítségével határozható meg a szennyező izotópok minősége és mennyisége.

2. Az elvégzendő feladat

A gyakorlat során egy vízminta radioaktivitását kell meghatározni. A feladat mintavételből, dúsításból, mintaelőkészítésből, kalibrációval előkészített mérésből és az eredmények kiértékeléséből áll.

3. Radioaktív anyagok dúsítása csapadékleválasztással

A vízben oldott radioaktív anyagok dúsításának egyik lehetséges módja a bepárlás. Ennek során a mintát kémiletesen forraljuk, majd infralámpa alatt beszárítjuk. A gyakorlaton nem ezt alkalmazzuk, hanem a Dannecker, Kiefer és Maushart által közölt eljárást, melyet kimondottan sugárvédelmi ellenőrzések céljaira alakítottak ki. Mielőtt azonban hozzákezdenénk a munkához, a gyakorlatvezető segítségével ismerkedjünk meg a pipettákkal!

A digitális pipettára használat előtt rá kell húznunk a pipettahegyet. Minden pipettára csak a neki megfelelő térfogatú hegy húzható fel, de azt már nekünk kell ellenőriznünk, hogy a pipettázandó vegyszerhez használandó hegyet válasszuk ki! (Minden hegy oldalára rá szokás írni annak a vegyszernek a képletét, amit avval a hegygel pipettáznak.) A pipettázandó térfogatot a pipetta nyomógombjának forgatásával állíthatjuk be. A pipetta nyomógombjának lassú benyomásakor érezzük, hogy egyszer csak némi ellenállásba ütközünk (nevezzük ezt „középállás”-nak!), és a gombot erősebben megnyomva jutunk el a végállásig. A pipetta oldalán kijelzett érték a beállított térfogat a teljesen kiengedett gomb és a „középállás” közti térfogat. Ezért felszívás előtt csak a középállásig nyomjuk be a gombot, szívjuk fel a folyadékot, fújjuk ki középállásig, és a hegy végében maradt cseppel fújjuk ki a gomb erőteljes (végállásig történő) lenyomásával!

Pasteur-pipetta használata esetén a felszívott folyadék térfogatát az szabja meg, hogy mennyire nyomtuk össze előzőleg a pipetta felső végén a „labdát”.

A minta készítése a következő sorrendben történik:

- * A vizsgált vízből vegyünk egy 200 cm^3 mintát és öntsük egy 500 cm^3 térfogatú főzőpohárba!
- * Hordozóként (abból a célból, hogy a tervezett kémiai műveletek a radioaktív anyagokkal is végbemenjenek) adjunk a mintához $1,5\text{ cm}^3$ $0,1\text{ M CaCl}_2$ oldatot! [Ha a vegyszerekből nem áll rendelkezésre megfelelő töménységű, akkor ügyeljünk arra, hogy a töményebből arányosan kevesebbet, a hígabból arányosan többet vegyünk!]
- * Adagoljunk a mintánkhöz $2,5\text{ cm}^3$ $0,1\text{ M FeCl}_3$ oldatot! A folyadékot jól keverjük meg!
- * Töltsünk az oldathoz néhány csepp fenolftaleint, majd $0,1\text{ M NaOH}$ oldattal a minta pH értékét $10,5$ -re állítsuk be! Ennél a műveletnél a NaOH oldatot addig adagoljuk, míg az indikátor vörös színbe csap át. Ezután az adagolást már óvatosan végezzük, s a pH értéket állandóan univerzális indikátorpapírral ellenőrizzük. $10,5$ -es pH értéknél a NaOH adagolását abba hagyjuk.
- * Az átlúgosított oldathoz $1,5\text{ cm}^3$ $0,1\text{ M Na}_3\text{PO}_4$ oldatot keverünk, állandó kevergetés mellett. A gyorsabb kicsapódás elősegítése céljából a mintát kissé melegítjük.
- * Néhány perc elteltével a vízmintából kicsapódott anyag a főzőpohár aljára ülepedik. Ekkor egy Büchner-tölcsérbe szűrőpapírt helyezünk, és a folyadékot megsűrjük. A főzőpohár alján maradt csapadékot desztillált víz segítségével visszük a szűrőre.
- * A szűrőpapírt a csapadékkal összehajtogatjuk, és porcelántégelybe helyezük. A csapadékot szűrőpapírt infralámpával megszárazítjuk.
- * A porcelántégelyt izzítókemencébe helyezzük és 600°C hőmérsékleten elhamvasztjuk.

- * A mintát lehűlés után 20 mm átmérőjű alumínium tálkába töltjük át, a hamut a tálkában hígított körömlakk segítségével rögzítjük. A mintát infralámpa alatt kiszárítjuk.
 - * A kiszárított minta tömegét analitikai mérlegemmel lemérjük. [A mérleg használatának és a nóniuszskála leolvasásának módját a gyakorlaton ismertetjük.] Az alumínium tálka tömegét már korábban meg kell mérni. A minta tömegére később szükségünk lesz.
- Ezzel az eljárással a minta készen áll az aktivitás meghatározására. A leírt dúsítási eljárás különböző radioaktív izotópokra eltérő kitermelési hatásokkal (más néven dúsítási hatásokkal, jelölje ε !) rendelkezik.

$$\varepsilon = A_{\text{mért minta}} / A_{\text{eredeti minta}} \quad [1]$$

Az [1] egyenletben $A_{\text{eredeti minta}}$ illetve $A_{\text{mért minta}}$ a dúsítás előtti (eredeti) minta és a dúsítás utáni minta (mérőminta) aktivitása. Aktivitásnak a mintában időegység alatt elbomlott atommagok számát nevezzük. Az aktivitás mértékegysége a Becquerel, melynek jele: Bq. 1 Becquerel aktivitás 1 bomlást jelent másodpercenként, azaz $1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1}$.

Néhány fontosabb izotópra a kitermelési hatásfokot az 1. táblázat tartalmazza:

1. táblázat
A fontosabb radionuklidok kitermelése a csapadékleválasztásos dúsítás során

^{137}Cs	79%	^{204}Tl	98%
^{40}K	15%	^{124}Sb	88%
^{106}Ru	37%	^{141}Ce	99%
^{60}Co	98%	^{32}P	96%
^{131}I	50%	^{192}Ir	40%
^{90}Sr - ^{90}Y	90%		
Urán hasadási termékekre átlagosan			95%
Nedves kihullás (fall-out) radioizotóp-tartalmára			90-100%

A kitermelési hatásfok értékét az aktivitás számítása során korrekciós tényezőként kellene felhasználni. Ehhez tudnunk kellene, milyen radioaktív izotópokat tartalmaz a minta. Ennek meghatározására alapos (és időigényes) radiokémiai analízist kellene végeznünk, amihez nem érdemes hozzákezdeni, amíg egy gyors méréssel (pl. a fentebb ismertetettel) meg nem győződünk arról, hogy a minta jelentős mennyiségű radioizotópot tartalmaz. Esetünkben a csapvízmintát antimonizotóppal nyomjelezték, ezért az erre vonatkozó kitermelést használjuk.

4. Aktivitás meghatározása GM-csővel

A mérőminta β -aktivitásának meghatározását ólomárnyékolással ellátott GM-számlálócsővel végezzük. A GM-cső végablakának vastagsága $1,5 \text{ mg/cm}^2$ -nél kisebb. A későbbi számításokhoz szükség van a mérés (átlagos) számlálási hatásfokának ismeretére, amit a mérőrendszer előzetes kalibrációjával kaphatunk meg.

$$\eta = (I_e - I_H) / A_e \quad [2]$$

Az [2] egyenletben η a számlálási hatásfok, I_e a kalibrációhoz használt etalonnal mért jelintenzitás, I_H a háttér intenzitása, A_e pedig az etalon ismert aktivitása Bq-ben.

Az intenzitás mértékegysége célszerűen jel/s (cps); és azt mutatja meg, hogy egy másodperc alatt hány β -részecskét érzékelt a mérőberendezés. A háttérintenzitás mérésére azért van szükség, mert a detektor a mintatartóból és a mérőberendezés szerkezeti elemeiből érkező β -részecskéket, valamint az árnyékoláson átszűrődő kozmikus fotonsugárzást is érzékeli.

A detektálási vagy számlálási hatásfok (η) azt adja meg, hogy a mintában keletkezett részecskék hányad része ad jelet a detektor elektronikus kimenetén. A detektálási hatásfok általában 4 tényező függvénye:

- a geometriai tényezőt a detektor-minta távolság és a sugárforrás alakja határozzák meg,
- a visszaszórás tényező a detektor környezetében lévő anyagokról, valamint a mintatartó edényről történő visszaszórás eredménye,
- a detektor megszóalási valószínűsége a válaszjelet keltő részecskék aránya a bekerült részecskék számához képest,
- míg az abszorpciós tényező a minta és a detektor közötti elnyelő anyagok hatását jellemzi.

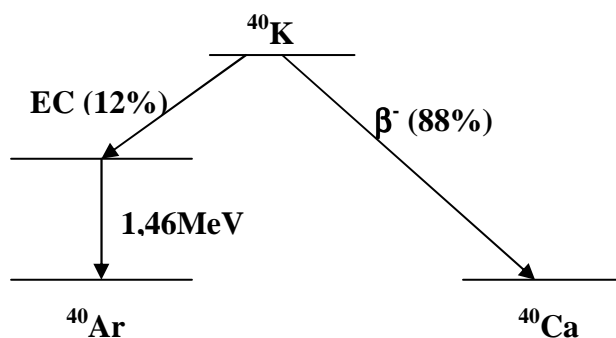
Bétasugárzók mérésénél, amennyiben detektorként végablakos GM-csővet használunk, a detektálási hatásfok csak a geometriai tényezőtől, azaz a detektor és a sugárforrás közötti térszög és a teljes 4π térszög arányától (G), a mintatartó tálka aljáról történő visszaszórás tényezőtől (f_v) és a minta anyagában fellépő önabszorpciós veszteséget kifejező önabszorpciós tényezőtől ($f_{\text{öa}}$) függ:

$$\eta = G * f_v * f_{\text{öa}} \quad [3]$$

A GM-cső megszóalási valószínűsége (belső hatásfoka) bétarészecskére ≈ 1 , ezért ez nem szerepel a fenti kifejezésben.

Sugárvédelmi méréseknél hitelesítési célokra, azaz a berendezés detektálási hatásfokának meghatározásához gyakran használják a ^{40}K izotópot, a minták aktivitását erre az izotópra vonatkoztatva adják meg.

A ^{40}K izotóp bomlási sémája az 1. ábrán látható. Erről leolvasható, hogy a ^{40}K 12% -os valószínűséggel elektronbefogás útján, 88%-os valószínűséggel pedig β^- -emisszióval bomlik. A befogást kísérő gammavonal energiája 1,46 MeV. A ^{40}K izotóp felezési ideje $1,25 * 10^9$ év. A természetes káliumban ezért mindig azonos arányban található ^{40}K izotóp, 1g természetes kálium 0.000118 g ^{40}K izotópot tartalmaz.

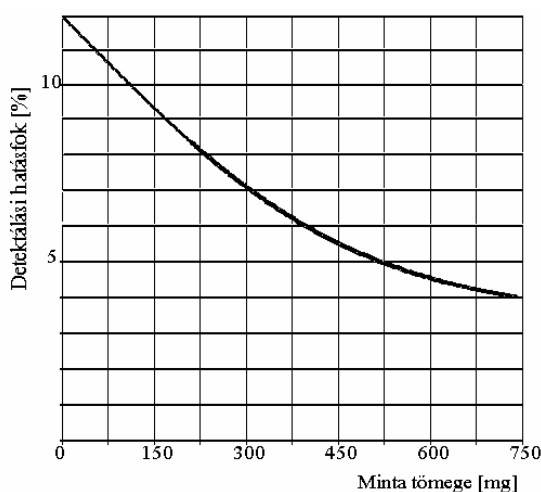


1. ábra
A ^{40}K bomlási sémája

Az eddigiekből kiszámítható, hogy a természetes kálium minden grammja 1680 bétarészecskét bocsát ki percenként. A kibocsátott gammafotonok száma percenként 210.

Kalibrálási célokra általában KCl-t (kálium-kloridot) használunk. 1,91 g KCl tartalmaz 1 g természetes káliumot. Ha a detektorunk végablakos GM-cső, akkor a kalibrálásnál a gammasugárzás alig mérhető, hiszen a GM-csövek megszólalási valószínűsége gammasugárzásra 1-2%, így a gammasugárzástól eredő többletszámlálás a bétakalibrálásnál elhanyagolható.

Kalibrálásnál a mintatartó alumínium tálkákba különböző tömegű KCl adagokat mérünk be. Kiszámítjuk az így keletkezett etalon várható bétaaktivitását, majd megmérjük a háttérrel korrigált béta-intenzitást. A két adatból az adott tömeghez tartozó detektálási hatásfokot az [2] egyenlettel számítjuk. Mivel a minta és az etalon tálkái (s ezzel a visszaszórási tényező), valamint a geometriai tényező azonos, a detektálási hatásfok csak az önabszorpció, azaz a minta tömegének függvénye lesz. A 2. ábrán egy korábban elvégzett kalibrálás alapján számolt detektálási hatásfokot a minta tömegének függvényében ábrázoltuk.



2. ábra

β -intenzitásmérés detektálási hatásfoka a minta tömegének függvényében

A dúsítás során keletkezett minta aktivitásának meghatározása során a következő lépéseket hajtjuk végre:

- * kiszámítjuk a minta nettó tömegét (azaz a mintatartó edény és tartalma együttes tömegéből kivonjuk az üres tálka tömegét),
- * a 2. ábrából a minta tömegének ismeretében meghatározzuk a detektálási hatásfokot,
- * megmérjük a háttér intenzitását,
- * megmérjük a minta bruttó intenzitását.

5. Kiértékelés

A nettó intenzitás és a detektálási hatásfok ismeretében kiszámítjuk a minta aktivitását.

$$A_{\text{mért minta}} = (I_{\text{mért minta}} - I_H) / \eta \quad [4]$$

A [4] egyenletben $I_{\text{mért minta}}$ a dúsítás utáni minta mért intenzitását jelöli.

A dúsítás utáni minta aktivitásából és a dúsítás hatásfokából az [1] egyenlet felhasználásával számítsuk ki a dúsítás előtti (eredeti) minta aktivitását!

Végül az eredeti minta térfogata ($V_{\text{eredeti minta}}$) ismeretében határozzuk meg az eredeti minta aktivitáskoncentrációját (c_A) Bq/l-ben!

$$c_A = A_{\text{eredeti minta}} / V_{\text{eredeti minta}} \quad [5]$$

6. Jegyzőkönyvírás

Mivel minden egyetemi hallgatóról feltételezhető, hogy ismeri a <Ctrl>-<c> és <Ctrl>-<v> billentyűkombinációkat, a jegyzőkönyvbe nem kell átmásolni az elméleti bevezetőt. Ugyanakkor a kapott, mért és számolt adatoknak jól el kell különülniük, szerepelniük kell a felhasznált képleteknek, továbbá minden fizikai mennyiség mellett szerepelnie kell a mértékegységnek.

A jegyzőkönyvben nagyon tömören és lényegre törően szerepeljenek:

- a mérés címe, időpontja, helyszíne,
- a mérést végző hallgatók és oktató(k) nevei,
- a mérés célja, elve,
- az alkalmazott eljárás és a használt berendezések rövid ismertetése,
- az összes mért adat,
- a mérésleírásban kért összes számolás,
- az eredmény rövid diszkutálása.