

**TECHNISCHE  
UNIVERSITÄT  
DRESDEN**

**Fachrichtung Physik**

Physikalisches Grundpraktikum

Versuch: **RM3**

Erstellt: K. Prokert

R. Schwierz

Bearbeitet: U. Reichelt

Aktualisiert: am 02.07. 2015

# Neutronenaktivierung von Silber

## Inhaltsverzeichnis

<b>1 Grundlagen</b>	<b>2</b>
<b>2 Neutronenaktivierung von Silber</b>	<b>4</b>
<b>3 Aufgabenstellung</b>	<b>5</b>
<b>4 Hinweise zum Experiment</b>	<b>5</b>
<b>5 Versuchsvorbereitung</b>	<b>7</b>
<b>Literatur</b>	<b>8</b>

## 1 Grundlagen

Durch Reaktionen zwischen Atomkernen und Teilchen (z.B. Protonen,  $\alpha$ -Partikeln, 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  $E_n > 10 \text{ keV}$ , intermediäre Neutronen  $n_i$  mit  $E_n = 0,4 \text{ eV} \dots 10 \text{ keV}$  oder thermische Neutronen  $n_{th}$  mit  $E_n < 0,4 \text{ eV}$ ) Kernreaktionen auslösen können.

Neutroneninduzierte Kernreaktionen sind:

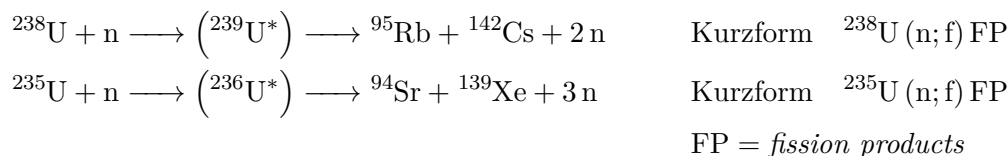
**Austauschreaktionen** wie



**Einfangreaktionen** wie



**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 die 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  $\sigma_A$  angegeben, der stark von  $E_n$  abhängt. Besonders hohe Werte für  $\sigma_A$  treten bei der Reaktion mit thermischen oder mit intermediären Neutronen auf. Abb. 1 zeigt die Energieabhängigkeit des Aktivierungsquerschnittes von Silber.

Für die Aktivierung können Neutronenquellen, wie z.B. Kernreaktoren, Neutronengeneratoren (z.B. Ausnutzung der Reaktion  ${}^3_1\text{H} + {}^2_1\text{H} \longrightarrow {}^4_2\text{He} + n_{14 \text{ MeV}}$ ) oder Isotopenneutronenquellen (z.B. des Typs  ${}^9_4\text{Be} (\alpha; n) {}^{12}_6\text{C}$ ), genutzt werden.

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, Polyethylen oder Graphit.

Für den Fall, dass in der bestrahlten Probe ein radioaktives Nuklid entsteht, ist dessen Aktivität durch die sogenannte Aktivierungsgleichung bestimmbar:

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

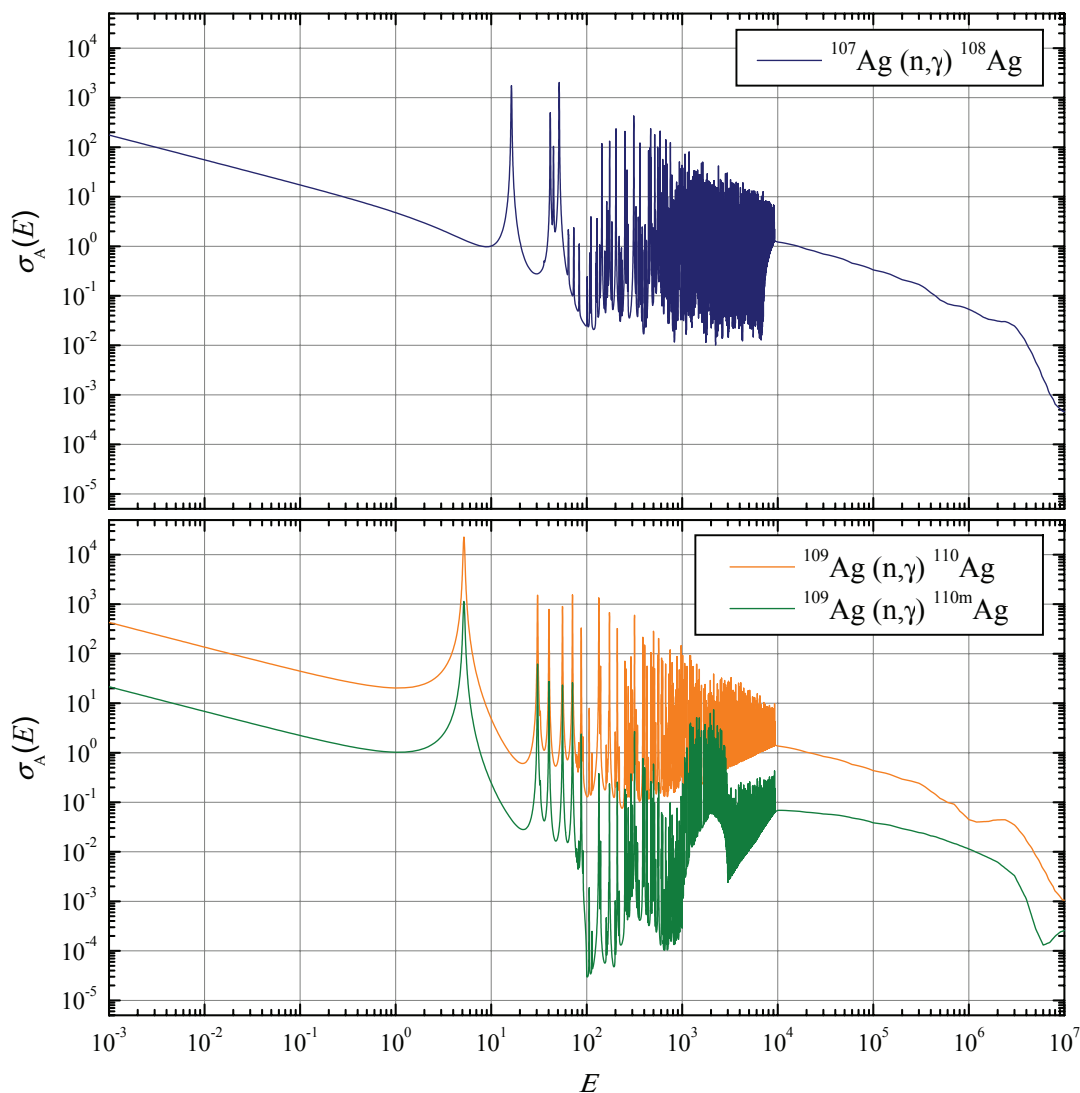


Abb. 1: Aktivierungsquerschnitte von Silber, Quelle: NEA, TENDL-2014-Datenbank (2015)

$A(t)$  = Aktivität (zu Bestrahlungsende)

$\varphi(E)$  = spektrale Neutronenflussdichte

$t$  = Bestrahlungszeit

$N_A$  = Anzahl der aktivierbaren Kerne

$\sigma_A(E)$  = neutronenenergieabhängiger mikroskopischer Aktivierungsquerschnitt

$\lambda$  = 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 hat, auf die Probe treffen, gilt  $\varphi(E) = \varphi_{\text{th}}$  und es kann direkt mit den tabellierten  $\sigma_{A,\text{th}}$ -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. Da in diesem Versuch weder ein definiertes Maxwell-Spektrum thermischer Neutronen vorliegt noch das Energiespektrum der Neutronen exakt vermessen werden kann, wird in Tabelle 1 ein mittlerer Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{pr}}$  angegeben, der für das

vorliegende Energiespektrum der Neutronen, beschrieben durch den mittleren Fluss  $\varphi_M$ , nachfolgende Vereinfachung in der Aktivierungsgleichung (1) zulässt:

$$\int \varphi(E)\sigma_A(E)dE = \varphi_M \cdot \sigma_{pr}$$

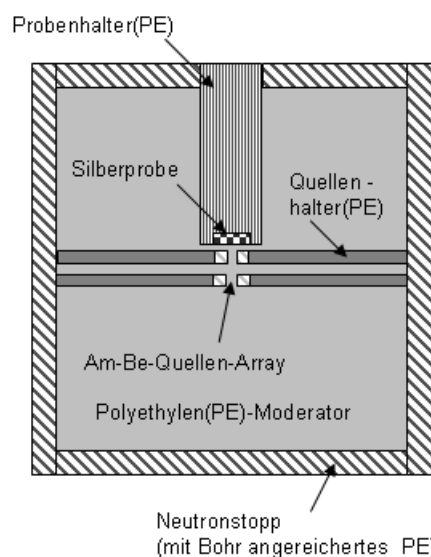
## 2 Neutronenaktivierung von Silber

Natürliches Silber besteht aus zwei stabilen Isotopen. Sie haben die Massenzahl 107 bzw. 109. Beide besitzen signifikante Wirkungsquerschnitte für Einfangreaktionen vom Typ  $(n;\gamma)$  für thermische und intermediäre Neutronen. Dabei werden die Radionuklide  $^{108}\text{Ag}$  bzw.  $^{110}\text{Ag}$  und  $^{110m}\text{Ag}$  gebildet. 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  $\varphi(E)$ ,  $\sigma_A(E)$ ,  $\lambda$ ,  $N_A$  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. Hierbei erfolgt die Analyse zur Bestimmung des Zusammenhangs zwischen  $A$  und  $N$  mit Hilfe von Vergleichsproben ähnlicher Dimension und Zusammensetzung, 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 Anlage. Im Zentrum eines aus Polyethylen-Ziegeln zusammengesetzten Blockes mit den Abmessungen von  $(84 \cdot 90 \cdot 110)\text{cm}^3$  befindet sich ein Array von Americium-Beryllium-(Am-Be)-Quellen. Die bei der spontanen Umwandlung der  $^{241}\text{Am}$ -Kerne emittierten  $\alpha$ -Teilchen werden an  $^9\text{Be}$ -Kernen eingefangen und bilden instabile  $^{13}\text{C}$ -Kerne, die unter Emission eines Neutrons in  $^{12}\text{C}$  übergehen. Diese Neutronen haben eine Maximalenergie von etwa 10,5 MeV mit breiten Intensitätsmaxima um 4 MeV, 7,5 MeV und 9,5 MeV. Sie werden im umgebenden Polyethylen moderiert, d.h. abgebremst und der Anteil thermischer Neutronen steigt. Durch die große Halbwertszeit von  $^{241}\text{Am}$  ist die Neutronenflussdichte auch nach vielen Jahren praktisch konstant.

Die in Tab. 1 gegebenen Werte gestatten unter Verwendung der Aktivierungsgleichung (1) die Berechnung folgender Größen und Effekte:

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



**Abb. 2:** Schematische Darstellung der Bestrahlungsanlage (Polyethylen moderiertes  $^{241}\text{Am}$ - $^9\text{Be}$ -Quellenarray)

Die Aktivitätsmessung der Ag-Isotope erfolgt durch Messung der  $\beta$ -Strahlung. Eine sehr gute Zählhausbeute wird bei Verwendung einer Detektorkombination Plastszintillator-Photosekundärelektronenvervielfacher (PSEV) erzielt. Die Zahl der nachgewiesenen Strahlungsteilchen ist proportional zur Aktivität der Probe. Bei bekanntem Proportionalitätsfaktor  $\eta$  der vorliegenden Messanordnung (Abb. 3) kann entsprechend der Beziehung

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

die Probenaktivität bestimmt werden. Eine absolute Bestimmung von  $\eta$  ist jedoch insbesondere bei  $\beta$ -Strahlung schwierig, da dieser Wert von verschiedenen Faktoren (z.B. Geometriefaktor, Absorption, Selbstabsorption, Lichtausbeute) beeinflusst wird. Daher erfolgt in der Praxis wieder die Anwendung einer Relativmessung bei der lediglich die Konstanz von  $\eta$  gewährleistet sein muss.

### 3 Aufgabenstellung

- Optimierung für die Impulzzählung mit der gegebenen Messanordnung:  
Festlegen des Diskriminatorpegels  $U_{\text{Dis}}$  bei vorgegebener Arbeitsspannung  $U_{D,A}$  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:  
Festlegen der maximalen Zeit zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn  $t_{\text{St}}$ , der Messzeit  $t_{\text{M}}$ , und der Abklingdauer  $t_{\text{A}}$  vor Beginn der erneuten Aktivierung der Proben
- Aufnahme einer Abklingkurve; dabei Wahl einer für die Auswertung geeigneten graphischen Darstellung
- Bestimmung der Halbwertszeiten von  $^{108}\text{Ag}$  und  $^{110}\text{Ag}$  durch Zerlegung der gemessenen Abklingkurve
- Berechnung des Isotopenverhältnisses  $^{107}\text{Ag}/^{109}\text{Ag}$  in der Silberprobe
- Bestimmung des Silbergehaltes einer Münze unter Anwendung des Relativverfahrens der NAA

### 4 Hinweise zum Experiment

#### Zubehör:

1. Kernstrahlungsdetektor (Plastszintillator mit PSEV)
2. Messelektronik zur Spannungsversorgung und zur Pulsanalyse und -zählung
3. PC, via Netzwerk verbunden mit Messelektronik des Szintillationsdetektors; softwaregesteuerter Ablauf mittels LABVIEW und Auswertung der Messergebnisse unter Microsoft EXCEL
4. Silberproben: Silberstandardprobe und Silberanalyseprobe (Silbermünze), Massenangabe jeweils auf den Proben
5. abgeschirmte Neutronenbestrahlungsanlage
6. Probenhalter für Einführung in die Neutronenbestrahlungsanlage

#### Versuchsdurchführung und Auswertung

(Einzelheiten in der Platzanleitung)

**Tabelle 1:** Daten der natürlichen Silberisotope

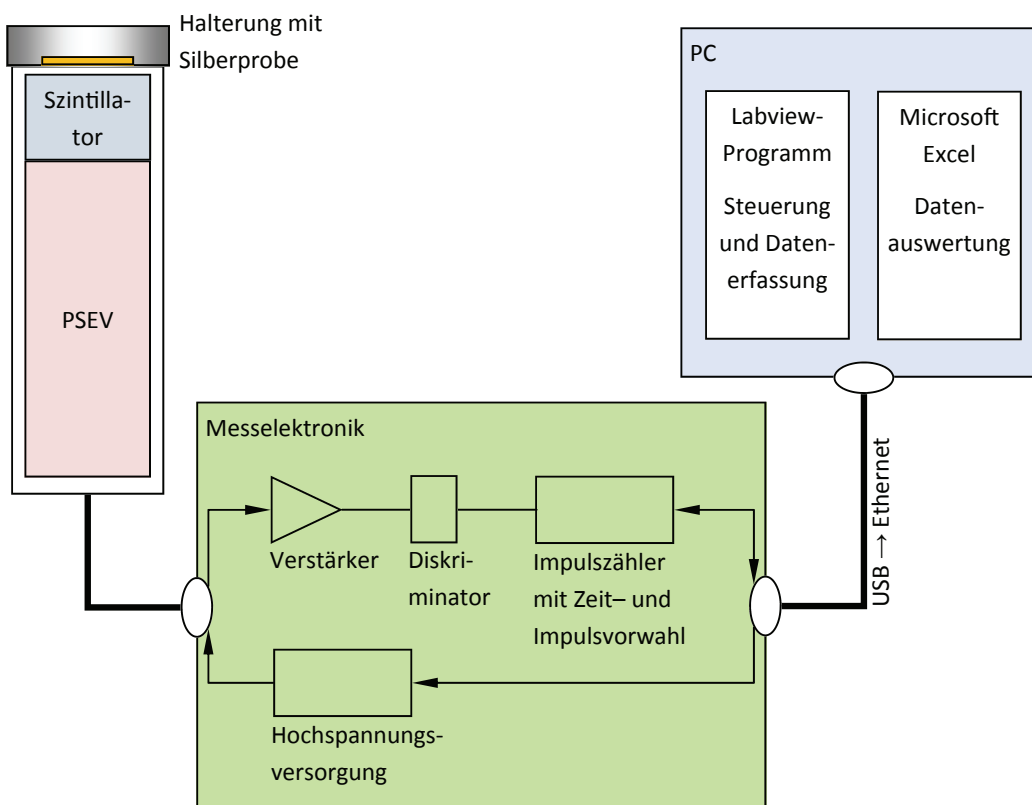
Isotop	Häufigkeit im natürlichen Isotopengemisch	entstehendes Isotop	gemittelter Aktivierungsquerschnitt $\sigma_{A,pr}$ für das vorliegenden Neutronenspektrum	berechneter Aktivierungsquerschnitt $\sigma_{A,th}$ für ein Maxwell-verteiltetes Neutronenspektrum
$^{107}\text{Ag}$	51,83 %	$^{108}\text{Ag}$	46 b	40 b
$^{109}\text{Ag}$	48,17 %	$^{110}\text{Ag}$	244 b	99 b
		$^{110m}\text{Ag}$	6 b	5,0 b

b  $\rightarrow$  barn =  $10^{-24}$  cm<sup>2</sup>;  $\sigma_A$  nach TENDL-2014-Datenbank, NEA (2015)

**Tabelle 2:** Daten der gebildeten, radioaktiven Silberisotope

Isotop	Halbwertszeit	Emission von Elektronen $E_{max}$ /Wahrscheinlichkeit der Emission	Emission von Photonen Energie/Wahrscheinlichkeit der Emission
$^{108}\text{Ag}$	2,38 min	1,02 MeV/1,8 % 1,65 MeV/95,4 %	632 keV/1,8 %
$^{110}\text{Ag}$	24,6 s	2,24 MeV/4,5 % 2,89 MeV/95,2 %	658 keV/4,5 %
$^{110m}\text{Ag}$	250 d	0,084 MeV/68,6 % 0,531 MeV/31,3 %	658 keV/95,6 % 885 keV/75,0 %

nach NuDat 2.6, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory (2015)



**Abb. 3:** Schema der Messanordnung für aktivierte Silberproben

1. Alle Einstellungen der notwendigen Messparameter Detektorspannung  $U_A$ , Verstärkung  $V$ , Diskriminatorpegel  $U_{\text{Dis}}$  und Messzeit  $t_M$  (Länge eines Messzeitintervalls) werden der Platzanlei- tung entnommen bzw. in der Diskussion mit dem Betreuer festgelegt und am PC eingestellt. Desgleichen erfolgt die Speicherung aller Messwerte, deren Auswertung, sowie die Ausgabe der Ergebnisse am gleichen PC.
2. Die Silberstandardprobe wird in die Neutronen-Bestrahlungsanlage bis zum Erreichen von ca. 95 % der Sättigungsaktivität von  $^{108}\text{Ag}$  bestrahlt.
3. Während der Bestrahlungszeit wird unter den eingestellten Bedingungen (siehe 1.) durch mehrfache Messung die Untergrundzählrate  $Z_0$  ermittelt.
4. Die Silberstandardprobe wird aus der Neutronen-Bestrahlungsanlage entnommen, **gleich- zeitig** wird die Messung am PC gestartet. Damit erfolgt die Festlegung von  $t_0 = 0$  der Abklingkurve auf das Ende der Aktivierung der Probe. Diese wird innerhalb von  $t_M$  auf dem Detektor zentral aufgelegt.
5. Die Silberanalysenprobe (Silbermünze) wird in der Neutronen-Bestrahlungsanlage bestrahlt (analog zu Pkt. 2.).
6. Die Messung der Silberanalysenprobe erfolgt entsprechend Pkt. 4. Da die Auswertung zur Bestimmung des Silbergehalts der Silberanalyseprobe anhand des Relativverfahrens der NAA erfolgt, ist die exakte Festlegung des Zeitpunktes  $t_0$  bestimmend für die Zuverlässigkeit dieses Versuchsergebnisses.
7. Die Darstellung und Auswertung der gemessenen Abklingkurven unter Berücksichtigung der Untergrundzählrate  $Z_0$  erfolgt entsprechend der Aufgabenstellung unter Nutzung des Tabellenkalkulationsprogramms EXCEL. Zunächst erfolgt die Bestimmung der Halbwertszeiten aus den erhaltenen Diagrammen. Werden aus den Grafiken  $\lg(Z) = f(t)$  die Werte für  $T_{1/2}$  und  $Z(t_0)$  für  $^{108}\text{Ag}$  richtig bestimmt, ermöglichen die weiteren Programmschritte eine genaue Auswertung der Abklingkurve zur Ermittlung der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  von  $^{110}\text{Ag}$  und der entsprechenden  $Z(t_0)$ -Werte bzw. der Zerfallskonstanten  $\lambda$ .
8. Die bestimmten Werte aus der Grafik bilden die Grundlage zur Berechnung des Isotopenverhältnisses der Silberstandardprobe und des Silbergehalts der Silberanalyseprobe.
9. Angabe und Diskussion des Analyseergebnisses.
10. Fehlerbetrachtungen (Grundlagen siehe Anleitungen RM1 und F2).

## 5 Versuchsvorbereitung

Die Versuchsvorbereitungen zu den Versuchen RM1, RM2 und RM3 sind auf Grund der Versuchsthematik in einem Zusammenhang zu sehen.

Es ist zwingend notwendig, sich in Vorbereitung auf den Versuch mit linearisierten Darstellungen zu beschäftigen. D.h. welche Größen sind auf Abszisse und Ordinate einer grafischen Darstellung zu wählen, um einen ursprünglichen nichtlinearen Zusammenhang in einen linearen zu überführen. Der Versuch erfordert rudimentäre Kenntnisse in der Bedienung von Excel.

### Schwerpunkte

1. Charakterisierung der Arten ionisierender Strahlung ( Entstehung, Eigenschaften)
2. Grundgrößen bei der Messung von Kernstrahlung
3. Detektoren zum Nachweis ionisierender Strahlung (Typen, Funktionsweise)
4. Neutronenquellen und Neutronendetektoren

5. Wechselwirkungsprozesse von Neutronen mit Stoffen
6. Grundlagen und Anwendungsgebiete der Neutronenaktivierungsanalyse

## Literatur

- [1] W. Stolz, *Radioaktivität: Grundlagen – Messungen – Anwendungen*, Teubner-Verlag, Stuttgart/Leipzig 2003
- [2] L. Herforth, H. Koch, *Praktikum der Radioaktivität und Radiochemie*, Verlag A. Barth, Leipzig 1992
- [3] W. Ilberg (Hrsg.), M. Krötzsch (Hrsg.) et. al., *Physikalisches Praktikum für Anfänger*, Teubner-Verlag, Leipzig 1994