

## Skúmanie závislosti koeficienta spätného rozptylu $\beta$ žiarenia od atómového čísla rozptyľujúcej látky

V. KRIVÁŇ

*Katedra rádiochémie a radiačnej chémie Slovenskej vysokej školy technickej, Bratislava*

Pomocou scintilačnej spektrometrickej metódy sa študovala závislosť koeficienta spätného rozptylu  $\beta$  žiarenia od atómového čísla rozptyľujúcej látky, ktorá je základným vzťahom pre využitie spätného rozptylu v chemickej analýze. Opisuje sa meracia aparatura a korekčná metóda. Výsledky sa porovnávajú s výsledkami iných autorov a diskutuje sa o príčinách vzájomných odchýlok.

Spätný rozptyl  $\beta$  žiarenia sa obyčajne vyjadruje pomocou koeficienta spätného rozptylu  $R$ , ktorý je pre určité geometrické podmienky definovaný ako podiel intenzity spätno rozptyleného žiarenia a intenzity pôvodného žiarenia.

Hodnotu koeficienta spätného rozptylu ovplyvňuje niekoľko faktorov, ktorých rozbor sa urobil v práci [1]. Medzi najdôležitejšie patri: atómové číslo rozptyľujúcej látky, energetická hodnota dopadajúceho  $\beta$  žiarenia vyjadrená strednou alebo maximálnou energiou, hrúbka vrstvy rozptyľujúcej látky a geometrické podmienky (radiačná a detekčná geometria). Okrem uvedeného môžu mať za určitých okolností významnú úlohu aj ďalšie faktory, dosiaľ len nedostatočne preskúmané, súvisiace najmä s fyzikálnomechanickým stavom rozptyľujúcej látky.

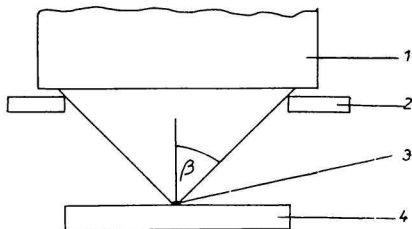
Pre poznanie fyzikálnych základov javu spätného rozptylu, ako aj pre jeho analytické využitie má základnú dôležitosť závislosť koeficienta spätného rozptylu od atómového čísla rozptyľujúcej látky.  $\beta$  rozptyľová analytická metóda je založená na tom, že koeficient spätného rozptylu  $\beta$  žiarenia je funkciou atómového čísla; pri látkach pozostávajúcich z viacerých prvkov je funkciou stredného atómového čísla rozptyľujúcej látky. Stredné atómové číslo  $Z$  sa vyjadruje ako súčet násobkov atómových čísel jednotlivých prvkov s váhovými zlomkami, ktorými sú jednotlivé prvky zastúpené v rozptyľujúcej látke [6]. So zmenami chemického zloženia dochádza súčasne ku zmenám stredného atómového čísla a tým aj ku zmenám intenzity spätno rozptyleného žiarenia, resp. koeficienta spätného rozptylu. Tieto skutočnosti možno využiť na určenie chemického zloženia tuhých, kvapalných a principiálne aj plyných látok, na stanovenie koncentrácie roztokov, zloženia homogénnych zmesí, zliatin a pod. v prípadoch, keď možno analyzovaný systém pokladať za binárny.

Dosiaľ sa závislosť  $R = f(Z)$  skúmala takmer výlučne v izotropnej radiačnej geometrii, pri ktorej sa zdroj žiarenia nachádza priamo na rozptyľujúcej

látke. Tieto merania sa však líšia hodnotou priestorového uhla, v ktorom sa uskutočnila detekcia spätne rozptýleného žiarenia. Podľa toho možno všetky doterajšie výsledky vzťahovať k detekčnej geometrii s priestorovým uhlom  $\Omega = 2\pi \text{ sr}$  ( $2\beta = 180^\circ$ ) [2–6] alebo  $\Omega \ll 2\pi \text{ sr}$ , najčastejšie  $\Omega = 1 \text{ sr}$  ( $2\beta = 65^\circ$ ) [2, 7–12]. Význam uhla  $\beta$  je zrejмый na obr. 1.

Obr. 1. Znáznornenie detekčnej geometrie pomocou rovinného uhla pri izotropnej radiačnej geometrii.

1. detektor; 2. clona; 3. zdroj žiarenia; 4. rozptyľujúca látka.



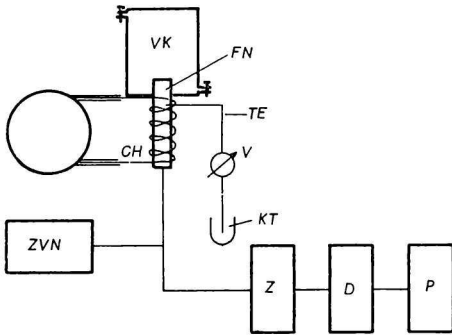
V ostatných prácach, napríklad [13–16], chýbajú presnejšie údaje, väčšinou o radiačnej a detekčnej geometrii. Výsledky všetkých autorov sa síce zhodujú v tom, že so zvyšovaním atómového čísla rozptyľujúcej látky hodnota koeficienta spätného rozptylu výrazne vzrastá, avšak uspokojivý súhlas výsledkov sa nedosiahol a závislosť  $R = f(Z)$  má často značne odlišný priebeh. Príčiny toho môžu byť rôzne. Pre detekčnú geometriu  $\Omega \ll 2\pi \text{ sr}$  najpodstatnejšia príčina nesúhlasu porovnávaných výsledkov spočíva v korekcii na absorpciu pôvodného a spätne rozptýleného žiarenia. Pri tejto detekčnej geometrii sa všetky merania uskutočnili s GM počítačom. Uplatňuje sa teda pri nich absorpcia vo vrstve vzduchu a v okienku počítača. Niektorí autori túto absorpciu vôbec nebrali do úvahy [7], iní vykonali korekcii na základe extrapolácie absorpčných kriviek k nulovej hodnote hrúbky absorbéra. Takýto korekčný postup sa ukázal nedostačujúci najmä pre nižšie energie pôvodného žiarenia a nižšie atómové čísla rozptyľujúcej látky (pozri diskusiu). Extrapolované hodnoty, ako aj na základe nich vypočítané koeficienty spätného rozptylu sa často značne odchyľujú od skutočných hodnôt.

V tejto práci sa závislosť  $R = f(Z)$  skúmala pre detekčnú geometriu  $\Omega = 1 \text{ sr}$  pomocou meracej metódy, ktorá dovoľuje uvedené ťažkosti do značnej miery odstrániť.

### *Meracia metóda a pokusné usporiadanie*

Na meranie sa použila scintilačná spektrometrická metóda. Pomocou diskriminátora sa zistovala závislosť početnosti impulzov od diskriminačného napätia, a to pre pôvodné žiarenie, ako aj pre celkové, t. j. pôvodné a spätne rozptýlené žiarenie. Takto získané diskriminačné krivky sú v podstate integrálne spektrá daného žiarenia. Z ich priebehu, zostrojeného na základe experimentálnych bodov, vykonala sa extrapolácia k bodu nulovej energie. Z extrapolovaných početností možno potom vypočítať totálne koeficienty spätného rozptylu.

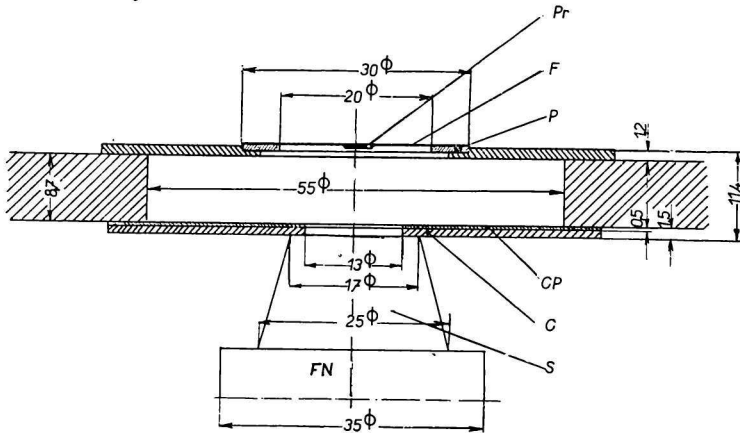
Schéma pokusného usporiadania je na obr. 2. Fotonásobič sa vložil do špeciálne skonštruovanej vzduchotesnej meracej hlavice tak, aby jeho fotokatóda bola dostupná pre umiestnenie scintilátora. Vrečná časť meracej hlavice sa vzduchotesne umiestila v spodnej časti vákuovej komory. Ako detektor sa použil scintilátor z polystyrolu s prídavkom 2 % fenyldifenylyloxadiazolu a 0,03 % tetrafenylbutadiénu. Volila sa forma otupeného useknutého kužela, keďže tento má v porovnaní s valcovou formou alebo aj s formou obyčajného useknutého kužela lepšiu schopnosť prevádzať svetlo. Táto sa ešte ďalej zlepšila pokrytím plášťa scintilátora reflektorom ( $\text{TiO}_2$ ).



Obr. 2. Schéma aparatury.

VK – vákuová komora; T – termostat;  
 CH – chladenie; TE – termoelement;  
 KT – zmes pre udržovanie konštantnej  
 teploty; ZVN – zdroj vysokého napätia;  
 FN – fotonásobič; Z – zosilňovač;  
 D – diskriminátor; P – počítač.

Okrajové efekty na scintilátore sa vylúčili použitím medenej clony. Preparáty sa zo spodnej strany naniesli na tenké fólie ( $10, 20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ). Ako vidieť z geometrického usporiadania na obr. 3, ktoré poskytuje registračnú geometriu  $\Omega = 1 \text{ sr}$ , rozptyľujúce látky sa umiestovali priamo na nosný prstenec s fóliou. Za takýchto podmienok je fólia z jednej strany v styku s rozptyľujúcou látkou a z druhej strany je na nej nanesený preparát. Pretože hrúbka fólie je mimoriadne malá, možno takto dosiahnutú radiačnú geometriu pokladať za izotropnú. Pracovalo sa vo vákuu 0,2 torr, čím sa plošná váha vzduchovej vrstvy medzi preparátom a scintilátorom zredukovala z pôvodných  $1,47 \text{ mg}/\text{cm}^2$  na  $0,4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  a možno ju zanedbať.



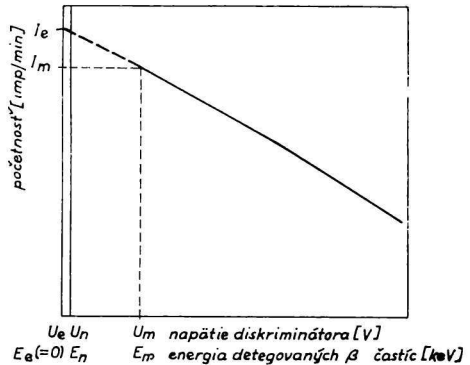
Obr. 3. Detail geometrického usporiadania.

Pr preparát; F – fólia; P – nosný prstenec; C – clona; CP – celuloidové pokrytie;  
 S – scintilátor; FN – fotonásobič.

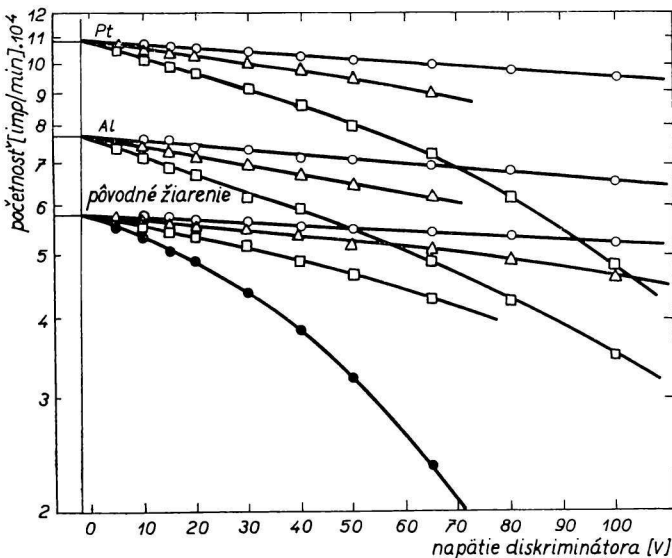
Na obr. 4 vidieť, že extrapoláciu diskriminačných kriviek možno vykonať tým presnejšie, čím viac sa merané hodnoty  $U_m$  ( $E_m$ ) blížia nulovej hodnote  $U_e$  ( $E = 0$ ). Preto je žiadúce merať pri čo možno najnižších hodnotách napätia diskriminátora. Na druhej strane sa však smerom k nízkym napätiam stále viac rušivo uplatňuje šum fotonásobiča. Tento sa podarilo podstatne znížiť chladením meracej hlavice cirkulujúcou vodou o teplote  $4 \pm 0,3$  °C. Teplotné pomery na fotonásobiči (doba, za ktorú sa po začatí merania dosiahla rovnováha a kolísanie teploty) sa kontrolovali termočlánkom. S ohľadom na citlivosť fotonásobiča voči osvetleniu sa vzorky vymieňali za tmy.

Obr. 4. Príklad diskriminačnej krivky na znázornenie postupu pri extrapolácii.

$I_e$  – extrapolovaná početnosť;  $I_m$  – početnosť meraná pri diskriminačnom napätí  $U_m$  (zodpovedá energii  $E_m$ );  $U_e$  – diskriminačné napätie zodpovedajúce nulovej hodnote energie ( $E_e = 0$ );  $U_n$  – nulová hodnota diskriminačného napätia, zodpovedajúca určitej energii  $\beta$  častíc  $E_n$ ;  $U_m$  – najnižšie predpätie diskriminátora, pri ktorom sa ešte vykonalo meranie.



Pre každý prípad sa diskriminačné krivky sňali pri troch alebo štyroch rozličných zosilneniach, ktoré sa prevažne veľmi dobre stretávajú v bode nulovej energie. Pre názornosť sa na obr. 5 ako príklad uvádzajú diskriminačné krivky pôvodného žiarenia rádioaktívneho  $^{32}\text{P}$  a zloženého žiarenia (pôvodné + spätne rozptýlené) pre Pt a Al pri rozličných zosilneniach. Chyby pri extrapolácii sa brali do úvahy pri určení celkovej chyby pre uvedené koeficienty spätneho rozptylu.



Obr. 5. Diskriminačné krivky pôvodného žiarenia rádioaktívneho  $^{32}\text{P}$  a celkového žiarenia (pôvodné + spätne rozptýlené) pre Pt a Al pri rozličných zosilneniach.

- zosilnenie 62 db;
- △ 56 db; □ 50 db;
- 44 db.

Diskriminačné napätie  $U_e$  zodpovedajúce energii  $E = 0$  sa určovalo ciachovaním diskriminátora presným zdrojom impulzov (viackrát denne a v celej oblasti stupnice). Celá aparátúra sa ďalej ciachovala za účelom určenia energetickej stupnice pri diskriminačných krivkách.

Použitá rádionuklidy a ich charakteristiky sú uvedené v tab. 1. Pri príprave preparátov nanášaním roztokov a odparovaním na fóliách sa síce nedosiahli plochy o rovnakej veľkosti a rovnakom tvare, geometrickými štúdiami sa však experimentálne zistilo, že to nemá na výsledky nijaký vplyv. Rovnomernosť rozdelenia nosnej látky po celej ploche preparátu sa kontrolovala pomocou mikroskopu. Z mikroskopických snímok sa zistilo, že sa dosiahol uspokojivé plošné rozdelenie. Všetky použité rádionuklidy sa kontrolovali na rádioaktívnu čistotu.

Tabuľka 1

Charakteristiky použitých rádionuklidov a z nich pripravených preparátov

Rádionuklid	Doba polovičného rozpadu	Maximálna energia [MeV]	Stredná energia [MeV]	Energia $\gamma$ kvánt [MeV]	$\gamma$ kvantá na jadrový rozpad [%]	Použitá aktivita [ne]	Plošná váha preparátu [ $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ]	Plošná váha nosnej fólie [ $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ]
$^{32}\text{P}$	14,3 d	0,708	0,695	—	—	500	6,3	20
$^{185}\text{W}$	73,2 d	0,428	0,127	0,58	15	400	72,7	20
$^{35}\text{S}$	87,1 d	0,168	0,0489	—	—	400	40	10

Tabuľka 2

Údaje pre extrapoláciu diskriminačných kriviek

Rádionuklid	$E_m$ [keV]	$E_m/E_{\max}$ [%]	$(I_e - I_m)/I_e$ [%]
$^{32}\text{P}$	13,2	0,8	0,7
$^{185}\text{W}$	13,2	3,1	9,2
$^{35}\text{S}$	12,5	7,5	18,7

Ako rozptyľujúce látky sa použili leštené kovy, len pri Be, C, S a Se sa vzorky pripravovali lisovaním práškov. Hrúbka všetkých vzoriek prevyšovala hrúbku nasýtenej vrstvy pre spätňý rozptyl pre maximálnu energiu najtvrdšieho použitého  $\beta$  žiarenia ( $^{32}\text{P}$ , 1,708 MeV).

Experimentálne body diskriminačných kriviek sa merali s relatívnou strednou kvadratickou chybou 0,31 % ( $10^5$  zaregistrovaných impulzov). Len pri nízkych zosilneniach a vyšších napätiach diskriminátora, keď experimentálne body majú viac-menej iba informatívnu povahu, pre zdĺhavosť merania s uvedenou štatistickou presnosťou sa merali

nižší počet impulzov. Relatívna stredná kvadratická chyba však v nijakom prípade neprevýšila hodnotu 0,58 % ( $3 \cdot 10^4$  zaregistrovaných impulzov). Kolísanie početnosti v dôsledku dlhodobej nestability celkovej aparatury neprevyšuje 1 %.

V tab. 2 sú uvedené hodnoty energie absolútne v keV, ako aj relatívne k  $E_{\max}$  zodpovedajúce energetickej oblasti, cez ktorú sa vykonala extrapolácia diskriminačných kriviek. Hodnoty  $E_m$  zodpovedajú takým predpäťiam diskriminátora, pri ktorých šum fotonásobiča neprevýšil 2 % celkovej početnosti. Hodnoty namerané pri nižších predpäťiach po odčítaní šumu dobre súhlasia s celkovým priebehom diskriminačnej krivky. Napriek tomu sa však považovali len za informatívne. V tab. 2 sú ďalej údaje o percentuálnom zvýšení početnosti v dôsledku extrapolácie  $(I_e - I_m) 100/I_e$  (počítané pre pôvodné žiarenie). Pri extrapolácii diskriminačných kriviek pre spätne rozptýlené žiarenie nadobúda toto zvýšenie ešte vyššie hodnoty.

Použitá aparatura má výhodu v tom, že pri chladení meracej hlavice umožňuje detegovať častice po energii približne 10 keV, zatiaľ čo pri meraniach s GM počítačmi nemôžu byť registrované všetky častice s energiou nižšou než ca 50 keV. Oblasť extrapolácie sa takto podstatne podarilo znížiť (takmer o 4/5) a tým aj do značnej miery odstrániť ťažkosti, ktoré sa vyskytujú pri extrapolácii absorpčných kriviek pri meraní s GM počítačmi. Táto výhoda sa však nevzťahuje na proporcionálne počítače.

### Korekcia nameraných výsledkov

Hoci sa použili veľmi tenké nosné fólie a plošné váhy preparátov boli pomerne nízke (pozri tab. 1), nemožno absorpciu spätne rozptýleného žiarenia v nich zanedbať. Výsledky merania sa preto museli korigovať. Ako vidieť na obr. 6, je potrebné uvažovať:

a) absorpciu žiarenia  $I'_0$ , emitovaného z preparátu, vo fólii:

$$I''_0 = f_{(f)}^p \cdot I'_0, \quad (1)$$

b) spätný rozptyl žiarenia dopadajúceho na rozptyľujúcu látku  $I''_0$ :

$$I'_r = I''_0 \cdot R_s, \quad (2)$$

kde  $R_s$  je skutočný koeficient spätného rozptylu,

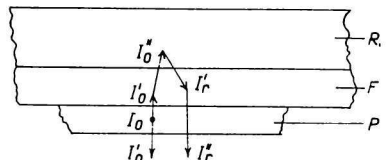
c) absorpciu spätne rozptýleného žiarenia v nosnej fólii a v preparáte:

$$I''_r = f_{(f+p)}^r \cdot I'_r. \quad (3)$$

Samoabsorpcia pôvodného žiarenia v preparáte sa neuvažuje z dôvodov symetrie.

Obr. 6. Schematické znázornenie dráhy  $\beta$  častíc pri spätnom rozptyle za použitých experimentálnych podmienok.

R — rozptyľujúca látka; F — nosná fólia;  
P — preparát.



Pomocou uvedených korekčných faktorov na absorpciu  $f_{(f)}^p$  a  $f_{(f+p)}^r$  možno potom skutočný koeficient spätného rozptylu  $R_s$  vyjadriť ako

$$R_s = R_m \cdot \frac{1}{f_{(f)}^p \cdot f_{(f+p)}^r}, \quad (4)$$

kde  $R_m$  je zdanlivý koeficient spätného rozptylu, počítaný na základe nameraných hodnôt:

$$R_m = \frac{I_r''}{I_0'}. \quad (5)$$

Ak sa podiely absorbovaného pôvodného a spätne rozptýleného žiarenia označia ako

$$A_p = \frac{I_{\text{abs}(f)}^p}{I_0'}, \quad (6)$$

$$A_r = \frac{I_{\text{abs}(f+p)}^r}{I_r'}, \quad (7)$$

možno absorpčné faktory  $f_{(f)}^p$  a  $f_{(f+p)}^r$  vyjadriť ako

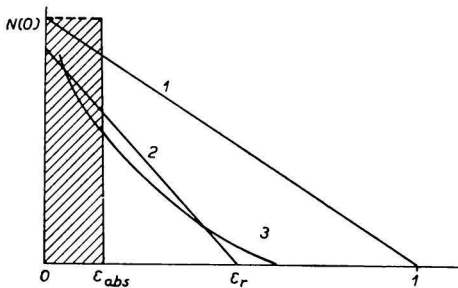
$$f_{(f)}^p = 1 - A_p, \quad (8)$$

$$f_{(f+p)}^r = 1 - A_r \quad (9)$$

a vzťah (4) prechádza na

$$R_s = R_m \cdot \frac{1}{(1 - A_p)(1 - A_r)}. \quad (10)$$

Hodnoty faktorov  $A_p$  a  $A_r$  sa počítali dvojakým postupom.



Obr. 7. Predpokladaný priebeh spektier pri korekcii na absorpciu.

1. idealizované lineárne spektrum pôvodného žiarenia; 2. idealizované lineárne spektrum spätne rozptýleného žiarenia; 3. skutočné spektrum spätne rozptýleného žiarenia.

Pri hrubom priblížení sa spektrá pôvodného i spätne rozptýleného žiarenia aproximovali na lineárne (obr. 7, krivka 1 à 2). Energetické pomery sa vyjadrujú pomocou veličiny  $\varepsilon$ , pre ktorú platí:

$$\varepsilon = \frac{E}{E_{\text{max}}}; \quad \varepsilon_{\text{abs}} = \frac{E_{\text{abs}}}{E_{\text{max}}}; \quad \varepsilon_r = \frac{E_{\text{max}}^r}{E_{\text{max}}}, \quad (11)$$

kde  $E_{\text{max}}$  je maximálna energia pôvodného žiarenia,  $E_{\text{abs}}$  je hodnota energie

častíc, pre ktorú daná absorpčná vrstva (fólia, preparát) predstavuje úplne absorbujúcu vrstvu,  $E_{\max}^r$  je kvázi maximálna energia spätne rozptýleného žiarenia, určená zo spektier spätne rozptýleného žiarenia podľa L. Danguya a F. Grarda [17] a H. W. Thümmela [18]. Hodnoty  $\varepsilon_r$  sa ukázali nezávislé od  $E_{\max}$  a dosahujú pre: Be 0,25; Al 0,40; Cu 0,51; Sn 0,60; Pt 0,71. Hodnota  $E_{\text{abs}}$  sa zistila zo vzťahov medzi energiou a dosahom pre danú absorpčnú hrúbku podľa L. Katza a R. S. Penfolda [19], ako aj podľa H. Kantera a E. J. Sternglassa [20, 21]. Faktory  $A_p$  a  $A_r$  sa potom vypočítali na základe lineárneho priebehu spektier (obr. 7), vychádzajúc zo vzťahov (6) a (7).

Nedostatkom tohto postupu je, že sa uvažuje len úplná absorpcia (čiastočná absorpcia žiarenia s energiou  $\varepsilon > \varepsilon_{\text{abs}}$  sa zanedbáva) a že nie vo všetkých prípadoch je predpoklad lineárneho priebehu spektier celkom odôvodnený.

Vypracoval sa preto presnejší korekčný postup [30], ktorý zohľadňuje energetickú závislosť priepustnosti žiarenia, ako aj charakter priebehu spektier. Pre energetickú závislosť priepustnosti žiarenia  $\eta(\varepsilon)$  platí:

$$\eta(\varepsilon) = 1 - e^{-a\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{\text{abs}}} - 1\right)} \quad (12)$$

P. J. Champion so spolupracovníkmi [23] odvodil na základe meraní R. O. Laneho a D. J. Zaffarana [24]  $a \doteq 2$ ; z novších meraní H. Kantera vychádza  $a = 1,64$ .

Faktory  $A_p$  a  $A_r$  sa vyjadrujú ako

$$A = \frac{I_{\text{abs}}}{I_0} = \frac{I_0 - I_a}{I_0}, \quad (13)$$

kde  $I_0$  je intenzita žiarenia bez absorpcie,  $I_a$  po preniknutí uvažovanou absorbujúcou vrstvou. Ich hodnoty možno potom vypočítať jednoduchou integráciou, a to v prípade lineárnej, ako aj exponenciálnej aproximácie priebehu spektra absorbovaného žiarenia.

Priebeh lineárneho spektra (aproximácia pre pôvodné a spätne rozptýlené žiarenia všetkých použitých rádionuklidov) možno opísať vzťahom

$$N(\varepsilon) = N(0)(1 - \varepsilon). \quad (14)$$

Priebeh exponenciálneho spektra (aproximácia pre spätne rozptýlené žiarenie pre  $^{35}\text{S}$  a nízke  $Z$ , použitá pre porovnanie s aproximáciou lineárneho priebehu spektra) možno vyjadriť rovnicou

$$N(\varepsilon) = N(0) \cdot e^{-k\varepsilon}. \quad (15)$$

Hodnoty  $I_0$  a  $I_a$  sa potom vypočítajú z integrálov

$$I_0 = \int_0^x N(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (16)$$

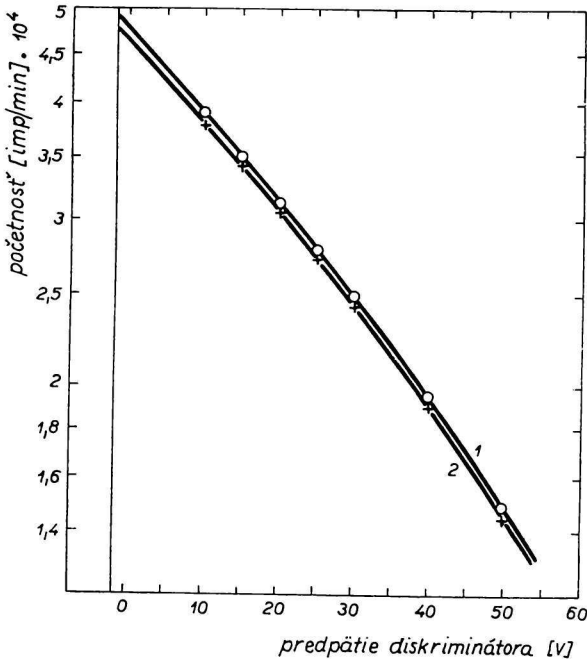


$$I_a = \int_0^x N(\varepsilon) \eta(\varepsilon) d\varepsilon, \quad (17)$$

kde pre primárne žiarenie je  $x = 1$ , pre spätne rozptýlené žiarenie  $x = \varepsilon_r$ . Korigované hodnoty pre spätne rozptýlené žiarenie  $^{35}\text{S}$  a nízkych  $Z$  (Be, Al) za použitia aproximácie lineárneho a exponenciálneho priebehu spektra sa navzájom len nepodstatne líšia. Preto sa aproximácia lineárneho priebehu spektra pre účely tejto korekčnej metódy pokladala za dostačujúcu.

Takto korigované výsledky dobre súhlasia s výsledkami korigovanými prvým postupom len pre vyššie maximálne energie a vyššie atómové čísla rozptyľujúcich látok. Pri prechode k nižším hodnotám  $E_{\text{max}}$  a  $Z$  je korekcia podľa prvého postupu stále viac nedostačujúca. Preto sa namerané výsledky korigovali druhým postupom, pri ktorom sa berie do úvahy energetická závislosť priepustnosti žiarenia. Tento spôsob umožňuje vykonať korekciu nielen na úplne absorbovanú časť spektra (častice s energiou  $< E_{\text{abs}}$ ), ale aj na absorpciu určitého podielu častíc s energiou  $> E_{\text{abs}}$ .

Pri použití korekčného postupu sa zanedbáva vplyv uhlového rozdelenia  $\beta$  častíc pri prechode absorbojúcou vrstvou (nosnou fóliou a preparátom). Keďže je spätne rozptýlené žiarenie vysielané do priestorového uhla  $2\pi$  sr a dochádza aj k rozptyľu dovnútra (tým časť častíc vysielaných do priestorového uhla mimo detekčnej geometrie dosiahne detektor), predpokladá sa, že vplyv uhlového rozdelenia je len nepatrný.



Obr. 8. Diskriminačné krivky pôvodného žiarenia  $^{35}\text{S}$ .  
1. bez absorpčnej fólie; 2. s absorpčnou fóliou o plošnej váhe  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ .

Okrem toho vzťah odvodený z výsledkov H. Kantera pre funkciu  $\eta(\varepsilon)$  platí iba pre kolmý dopad. To znamená, že korekcia pre  $I_0''$  je prislábá a hrúbka fólie by sa mala uvažovať ako funkcia výstupového uhla. Pri  $I_r''$  sa zo všetkých  $\beta$  častíc spätne rozptýlených do priestorového uhla  $2\pi$  sr uvažujú len tie, ktoré dopadajú v priestorovom uhle detekčnej geometrie, t. j.  $\Omega = 1$  sr. Skutočná hrúbka fólie je teda iba o málo väčšia i pre krajný prípad ( $\beta = 33^\circ$ ) než hrúbka uvažovaná pri korekcii.

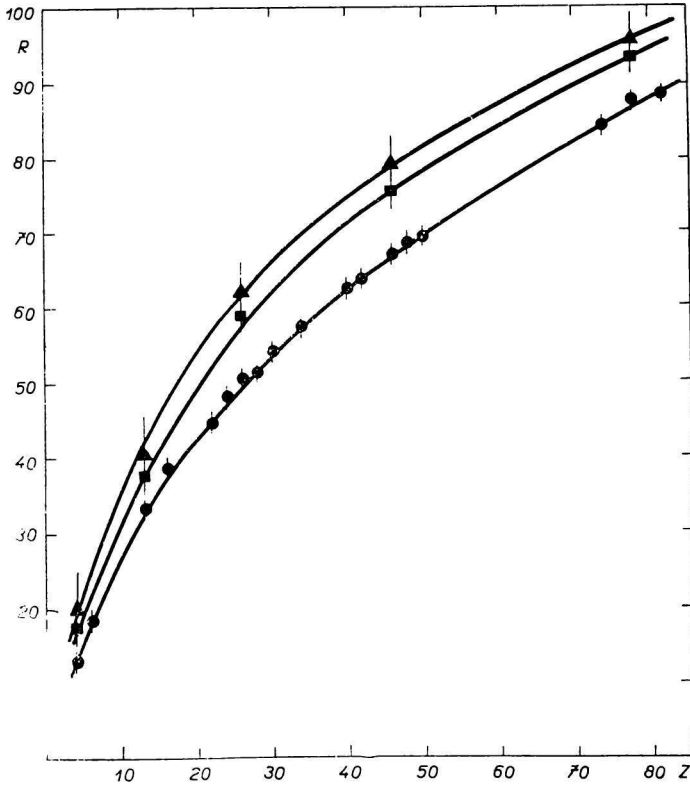
Správnosť tohto korekčného postupu sa preverila aj experimentálne pre prípad absorpcie pôvodného žiarenia  $^{35}\text{S}$  v tenkej fólii pomocou snímania a extrapolácie diskriminačných kriviek, ktoré sú znázornené na obr. 8. Hodnoty krivky 1 sa merali za použitia preparátu naneseného na nosnú fóliu o plošnej váhe  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Pri krivke 2 sa medzi nosnú fóliu a scintilátor vložila ešte jedna fólia o rovnakej plošnej váhe. Na základe extrapolácie diskriminačných kriviek sa zistilo, že v dôsledku absorpcie v tejto fólii poklesne intenzita žiarenia o 3,70 %. Uvedenou korekčnou metódou sa vypočítalo zníženie o 3,96 %. Takýto súhlas možno pokladať za uspokojivý.

### Výsledky a diskusia

Korekcia na absorpciu pôvodného žiarenia v nosnej fólii a spätne rozptýleného žiarenia v nosnej fólii a preparáte sa uplatňuje pre jednotlivé nuklidy a pri týchto ešte pre jednotlivé rozptyľujúce látky rôznou mierou, aj keď sa hrúbka absorpčnej vrstvy nemení. Pôvodné hodnoty koeficientov spätného rozptylu po korekcii na absorpciu sa pre  $^{32}\text{P}$  zvýšia v rozmedzí 1,6 % (pri Pb) — 3,2 % (pri Be), pre  $^{185}\text{W}$  o 13,7 % (pri Pt) — 39,2 % (pri Be) a pre  $^{35}\text{S}$  o 24,9 % (Pt) — 59,4 % (Be). Je to spôsobené tým, že so znižovaním energetickej hodnoty (vyjadrenej pomocou  $E_{\text{max}}$  alebo  $\bar{E}$ ) pôvodného žiarenia a atómového čísla rozptyľujúcej látky prudko klesá energetická hodnota spektra spätne rozptýleného žiarenia [17, 18, 25], t. j. prudko stúpa absorbovaný podiel.

Závislosť  $R = f(Z)$  sa podrobne skúmala (18 rozptyľujúcich látok) pre  $^{32}\text{P}$ , keďže pre tento nuklid existuje najviac výsledkov iných autorov pre porovnanie. Okrem toho  $^{32}\text{P}$  je k dispozícii s veľmi vysokou špecifickou aktivitou (prakticky bez nosiča) a má z použitých rádionuklidov najenergetickejšie spektrum. Preto je v tomto prípade korekcia na absorpciu, pri ktorej sa takisto zanášajú do výsledkov určité chyby, len nepatrná.

Korigované výsledky pre  $^{32}\text{P}$ ,  $^{185}\text{W}$  a  $^{35}\text{S}$  sú v podobe diagramov  $R = f(Z)$  zhrnuté na obr. 9. Na obr. 10 sa porovnávajú výsledky pre  $^{32}\text{P}$  s najzaujímavejšími výsledkami iných autorov pre izotropnú radiačnú geometriu, detekčnú geometriu  $\Omega \ll 2\pi$  sr a ten istý rádionuklid [2, 7, 9–12] a výsledky pre  $^{35}\text{S}$



Obr. 9. Závislosť koeficienta spätňého rozptylu od atómového čísla.

▲ pre  $^{35}\text{S}$ ; ■ pre  $^{185}\text{W}$ ;  
● pre  $^{32}\text{P}$ .

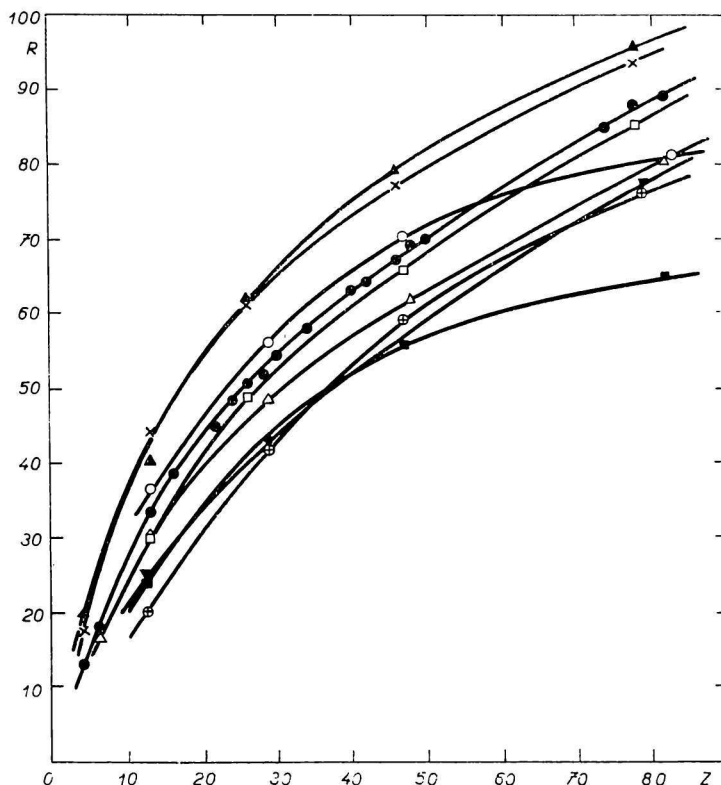
s hodnotami H. Kantera pre monoenergetické elektrónové žiarenie o energii 50 keV [26].

Výsledky získané pre  $^{32}\text{P}$  pomerne dobre súhlasia v celom skúmanom intervale  $Z$  s výsledkami R. L. Zumwalta [9], ktorý uskutočnil merania v rovnakej radiačnej i detekčnej geometrii a výsledky korigoval na absorpciu vo vrstve vzduchu a v okienku GM počítacia na základe extrapolácie absorpčných kriviek cez oblasť  $4,6 \text{ mg/cm}^2$ , čo zodpovedá úplne absorbujúcej vrstve pre elektróny s energiou ca 55 keV

Vo všeobecnosti nie je takto vykonaná korekcia dostačujúca. Neberie sa totiž pri nej do úvahy, že absorpčná krivka spočiatku (v oblasti  $d < 3 \text{ mg/cm}^2$ ) klesá omnoho prudšie než pri väčších hrúbkach ( $d > 3 \text{ mg/cm}^2$ ) [3, 27–29]. Absorpčné krivky sa extrapolujú v oblasti niekoľkých  $\text{mg/cm}^2$ , keďže pod túto hodnotu iba ťažko možno znížiť absorbujúcu vrstvu tvorenú okienkom počítacia a vzduchom. Extrapolácia sa uskutočňuje v semilogaritmickej stupnici s približne rovnakým zakrivením, aké majú absorpčné krivky na základe experimentálnych bodov, pričom sa neberie do úvahy ich prudší sklon v oblasti nižších hrúbok vrstiev. Táto skutočnosť sa obzvlášť nepriaznivo prejavuje pri

extrapolácii absorpčných kriviek spätne rozptýleného žiarenia, ktorého spektrá obsahujú značný podiel veľmi mäkkých  $\beta$  častíc. S klesajúcou energetickou hodnotou spektra pôvodného žiarenia a s klesajúcim atómovým číslom rozptyľujúcej látky stúpa počet veľmi mäkkých  $\beta$  častíc v spektre spätne rozptýleného žiarenia. Tým sa zároveň zvyšuje prudkosť poklesu absorpčných kriviek v oblasti veľmi nízkych hodnôt absorbujúcej vrstvy a extrapolácia je stále nesprávnejšia. V dôsledku nedostačujúcej korekcie na absorpciu sa potom v takýchto prípadoch získajú príliš nízke koeficienty spätneho rozptylu.

Pre  $^{32}\text{P}$  nie je táto chyba s ohľadom na relatívne tvrdé žiarenie veľká. Preto aj výsledky, ktoré získal R. L. Zumwalt pre tento nuklid, ležia len niečo nižšie než naše výsledky. Ich odklon je takmer v rámci chýb merania. So



Obr. 10. Závislosť koeficienta spätneho rozptylu od atómového čísla. Porovnanie výsledkov rozličných autorov.

▲  $^{35}\text{S}$ , získané v tejto práci; × monoenergetické elektróny, 50 keV, H. Kanter [26]; ●  $^{32}\text{P}$ , získané v tejto práci; □  $^{32}\text{P}$ , R. L. Zumwalt [9]; ○  $^{32}\text{P}$ , D. W. Englekemeier [10]; △  $^{32}\text{P}$ , H. H. Seliger [2]; ▼  $^{32}\text{P}$ , A. Hettler [12]; ⊕  $^{32}\text{P}$ , L. E. Glendenin a A. K. Solomon [11]; ■  $^{32}\text{P}$ , L. Yaffe a K. M. Justus [7].

stúpajúcim  $Z$  rastie energetická hodnota spektra spätne rozptyleného žiarenia a v zhode s tým aj porovnávané výsledky súhlasia pri vyšších  $Z$  oniečo lepšie.

Závislosti  $R = f(Z)$  u iných autorov [2, 11, 12], ktorí použili rovnaké geometrické podmienky, majú síce charakter priebehu podobný, ale v dôsledku chýb pri meraní, najmä však nesprávnou korekciou na absorpciu ležia podstatne nižšie. L. E. Glendenin a A. K. Solomon [11] pre prípad, keď nanášali preparát priamo na povrch kovu, dostali príliš vysoké koeficienty spätneho rozptylu, pre Pb až 105 %. Vysvetľuje sa to vplyvom povrchových efektov pri spätnom rozptyle. Aj H. H. Seliger [2] nanášal preparáty priamo na rozptyľujúcu látku, nezistil však nijaký podobný efekt ako L. E. Glendenin a A. K. Solomon. Príčiny pravdepodobne spočívajú v chybách pri nanášaní preparátov.

L. Yaffe a K. M. Justus [7] koeficienty spätneho rozptylu nekorigovali na absorpciu vo vrstve vzduchu a v okienku GM počítača a použili detekčnú geometriu  $\Omega = 2,2$  sr. Preto sú ich výsledky príliš nízke a priebeh závislosti  $R = f(Z)$  má odlišný charakter než u iných autorov, ale podobný ako u D. W. Englekemeiera [10], ktorý meral v detekčnej geometrii 1,4 sr.

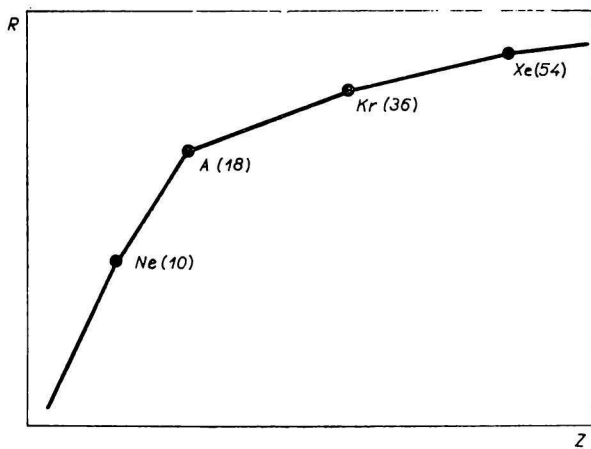
V súhlase s existenciou energetickej závislosti koeficientov spätneho rozptylu [30] má závislosť  $R = f(Z)$  iný priebeh pre každý použitý nuklid (obr. 9). H. H. Seliger [2], R. L. Zumwalt [9], D. W. Englekemeier [10], L. E. Glendenin a A. K. Solomon [11], ktorí na meranie použili GM počítač a výsledky korigovali na absorpciu vo vrstve vzduchu a v okienku počítača na základe extrapolácie absorpčných kriviek k nulovej hodnote hrúbky absorbéra, uvádzajú platnosť jedinej závislosti pre všetky použité nuklidy. L. Yaffe a K. M. Justus [7], I. S. Kulikov [13], N. A. Bogdanov a spolupracovníci [14] a i. vôbec nekorigovali GM počítačom namerané výsledky na absorpciu, v dôsledku čoho dostali úplne opačný vplyv energie na priebeh danej závislosti, než sa zistil v tejto práci.

Skutočnosť, že sa dosiaľ nezistil takýto vplyv energie na priebeh závislosti  $R = f(Z)$ , súvisí opäť s tým, že korekcia na absorpciu na základe extrapolácie absorpčných kriviek je s klesajúcou energetickou hodnotou spektra dopadajúceho žiarenia stále slabšia. To má za následok, že namiesto poklesu koeficienta spätneho rozptylu so stúpajúcou energiou sa dosiahne približne energetická nezávislosť. Ešte nesprávnejšie sú výsledky meraní, pri ktorých sa korekcia na absorpciu úplne zanedbala.

Zistený vplyv energie žiarenia na priebeh uvažovanej závislosti potvrdzuje aj výborný súhlas výsledkov pre  $^{35}\text{S}$  ( $\bar{E} = 48,9$  keV) s hodnotami H. Kantera, vypočítanými z nameraného energetického rozdelenia pre monoenergetické elektróny o energii 50 keV

Pri závislosti koeficienta spätneho rozptylu od atómového čísla je veľmi zaujímavý problém jej charakteru. Pre detekčnú geometriu  $\Omega \ll 2\pi$  sr sa vo

všetkých prípadoch získala závislosť kontinuitnej povahy a aj pre  $\Omega = 2\pi$  sr všetci autori s výnimkou R. H. Müllera jej priradujú takýto charakter. Podľa R. H. Müllera [6] koeficient spätného rozptylu je diskontinuitnou funkciou atómového čísla. Body zlomu sa vyskytujú pri atómových číslach zodpovedajúcich inertným plynom a v rámci jednotlivých periód periodickej sústavy prvkov je táto závislosť lineárna (obr. 11). Porovnanie s výsledkami iných autorov vyznieva v prospech Müllerových výsledkov, lebo tieto sa získali na základe takého počtu experimentálnych bodov a najmä takej presnosti merania (R. H. Müller použil proporcionálny počítač), ktoré sa nedosiahli ani v jednej práci s touto problematikou. Pre monoenergetické elektróny sa doteraz získala tiež len spojitá závislosť  $R = f(Z)$ .



Obr. 11. Závislosť koeficienta spätného rozptylu pre  $2\pi$ -detekčnú geometriu podľa R. H. Müllera [6].

Diskontinuitnú a v rámci jednotlivých periód lineárnu povahu uvedenej závislosti nemožno zatiaľ teoreticky vysvetliť. Aj keď je teoretická interpretácia rozptylových javov elektrónov a najmä spätného rozptylu zatiaľ len nedostačujúco rozpracovaná, je už známe, že sa jednonásobný, viacnásobný a mnohonásobný rozptyl realizuje prevažne a za určitých podmienok takmer výlučne na atómových jadrách. Elektrónový obal sa podieľa bezprostredne na týchto javoch (a za predpokladu, že spôsobujú spätný rozptyl, aj na tomto jave) veľmi nepatrne. Ovplyvňuje síce do určitej miery rozptyl elektrónov na jadrách, a to tienením, avšak na základe doteraz získaných poznatkov o vplyve tienenia jadra elektrónovým obalom na rozptylové javy nie je možné diskontinuitnú povahu závislosti  $R = f(Z)$  uspokojivo vysvetliť periodičnosťou v budovaní elektrónového obalu atómov tvoriacich rozptyľujúce prostredie. Neexistuje ani nijaká užšia súvislosť medzi periodičnosťou a zákonitostami difúzie elektrónov, ktorou sa tiež v súčasnej dobe teoreticky interpretuje spätný rozptyl elektrónov.

Skúmala sa vhodnosť uvedených dvoch typov závislostí pre experimentálne výsledky získané v tejto práci pre  $^{32}\text{P}$ . Počítali sa rozptyly okolo regresných priamok v 4. a 5. perióde a rozptyl okolo exponenciály v rámci obidvoch períód. Vzájomná významnosť získaných rozptylov sa porovnávala na základe objektívneho  $F$  testu na 5 % hladine významnosti s použitím tabuliek Fisherovho — Snedecorovho rozdelenia [31]. Testovanie vhodnosti regresnej funkcie sa vykonalo pre tieto prípady:

a) priamka 4. periódy—priamka 5. periódy. Ak sa rozptyly pre tieto periódy označia ako  $s_{4p}^2$  a  $s_{5p}^2$ , získa sa:

$$\frac{s_{5p}^2}{s_{4p}^2} = 1,60 < F_{0,05}(3,4) = 6,59,$$

b) priamka 4. periódy—exponenciála v rámci obidvoch períód, pre ktoré platí ( $s_{ex}^2$  je rozptyl pre exponenciálu):

$$\frac{s_{4p}^2}{s_{ex}^2} = 1,07 < F_{0,05}(4,9) = 3,63,$$

c) pre prípad priamka 5. periódy—exponenciála platí vzťah

$$\frac{s_{5p}^2}{s_{ex}^2} = 1,61 < F_{0,05}(3,9) = 3,86.$$

Príslušné kritické tabelované hodnoty sú vo všetkých prípadoch porovnávania štatistickej významnosti rozptylov väčšie než podiel daných rozptylov. Na základe spracovaného experimentálneho materiálu a použitého testu nemožno nulovú hypotézu o totožnosti rozptylov zamietnuť. V rámci použitých podmienok experimentovania sa aproximácia skutočnej funkcie  $R = f(Z)$  na diskontinuitnú a v rámci jednotlivých períód lineárnu alebo spojitú exponenciálnu regresnú funkciu presnosťou od seba štatisticky významne nelíšia a možno obidve rovnako dobre použiť.

*Ďakujem dr. H. W. Thümmelovi z Ústavu pre aplikovanú rádioaktivitu v Lipsku za rady pri experimentálnej práci a pri spracovaní výsledkov. Inž. I. Bučinovi z ÚVVVR v Prahe ďakujem za pripomienky k práci.*

## ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ КОЭФИЦИЕНТА ОБРАТНОГО РАССЕЯНИЯ $\beta$ -ИЗЛУЧЕНИЯ ОТ АТОМНОГО НОМЕРА РАССЕИВАЮЩЕГО ВЕЩЕСТВА

В. Кривань

Кафедра радиохимии и радиационной химии Словацкого политехнического института, Братислава

Изучалась зависимость коэффициента обратного рассеяния  $\beta$ -излучения от атомного номера рассеивающего вещества в изотропной радиационной геометрии (источник излучения прямо на рассеивающем веществе) и в геометрии измерения  $\Omega = 1$  sr ( $2\beta = 65^\circ$ ) с помощью сцинтилляционного спектрометрического метода. На основе измерения и экстраполирования дискриминационных кривых получили полные коэффициенты обратного рассеяния. Уменьшение шума фотоумножителя было достигнуто охлаждением измерительной головки. Для устранения поглощения излучения в воздушном слое, измерения проводились в вакуумной камере. Полученные результаты корректировались на поглощение в опорной фольге и в препарате.

Полученные значения коэффициентов обратного рассеяния в общем значительно выше, чем у остальных авторов. Установлено значительное влияние энергии падающего  $\beta$ -излучения на протекание этой зависимости. С возрастанием энергии спектра первоначального излучения значение коэффициента обратного рассеяния понижается.

Полученные до сих пор более низкие значения коэффициентов обратного рассеяния и то, что пока не было установлено такое влияние энергии объясняется тем, что в подобных геометрических условиях пока все измерения проводились со счетчиком Гейгера и поправка на поглощение в слое воздуха и окошке счетчика или не принималась во внимание, или выполнялась недостаточно.

Полученные экспериментальные данные, соответствующие некоторой действительной функции  $R = f(Z)$ , можно описать или прерывной функцией, которая является линейной в интервале отдельных периодов, или непрерывной экспоненциальной регрессивной функцией. Вследствие того, что точность применения этих функций взаимно статистически заметно не отличается, можно их обе использовать с одинаковым успехом.

*Preložila T. Dillingarová*

## STUDIUM DER ABHÄNGIGKEIT DES KOEFFIZIENTEN DER $\beta$ -RÜCKSTREUUNG VON DER ORDNUNGSZAHL DES REFLEKTIERENDEN STOFFES

V. Kriváň

Lehrstuhl für Radiochemie und Strahlenchemie an der Slowakischen Technischen Hochschule, Bratislava

Es wurde die Abhängigkeit des  $\beta$ -Rückstreukoeffizienten von der Ordnungszahl des Streutargets mit Hilfe der spektrometrischen Scintillationsmethode in isotroper Radiationsgeometrie (Strahlungsquelle direkt auf dem reflektierenden Medium aufgetragen) und einer Detektionsgeometrie  $\Omega = 1$  sr ( $2\beta = 65^\circ$ ) untersucht. Auf Grund der Aufnahme und Extrapolation der Diskriminationskurven wurden totale Rückstrefaktoren erhalten. Die Erniedrigung des Rauschens des Sekundärelektronenvervielfachers wurde durch



Kühlen des Messkopfes erzielt. Die Messungen wurden in einer evakuierten Kammer ausgeführt — um die Absorption der Strahlung in der Luftschicht zu vermeiden. Die Messergebnisse wurden auf die Absorption der Primär- und Rückstreustrahlung in der Präparatträgerfolie und in der Präparatsubstanz korrigiert.

Die erhaltenen Werte liegen im allgemeinen beträchtlich höher als die von der Mehrheit der anderen Autoren. Es wurde ein bedeutender Einfluß der Energie von  $\beta$ -Strahlung auf die untersuchte Abhängigkeit gefunden. Der Wert des Rückstreukoeffizienten nimmt mit der Steigerung des energetischen Wertes der ursprünglichen Strahlung ab.

Wenn bis zu dieser Zeit nur niedrige Werte des Koeffizienten der Rückstreuung erhalten wurden und ferner nicht so ein Einfluß der Energie der Strahlung gefunden wurde — hängt mit der Tatsache zusammen, daß bei allen bisherigen Arbeiten, die mit der gegebenen Versuchsgeometrie ausgeführt worden sind, zur Messung ein GM-Zählrohr benutzt worden war, und die Korrektur der Absorption sowohl in der Luftschicht, als auch im Fenster des Zählrohres vernachlässigt oder nur unzureichend ausgeführt worden ist.

Die Approximation der Funktion  $R = f(Z)$  anhand der erhaltenen Ergebnisse kann entweder durch eine kontinuierliche exponentielle Regressionsfunktion, oder in Grenzen der einzelnen Perioden durch lineare Funktionen vorgenommen werden. Die beiden alternativen Möglichkeiten der Approximation unterscheiden sich statistisch nicht bedeutend und können daher als gleichwertig betrachtet werden.

Preložil V. Jesenák

#### LITERATÚRA

1. Kriváň V., *Kandidátska dizertačná práca*. Chemická fakulta SVŠT, Bratislava 1964.
2. Seliger H. H., *Phys. Rev.* **88**, 408 (1952).
3. Sucor F., Charpak G., *J. phys. radium* **13**, 1 (1952).
4. Christian D., Dunning W. W., Martin D. S., *Nucleonics* **10** (5), 41 (1952).
5. Brownell G. L., *Nucleonics* **10** (6), 30 (1952).
6. Müller R. H., *Anal. Chem.* **29**, 969 (1957).
7. Yaffe L., Justus K. M., *J. Chem. Soc. (London)* **2**, 341 (1949).
8. Buys W. L., *Z. Physik* **157**, 478 (1960).
9. Zumwalt R. L., AECU-567, U. S. Atomic Energy Commission, Technical Information Service, Oak Ridge 1950.
10. Englekemeier D. W. v zborníku: *Radiochemical Studies*, Nat. Nucl. Energy Series IV — 9, str. 5. Mc Graw-Hill Book Comp., New York 1951.
11. Glendenin L. E., Solomon A. K., *Science* **112**, 623 (1950).
12. Hettler A., *J. phys. radium* **19**, 923 (1954).
13. Kulikov I. S., *Zavodskaja lab.* **13**, 79 (1954).
14. Bogdanov N. A., Rejtblat V. L., Funke V. F., Žuchovickij A. A., *Sbornik trudov Moskovskogo instituta stali*, 34. Moskva 1955.
15. Alimarin J. P., Ženevská konferencia 1955, ref. P/706.
16. Crompton C. E., Ženevská konferencia 1955, ref. P/164.
17. Danguy L., Grard F., Ženevská konferencia 1958, ref. V 19.
18. Thümmel H. W., *Nukleonik* **6**, 65 (1964).
19. Katz L., Penfold R. S., *Rev. Modern Phys.* **24**, 28 (1952).
20. Kanter H., *Phys. Rev.* **121**, 461 (1961).
21. Kanter H., Sternglass E. J., *Phys. Rev.* **126**, 620 (1962).

22. Metrology of Radionuclides Proceeding Symposium organized by the IAEA, Vienna 14–16 October 1959.
23. Campion P. J., Taylor J. G. v., Merritt J. S., v [22], 227.
24. Lane R. O., Zaffarano D. J., *Phys. Rev.* **94**, 960 (1954).
25. Snyman G. C., Clayton C. G., *Int. J. Appl. Rad. Isotopes* **14** (4), 183 (1962).
26. Kanter H., *Ann. Physik* **20**, 144 (1957).
27. Braun J., v [22], 127.
28. Pate B. D., v [22], 163.
29. Yaffe L., Fishman J. B., v [22], 185.
30. Thümmel H. W., Kriváň V., *Nukleonik* **6**, 379 (1964).
31. Felix M., Bláha K., *Matematickostatistické metody v chemickém průmyslu*, 326. Státní nakladatelství technické literatury, Praha 1962.

Do redakcie došlo 1. 2. 1965

*Adresa autora:*

*Inž. Viliam Kriváň, CSc., Katedra rádiochemie a radiačnej chémie SVŠT, Bratislava, Jánska 1.*