

A talliummal szennyezett NaI egykristály, mint gammasugárzás-detektor

Bevezetés

Az ember már ősidők óta ki van téve a radioaktív sugárzásoknak ($\alpha, \beta, \gamma, {}^1_0n, {}^1_1p, \nu, \bar{\nu}, \dots$). Egy személy évi sugárterhelésének majdnem 20%-át a Föld természetes radioaktív izotópjainak (${}^{238}_{92}\text{U}, {}^{232}_{90}\text{Th}, {}^{40}_{19}\text{K}, \dots$) γ -sugárzása és több mint 10%-át az X-sugarakkal végzett röntgendiagnosztika, s az X- meg γ -sugárzásos terápia adja. Ha még azt is figyelembe vesszük, hogy a radioaktív izotópok legtöbbször γ aktív (minden γ aktív izotóp jól meghatározott energiájú fotonokat sugároz, ez lehetővé teszi azonosításukat γ -spektroszkópia útján), nyilvánvaló a γ -sugárzásdetektorok fontossága. A legelterjedtebben használt γ sugárzásdetektorok: a Geiger-Müller cső, a szcintillációs detektor és a félvezető detektor.

A gammasugárzások kölcsönhatásba lépnek annak az anyagi testnek az atomjaival, amelyen áthaladnak, aminek következtében különböző hatások jönnek létre: fényelektromos hatás (kis energiájú fotonok, nagy Z értékű anyagok), Compton-hatás (közepes energiájú fotonok, kicsi Z) és párkeltés (nagy energiájú fotonok). Ezek következtében a sugárzás intenzitása a közegben megtett x távolság függvényében exponenciálisan csökken:

$$I(x) = I(0)e^{-\mu x}, \text{ ahol } \mu \text{ a közeg csillapítási tényezője.}$$

Mindhárom esetben elektromosan töltött részecskék keletkeznek, amelyek ionizálják és gerjesztik a detektor anyagának molekuláit.

A Geiger-Müller részecskeszámláló a gázokban történő ionizáció alapján működik (1. ábra). Csak a részecskék megszámlálására alkalmas.

A szcintillációs detektorok (1. táblázat) esetében a molekulák gerjesztetlen állapotba való visszatéréskor felvillannak (szcintillálnak). A gerjesztett állapotba került atom fotonkibocsátásának (emisszió) valószínűségét egy exponenciális törvény írja le: $p(t) = P(0) \cdot e^{-t/\tau}$, ahol τ az emissziós idő (minden szcintillációra jellemző mennyiség). A felvillanásokat fotoelektron-sokszorozó alakítja át feszültségimpulzusokká (2. ábra).

A félvezető detektorok (GeLi) működése a félvezető kristályban elektronlyuk pár keletkezésén alapszik.

A szcintillációs és félvezető detektorok is a γ fotonok megszámlálására és azok energiájának a mérésére is alkalmasak.

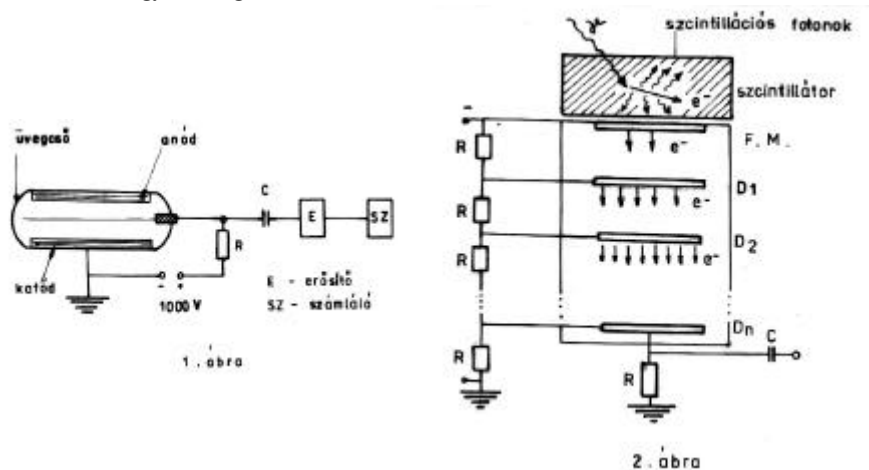
Az energiafelbontás tekintetében viszont jelentős különbség van köztük: egy jó NaI(Tl) detektor rezolúciója 8,5% körül van a ${}^{137}_{55}\text{Cs}$ izotóp γ vonalára vonatkoztatva, míg egy GeLi detektor esetében ez csak tized százaléknyi.

Mégis a NaI(Tl) egykristály (monokristály) detektorok használata az elterjedtebb, mert szobahőmérsékleten használhatók, míg a GeLi detektorok csak a cseppfolyós nitrogén hőmérsékletén (ez igen nagy hátrány).

Szintillációs kristály	Sűrűség g/cm ³	Törésmutató	Olvasási pont [°C]	Fényemisszió hullámhossza [nm]	Emissziós idő [ns]	Fő alkalmazás
antracén	1,25	1,62	217	30	30	γ, β, γ, α, neutron
NaI(Tl)	3,67	1,775	650	230	230	γ, x
BaF ₂	4,89	1,474	1627	220/310	0,6/620	γ
Bi ₄ Ge ₃ O ₁₂	7,13	2,15	1355	480	350	γ
CsI(Tl)	4,51	1,788	620	580	1100	nehéz részecskék, γ
CaWO ₄	6,06	1,92		430	>1000	γ, x

1. táblázat

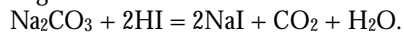
Mérlegelve az eddigieket, jó döntésnek látszott a NaI(Tl) egykristályok gyártásának az elkezdése országunkban is, ahol erre először a nagybányai FRAUEN-BACH Kft. vállalkozott a magyarországi CRYDET Kft. közreműködésével.



b. A nátrium-jodid előállítása és szerkezete

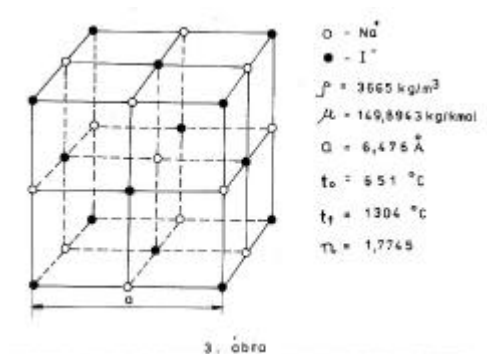
A nátrium-jodid előállítható nátrium-hidroxid oldatból jóddal. Az oldatot bepárolva és hevítve jódtartalmú anyagként csak jodid képződik.

Legtisztábban nátrium-karbonátból állíthatjuk elő hidrogénjoddal:



A nátrium-jodidnak köbös kristályszerkezete van.

Két egymásba helyezett (fél kockaélel eltolt), köbös, legszorosabb illeszkedésű, vagyis lapcentrált rácsból áll (3. ábra).



Mindegyik iont hat, egy oktaéder csúcsain elhelyezkedő ellentétes töltésű ion veszi körül.

A ρ sűrűség és a μ mol tömeg ismeretében kiszámíthatjuk a rácsállandó elméleti értékét. Egy kmol nátrium-jodidban a molekulák száma N_A (az Avogadro-féle szám), s az ionok száma $2N_A$. Feltételezvé, hogy az ionokhoz olyan egyenlő nagyságú kockák tartoznak, amelyek pontosan egymáshoz illeszkednek, akkor a mólterfogat:

$$V_\mu = 2N_A \cdot r^3 \quad (r - \text{a kocka élének hossza.})$$

$$\text{Innen } r = \sqrt[3]{\frac{V_\mu}{2N_A}} = \sqrt[3]{\frac{\mu}{2\rho N_A}} = \sqrt[3]{\frac{149,89}{2 \cdot 3665 \cdot 6,023 \cdot 10^{26}}} = 3,238 \cdot 10^{-10} (\text{m})$$

A rácsállandó elméleti értéke tehát

$$a = 2r = 6,476 \text{ \AA}.$$

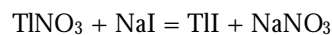
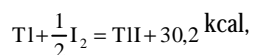
Ez az érték megegyezik a röntgensugarak diffrakciójával meghatározott értékkel (Bragg 1913).

Jól oldódik vízben (100 ml vízben 25°C-on 196,9 g NaI oldódik fel), folyékony ammóniában és alkoholban.

Gyógyszerként is használják.

c. A tallium-jodid előállítása és szerkezete

A tallium-jodid előállítható alkotóelemeiből melegen, vagy talliumnitrát és nátriumjodid vizes oldatainak az összekeverésével:



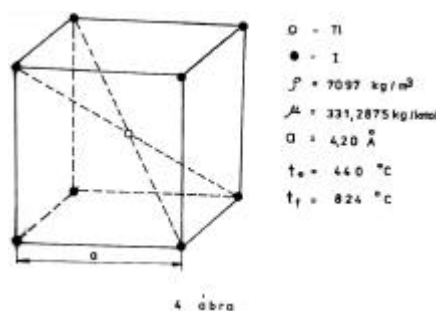
A TlI-nak két kristályrendszerbeli módosulata van:

- sárga színű rombos, ennek sűrűsége 7072 kg/m³
- vörös színű tércentrált köbös, sűrűsége 7097 kg/m³ (4. ábra)

Határozzuk meg a vörös TlI rácsállandóját az előzőekben tárgyalt módon.

Ebben az esetben a mólterfogat

$$V_\mu = N_A a^3, \quad \text{ahonnan:}$$



$$a = \sqrt[3]{\frac{V_{\mu}}{N_A}} = \sqrt[3]{\frac{\mu}{\rho N_A}} = \sqrt[3]{\frac{331}{7097 \cdot 6,023 \cdot 10^{26}}} = 4,26 \cdot 10^{-10} (m).$$

A kapott 4,26 Å érték nem áll messze a táblázatokban közölt 4,20 Å értéktől. Nagyon nehezen oldódnak vízben, alkoholban, acetonban, de oldhatók salétromsavban vagy királyvízben.

A NaI szennyezésére a sárga színű rombos kristályrendszerű TlI-ot használják.
Mérgező anyag.

d. A talliummal szennyezett nátrium-jodid

A tallium atomjai interszticiális szennyeződést idéznek elő a nátrium-jodid kristályrácsban. A szennyeződések, még kis mennyiségben is, jelentősen megváltoztatják a kristály egyes tulajdonságait.

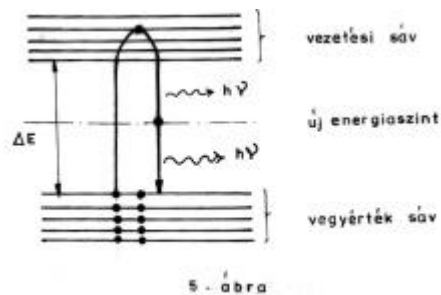
Így például a szennyezőatom egy energiaszintet hoz létre a NaI vegyértéksávját a vezetési sávjától elválasztó tiltott sávban (5. ábra).

Amint azt említettük, a γ -sugárzás és a kristály kölcsönhatása két lépésben történik: az első lépésben a fotoelektromos hatás, Compton-hatás vagy párkeltés következtében gyors elektronok jelennek meg, amelyek a második lépésben a kristály atomjaival kölcsönhatásba lépve szcintillációkat hoznak létre. Részletesebben, a töltéssel rendelkező részecskék hatására elektronok fognak átlépni a vegyértéksávból a vezetési sávba. A vezetési sávban levő elektronok egy része visszatér a vegyértéksávba. Ez két úton történhet:

I. egy lépésben, amely olyan hullámhosszú fotonok kibocsátásával jár, amelyre a kristály elnyelődési tényezője nagyon nagy (nagyjából ezek a fotonok elnyelődnek),

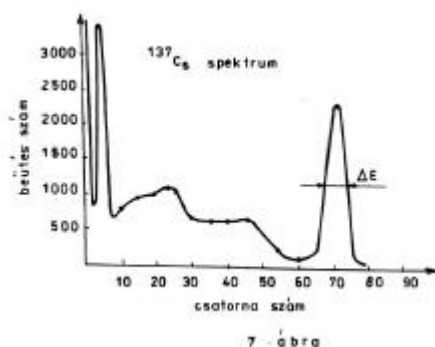
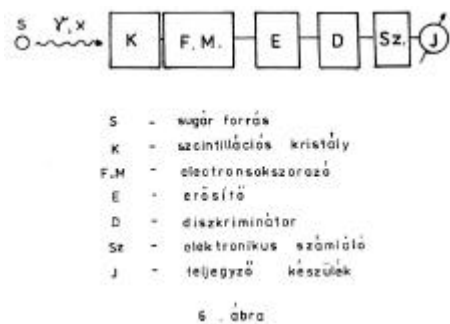
II. két lépésben, a Tl által bevitt energiaszintet felhasználva, két $h\nu < \Delta E$ energiájú foton kibocsátva, amelyek alig nyelődnek el a kristályban (ez lehetővé teszi bármilyen nagy kristály alkalmazását).

Ily módon kevés mennyiségű (1-2 %) Tl-nak a kristályba való juttatása, a szcintillációk hatásfokának jelentős növelését idézi elő (Hofstadter – 1948).



A keltett fényimpulzus és az elnyelt γ -foton energiájának az arányát nevezzük a kristály konverziós hatásfokának. A kristályban a γ -sugarak által keltett szcintillációkat egy elektronsokszorozó alakítja át elektromos impulzusokká (2. ábra).

A fotomultiplikátor kivezetőin megjelenő elektromos impulzusok amplitúdója, a szcintillátorra beeső γ -fotonok energiájának megfelelően más és más lesz.



A 6. ábrán egy szcintillációs számláló berendezés felszerelése látható. A diszkriminátor azoknak a γ részecskének a megszámlálását teszi lehetővé, amelyek energiája egy bizonyos energiaintervallumban van. Ily módon megrajzolhatjuk a γ -sugárzás spektrumát. A 7. ábra egy ^{137}Cs -es izotóppal készített spektrumot ábrázol.

Ha a foto-peak félmagasságában mért ΔE szélességét elosztjuk a ^{137}Cs izotópból származó γ fotonok E energiájával (66/keV), a detektor energiafelbontását (rezolúcióját) kapjuk:

$$R = \frac{\Delta E}{E}$$

A γ -spektrometriában alkalmazott szcintillációs detektorok energiafelbontására vonatkozóan 10% alatti érték az elfogadott a ^{137}Cs izotóp γ vonalára vonatkoztatva.

e. A NaI(Tl) egykristály növesztése és megmunkálása

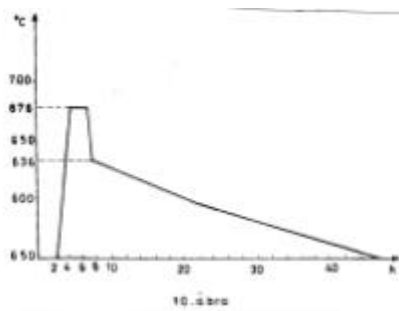
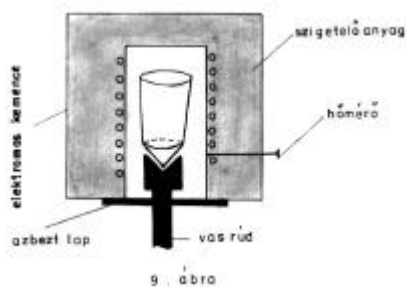
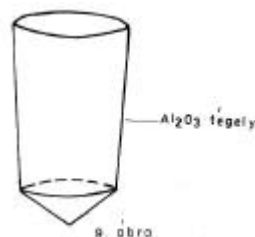
A talliummal szennyezett nátrium-jodid egykristály növesztése kúpban végződő csonkakúp alakú alumínium-oxid tégelyben (8. ábra) történik. A megfelelő mennyiségű NaI és TlI kimérése után, ezeket Al_2O_3 tégelybe juttatjuk. A tégelyt programozott automata berendezéssel vezérelt henger alakú elektromos kemencébe (növesztő kemence) emeljük a vasrúd segítségével (9. ábra). A kemence hőmérsékletének változását a 10. ábra mutatja. Amint azt a grafikonról leolvashatjuk, kb. 5 óra múlva a két só keverékének hőmérséklete a NaI olvadáspontja fölé jut (így a két só megolvad) és ott is marad 2 óra hosszat, majd egy fél óra alatt a NaI olvadáspontja alá zuhan. Ekkor kezdődik el a kristályosodás folyamata a tégely alján, mert a tégelyt tartó fémrúd hőelvezetése következtében kb. 10°C -os hőmérsékleti gradiens lép fel a tégely alsó és felső része között. A NaI(Tl) kristály növekedése továbbá lassan történik, miközben a kemence hőmérséklete óránként $2\text{-}3^\circ\text{C}$ -kal csökken. Így két nap alatt egy olyan egykristályt növeszthetünk, amelyből egy 40-es ($\phi = 40\text{ mm}$ és $h = 40\text{ mm}$) NaI(Tl) detektor formálható. Mivel a NaI nedvszívó anyag, vízmegkötő (szilikagél) jelenlétében tárolják.

Jó kristálynövesztéskor a növesztő kemencéből kivett tégelyben a kristály fölött még marad egy kis cseppfolyós halmazállapotú NaI(Tl). Ezt egy Ni edénybe öntjük ki és a felfordított tégelyt az úgynevezett borító kemence (hőmérséklete kicsivel a NaI(Tl) olvadáspontja fölött van) alá helyezzük.

A tégely falánál a kristály megolvad, s 1-2 perc múlva kipotyog a tégelyből. A forró NaI(Tl) kristályt továbbá a temperáló kemencébe (hőmérséklete kezdetben kicsivel a NaI(Tl) olvadáspontja alatt van) tesszük, ahol a kristály hőmérséklete két nap alatt szobahőmérsékletre ér. A kristályt ezután szilikagélt tartalmazó exikátorba tesszük

(mivel nagyon higroszkopikus a kristály) és egy napig pihentetjük ott, majd a megfelelő méretre esztergályozzuk.

A megszesztályozott kristályt száraz szekrényben (kb. 4 kg szilikagélt tartalmaz, így ott a nedvességtartalom 5% alatt van) még egy napot hagyjuk pihenni, majd ugyanitt folytatódik a csiszolása, pólyálása és energiafelbontásának a meghatározása. A jó rezolúciójú kristályokat üvegablakkal ellátott eloxált alumíniumházakba zárjuk hermetikusan, majd a szárazkamrából kivesszük és raktározzuk.



f. A NaI(Tl) kristályok alkalmazása

A szcintillátorból és fotomultiplikátorból álló számláló berendezéssel X- és γ sugarakat, valamint gyors elektronokat, és neutronokat is ki lehet mutatni (ez az eszköz e tekintetben 50-szer érzékenyebb, mint a Geiger-Müller cső).

A NaI(Tl) szcintillációs detektorok széleskörű felhasználást nyertek a γ -spektrometria számos alkalmazási területén: a fizikai laboratóriumokban, az iparban, a kutatásban és a nukleáris medicina terén alkalmazhatók. Magas számlálási határfokuk, ezért jól használhatók a magas számlálási sebességű helyzetekben, ahol a rezolúció nem a kulcsparaméter. Ahol az energiafelbontás kulcsparaméter, ott GeLi detektorral helyettesítik a NaI(Tl) detektort.

Főleg két NaI(Tl) detektor-sorozat gyártása honosodott meg:

I. a gamma-spektrometriában használt NaI(Tl) detektorok (a standard átmérők 40, 50 és 76 mm és a megfelelő magasságok szintén 40, 50 és 76 mm),

II. az X-sugaras alkalmazásokhoz és kis energiájú γ -sugaras mérésekhez gyártott detektorok (a standard nagyság 25 mm átmérő és 1 mm magasság). Ezeket a röntgendiffraktometriánál, X-sugaras fluoreszcenciánál és a Mössbauer-hatás tanulmányozásánál használják.

Az említett mintamértékű NaI(Tl) detektorokon kívül számos más méretű detektor is lehetséges, ahogy azt a sajátos alkalmazási hely megköveteli.

Ferenczi János