



Nemzeti Népegészségügyi Központ

Sugárbiológiai és Sugáregészségügyi Főosztály (SSF)

Orvosi, Lakossági és Munkahelyi Sugáregészségügyi Osztály (OLMSO)

1221 Budapest, Anna utca 5.

„Önöknél mekkora a felezési idő?”

Osváth Szabolcs

Sugárvédelmi Továbbképző Tanfolyam

Zalakaros, 2021. szeptember 14-16.

A felezési idő...

... a kémiában

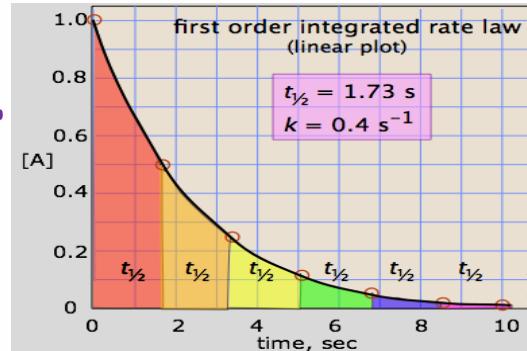
- Elsőrendű kémiai reakciók

$$\left(-\frac{\partial c}{\partial t} \right) = v = k \cdot c$$

- Megoldás: $c(t) = c_0 \cdot \exp(-kt)$
- k : reakciósebességi állandó
(ami természetesen nem állandó)

$$k = A \cdot \exp\left(-\frac{E_{akt}}{R \cdot T}\right)$$

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{k}$$



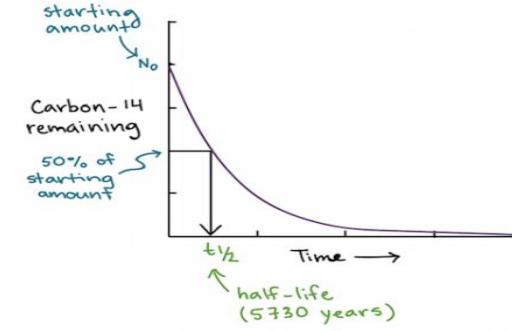
... és nálunk

- Radioaktív bomlás

$$\left(-\frac{\partial N}{\partial t} \right) = A = \lambda \cdot N$$

- Megoldás: $N(t) = N_0 \cdot \exp(-\lambda t)$
- λ : bomlási állandó
(ami tényleg állandó)

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda}$$





Változnak a bomlási állandók? Pro

- Jere H. Jenkins, Ephraim Fischbach, John B. Buncher, John T. Gruenwald, Joshua J. Mattes (2009): Evidence of correlations between nuclear decay rates and Earth–Sun distance. *Astroparticle Physics* 32:42–46
- *Unexplained periodic fluctuations in the decay rates of ^{32}Si and ^{226}Ra have been reported by groups at Brookhaven National Laboratory (^{32}Si), and at the Physikalisch–Technische Bundesanstalt in Germany (^{226}Ra). We show from an analysis of the raw data in these experiments that the observed fluctuations are strongly correlated in time, not only with each other, but also with the time of year. We discuss both the possibility that these correlations arise from seasonal influences on the detection system, as well as the suggestion of an annual modulation of the decay rates themselves which vary with Earth–Sun distance.*
- Lehetséges magyarázat: a Napból érkező (szoláris) neutrínók indukálják a bomlást.
- Azóta (2020 decemberéig): 172 közlemény pro és kontra



Változnak a bomlási állandók? Pro

- Fischbach, E., Jenkins, J.H., Sturrock, P.H. (2011): Evidence for time-varying nuclear decay dates: experimental results and their implications for new physics. arXiv:1106.1470.
- Sturrock, P.A., et al. (2013): An analysis of apparent r-mode oscillations in solar activity, the solar diameter, the solar neutrino flux, and nuclear decay rates, with implications concerning the Sun's internal structure and rotation, and neutrino processes. *Astropart Phys* 42:62–69.
- Sturrock, P.A., et al. (2014): Comparative study of beta-decay data for eight nuclides measured at the Physikalisch-Technische Bundesanstalt. *Astropart Phys* 59:47–58.
- Sturrock, P.A., Fischbach, E., Parkhomov, A.G., Scargle, J.D., Steinitz, G. (2015): Concerning the variability of beta-decay measurements. arXiv:1510.05996.
- Sturrock, P.A., Fischbach, E., Scargle, J.D. (2016): Comparative analyses of Brookhaven National Laboratory nuclear decay measurements and Super-Kamiokande solar neutrino measurements: neutrinos and neutrino-induced beta-decays as probes of the deep solar interior. *Sol. Phys.* 291:3467–3484.
- Sturrock, P.A., Fischbach, E., Scargle, J.D. (2017): Indications of an Influence of Solar Neutrinos on Beta Decays. <http://www.2physics.com/2017/01/indications-of-influence-of-solar.html>
- McDuffie, M.H., Graham, P., Eppele, J.L., Gruenwald, J.T., Javorsek, D., II, Krause, D.E., Fischbach, E. (2020): Anomalies in radioactive decay rates: A bibliography of measurements and theory. arXiv:2012.00153v2



Változnak a bomlási állandók? Kontra

- Kossert and Nähle (2014): Long-term measurements of ^{36}Cl to investigate potential solar influence on the decay rate. *Astropart Phys* 55:33-36
- Kossert and Nähle (2015): Disproof of solar influence on the decay rates of $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$. *Astropart Phys* 69:18-23
- Nähle and Kossert (2015): Comment on “Comparative study of beta-decay data for eight nuclides measured at the Physikalisch-Technische Bundesanstalt” [Astropart Phys 59, 47-58]. *Astropart Phys* 66:8-10
- Pommé et al. (2016): Evidence against solar influence on nuclear decay constants. *Phys Lett B* 761:281-286
- Pommé et al. (2017): On decay constants and orbital distance to the Sun – Part I: alpha decay. *Metrologia* 54:1-18
- Pommé et al. (2017): On decay constants and orbital distance to the Sun – Part II: beta minus decay. *Metrologia* 54:19-35
- Pommé et al. (2017): On decay constants and orbital distance to the Sun – Part III: Beta plus and electron capture decay. *Metrologia* 54:36-50
- Pommé et al. (2018): Is decay constant? *Appl Radiat Isot* 134:6-12
- Jovana Knezevic, Dusan Mrdja, Kristina Bikit-Schroeder, Jan Hansman, Istvan Bikit, Jaroslav Slivka (2020): Search for variations of ^{22}Na decay constant. *Applied Radiation and Isotopes* 163, 109178



Mi a baj?

- Bizonyos ingadozásokat tagadhatatlanul meg lehet figyelni (főleg a gáztöltésű detektoroknál, amelyeknek viszonylag instabil a detektálási hatásfokuk).
- Stabilabb műszerekkel (pl. TDCR LSC) az ingadozások nagyságrendekkel kisebbek.
- Az ingadozások műszerről műszerre (és intézetről intézetre) eltérőek (és nem is periodikusak); tehát azokat helyi, és nem kozmikus hatások okozzák.
- Hőmérséklet, légnedvesség, radonkoncentráció, tehát (földi) környezeti hatások felelősek a mért jelek (nem pedig a mérődő fizikai mennyiségek) ingadozásáért.
- A szerzők nem feltétlenül vannak tisztában a feldolgozott adataik eredetével.
- detektor jele (számlálási sebesség) ≠ radioaktív bomlás (aktivitás)



Oké, hogy állandók – na de mekkorák?

Meghökkentő módon még ma is komoly kutatások zajlanak ezen a téren. A legutóbbi összefoglaló:

Karsten Kossert: Radionuclide metrology using LSC - Current status and limitations. Advances in Liquid Scintillation Spectrometry – LSC 2017; 1-5 May 2017, Copenhagen, Denmark

Measurement of long half-lives using LSC

- ^{10}Be : Chmeleff et al., Determination of the ^{10}Be half-life by multicollector ICP-MS and liquid scintillation counting. Nucl. Instrum. Meth B, 268 (2009) 192
- ^{40}K : Kossert, Günther, LSC measurements of the half-life of ^{40}K . Appl. Radiat. & Isot. 60 (2004) 459
- ^{41}Ca : Jörg et al., Precise and direct determination of the half-life of ^{41}Ca . Geochimica Cosmochimica Acta 88 (2012) 51-65.
- ^{79}Se : Jörg et al., Preparation of radiochemically pure ^{79}Se and highly precise determination of its half-life. Appl. Radiat. & Isot. 68 (2010) 2339.
- ^{87}Rb : Kossert, Half-life measurement of ^{87}Rb by liquid scintillation counting. Appl. Radiat. & Isot. 59 (2003) 377
- ^{147}Sm : Kossert, et al., High precision measurement of the half-life of ^{147}Sm . Appl. Radiat. & Isot. 67 (2009) 1702.
- ^{151}Sm : Bé et al., Determination of the ^{151}Sm half-life. Radiochimica Acta 103 (2015) 619-626
- ^{176}Lu : Kossert et al., Experimental half-life determination of ^{176}Lu . Appl. Radiat. & Isot. accepted (ICRM-LLRMT)
- ^{233}U : Pommé et al., Experimental determination of the ^{233}U half-life. Metrologia 46 (2009) 439.
- ^{228}Th : Kossert, Nähle: Activity determination of ^{228}Th by means of liquid scintillation counting. LSC2010, Advances in Liquid Scintillation Spectrometry: Proceedings of the 2010 International Conference on Liquid Scintillation Spectrometry, Paris, France, 6-10 September 2010
- ^{229}Th : Kossert et al.: Activity determination of ^{229}Th by means of LS counting. Appl. Radiat. Isot. (2014) 274
- $^{227}\text{Ac}, ^{223}\text{Ra}$: Kossert et al.: Activity determination of ^{227}Ac and ^{223}Ra by means of liquid scintillation counting and determination of nuclear decay data. Applied Radiation and Isotopes 95 (2015) 143
- ^{243}Am : Marouli, M., Pommé, S., Jobbágy, V. et al. Absolute and relative measurement of the ^{243}Am half-life. J Radioanal Nucl Chem 326 (2020) 1785–1793



Oké, hogy állandók – na de mekkorák?

- Hogyhogyan nem tudjuk még ma sem pontosan, hogy mekkora a felezési idő? (Hosszú élettartamú radionuklidra gondolunk!)
- Több oka lehet: kevés a vizsgálat, pontatlanok és instabilak a műszerek, más nuklidok szennyezik a mintát stb.
- Miért nem érdekelt eddig senkit?
- Nem volt gyakorlati jelentősége – nem sok kutató látott benne fantáziát.
- És most miért lett fontos?
- Talán mert egyre több atomreaktort szerelnek le. A leszerelési hulladékok kezelése kapcsán olyan hosszú élettartamú radionuklidokkal is számolni kell, melyekkel korábban nem sokan törődtek.



A felezési idők bizonytalansága

- ^{93m}Nb : 4 – 16,1 év
- ^{93}Zr
 - $(1,13 \pm 0,11) \times 10^6$ év (9,7% bizonytalanság) – Yang J, Zhang S, Ding Y, Shu F, Zhang J (2010): A new value of ^{93}Zr half-life. Radiochim Acta 98(2):59-63 DOI 10.1524/ract.2010.1678
vagy
 - $(1,64 \pm 0,06) \times 10^6$ év (3,7% bizonytalanság) – Cassette P, Chartier F, Isnard H, Fréechou C, Laszak I, Degros JP, Bé MM, Lépy MC, Tartes I (2010): Determination of ^{93}Zr decay scheme and half-life. Appl Radiat Isot 68:122-130 DOI 10.1016/j.apradiso.2009.08.011
- ^{93}Mo : $(4,0 \pm 0,8) \times 10^3$ év (20% bizonytalanság)
- ^{129}I : $(1,57 \pm 0,07) \times 10^7$ év (4,5% bizonytalanság)
- ^{166m}Ho : $1132,6 \pm 3,9$ év (0,3% bizonytalanság) – Y Nedjadi, C Bailat, Y Caffari, P Froidevaux, C Wastiel, N Kivel, I Guenther-Leopold, G Triscone, F Jaquenod, F Bochud (2012): A new measurement of the half-life of ^{166m}Ho . Appl Radiat Isot 70 (2012) 1990-1996



Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 263, No. 3 (2005) 599–603

Half-life measurement of ^{126}Sn isolated from Hanford nuclear defense waste

S. A. Catlow, G. L. Troyer,* D. R. Hansen, R. A. Jones

S. A. CATLOW et al.: HALF-LIFE MEASUREMENT OF ^{126}Sn ISOLATED FROM HANFORD NUCLEAR DEFENSE WASTE

Table 3. Summary half-life data, ^{126}Sn

Investigator	Reported	$T_{1/2}$, years	Error, (1σ), %
ORTH and DROPSKY ⁸	1958	$1.00 \cdot 10^{+05}$	50.0
ZHANG et al. ⁶	1996	$2.47 \cdot 10^{+05}$	8.0
HAAS et al. ⁴	1996	$2.07 \cdot 10^{+05}$	10.1
OBERLI et al. ⁵	1999	$2.35 \cdot 10^{+05}$	3.0
This report	2003	$2.33 \cdot 10^{+05}$	4.1
Radiochimica Acta 97(12): 687-694	2009	$1.980(57) \times 10^5$ év	2.9

Bienvenu, P., Ferreux, L., Andreoletti, G., Arnal, N., Lépy, M.-C., Comte, J., Bé, M.-M., 2009. Determination of ^{126}Sn half-life from ICP-MS and gamma spectrometry measurements. *Radiochimica Acta*, Accepted for publication in *Radiochimica Acta*.

The Lund/LBNL Nuclear Data Search (1999)
<http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>: $\sim 1 \times 10^5$ y



^{126}Sn

- Bienvenu P, Ferreux L, Andreoletti G, Arnal N, Lépy M-C, Comte J, Bé M-M
- Determination of ^{126}Sn half-life from ICP-MS and gamma spectrometry measurements
- Radiochimica Acta — 2009, Volume 97, Issue 12, pp. 687-694
- DOI: 10.1524/ract.2009.1673
- A new value of ^{126}Sn half-life was determined by combination of inductively coupled plasma-mass spectrometry (ICP-MS) and gamma spectrometry measurements on purified sample solutions collected from nuclear fuel reprocessing. ^{126}Sn was isolated through dissolution of fission product precipitates and liquid-liquid extraction with N-benzoyl-N-phenyl-hydroxylamine (BPHA). The abundance of ^{126}Sn atoms together with the absence of interfering species in the analysed solutions made it possible to measure both mass concentration and nuclide activity with high precision and accuracy. This led to a ^{126}Sn half-life value of $1.980(57) \times 10^5$ a.

For this approach, basically three troublesome aspects touching these inconsistencies can be identified:

- (a) ^{79}Se is a pure low-energy beta emitter, therefore the chemical separation procedure must be highly efficient and must provide very high decontamination factors (DF) to allow for an interference-free measurement of activity A by LSC. This requirement is even more challenging, since the only sources of significant amounts of ^{79}Se are irradiated nuclear fuel samples, which contain a mixture of radiation emitters that is governed by the fission yield and respective radiochemical equilibria. Activation products of fuel and structural material further contribute to the nuclide budget.
- (b) Activity A must be determined accurately by LSC, which in the case of a low-energy nuclide like ^{79}Se is not trivial. Sophisticated LSC methodology is required at this point and the shape of the beta emission spectrum must be taken into account.
- (c) The number N of ^{79}Se atoms in a sample must be precisely determined by means of mass spectrometry (MS). This technique in general encounters isobaric interferences, which for ^{79}Se , primarily, is stable ^{79}Br , an abundant element, present in trace amounts in any chemical. Here, too, an efficient chemical methodology supports further sophisticated instrumental means of isobar suppression.

The large scattering and low precision of ^{79}Se half-life data was the motivation for a new attempt to challenge all three of the aforementioned aspects and to determine the half-life by means of ICP-OES, LSC and HG-MC-ICP-MS.



Hogyan határozható meg egy radionuklid felezési ideje?

- A felezési idő „kimérése” (azaz a bomlásgörbe direkt felvétele) csak rövid felezési idejű radionuklidok esetében lehetséges.
- A hosszú felezési időket számolni kell.

$$A = \lambda \cdot N = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}} \cdot N \quad \Rightarrow \quad t_{1/2} = \ln(2) \cdot \frac{N}{A}$$

- A felezési idő meghatározásához két mérés szükséges:

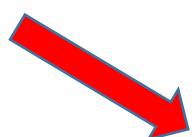
1. Aktivitás mérése pl.

- koincidenciakapcsolású β - γ detektorokkal,
- folyadékszintillációval,
- TDCR LSC-vel

2. Az atomok számának meghatározása

- leginkább tömegtömegspektrometriával

Bármilyen aktivitás zavar(hat)



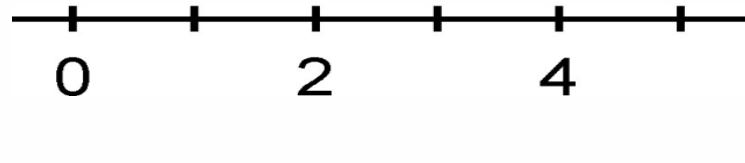
Az izomer nuklidok zavarnak.



Nagyon tiszta mintára van szükség!
(Ahhoz pedig nagyon hatékony radiokémiai elválasztásra.)

Table 1
⁷⁹Se half-life, published values

	References	<i>T</i> (a)
<i>Historical values</i>		
1949	Parker et al.	$\leqslant 6.5 \times 10^4$
1951	Glendenin	$\geqslant 7 \times 10^6$
<i>Revised value</i>		
1993	Singh and Hermann	$\leqslant 6.5 \times 10^5$
<i>Measured values</i>		
1995	Yu et al.	4.8 (4) $\times 10^5$
1997	Jiang et al.	1.1 (2) $\times 10^6$
2000	He et al.	1.24 (19) $\times 10^5$
2002	Jiang et al.	2.95 (38) $\times 10^5$
2002	He et al.	2.80 (36) $\times 10^5$
<i>This work</i>		3.77 (19) $\times 10^5$



0 2 4

Table 1

^{79}Se half-life $T_{1/2}$ as published in literature with additional information on methodology for the determination of the number of ^{79}Se atoms; activity determined throughout by liquid scintillation counting (LSC).

Year publ.	References	$T_{1/2}$ in a	Relative uncertainty in %	Methodology for determination of ^{79}Se ratio
1948	Glendenin	$\geq 7.0 \times 10^6$	n.d.	Approximated fission yield
1949	Parker et al. ^a	$\leq 6.5 \times 10^4$	n.d.	MS
1993	Singh and Hermann ^b	$\leq 6.5 \times 10^5$	n.d.	Not experimental
1995	Yu et al.	$4.8(4) \times 10^5$	8.3	Number of fissions by monitors
1997	Jiang et al.	$1.1(2) \times 10^6$	18.2	AMS
1997	Li et al.	$1.13(17) \times 10^6$	15.0	AMS
2000	He et al.	$1.24(19) \times 10^5$	15.3	PX-AMS
2001	Jiang et al.	$2.95(38) \times 10^5$	12.9	PX-AMS
2002	Jiang et al.	$2.95(38) \times 10^5$	12.9	AMS
2002	He et al.	$2.80(36) \times 10^5$	12.9	PX-AMS
2006	Zhou and Wu ^c	5.60×10^5	n.d.	Not experimental
2007	Bienvenu et al.	$3.77(19) \times 10^5$	5.0	ETV-ICP-MS
2010	This work	$3.27(8) \times 10^5$	2.4	HG-MC-ICP-MS
2014	Dou et al.	$2.78(18) \times 10^5$	6.5	AMS

AMS: Accelerator mass spectrometry.

PX-AMS: Projectile X-ray AMS.

ETV-ICP-MS: Electrothermal vaporization inductively coupled plasma mass spectrometry.

HG-MC-ICP-MS: Hydride-generation multi-collector ICP-MS.

^a According to Singh and Hermann presumably error in calculation.

^b Re-evaluation of the value of Parker et al.

^c Calculation based on purely nuclear data.

to be $(2.78 \pm 0.18) \times 10^5$ a and the relative standard deviation is 6.5%. This result is similar with the value of $(2.95 \pm 0.38) \times 10^5$ a (Jiang and He et al., 2002). Com-



**Köszönöm a megtisztelő
figyelmet!**

osvath.szabolcs@osski.hu

osvath.szabolcs@nnk.gov.hu