



Moeder–Dochter Relatie en Natuurlijke Radioactiviteit

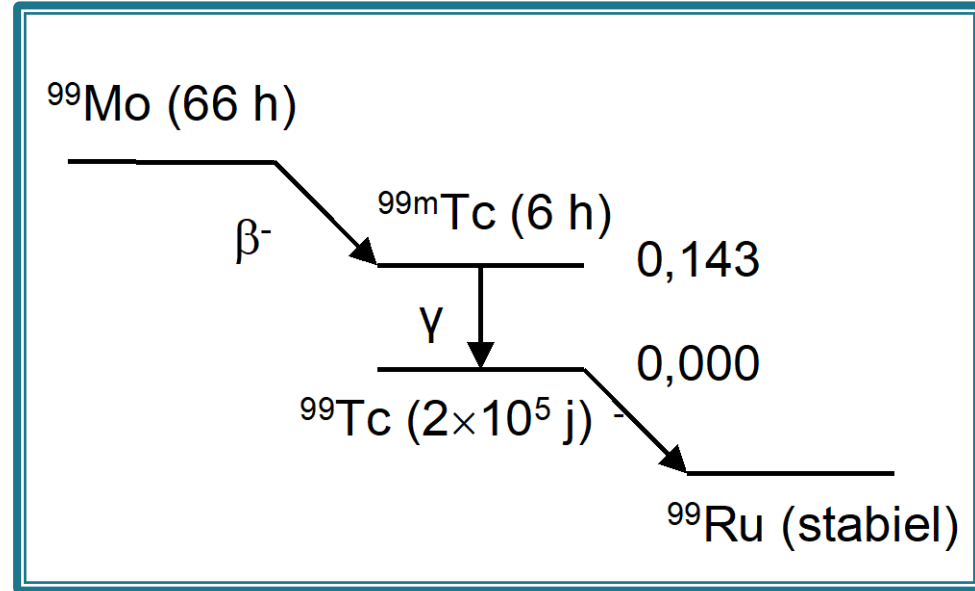
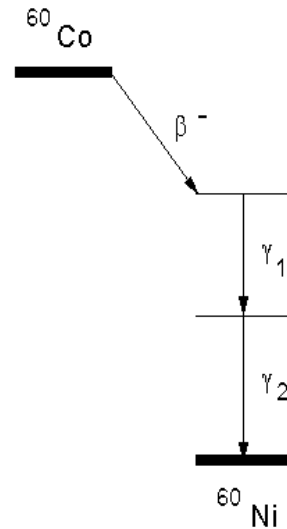
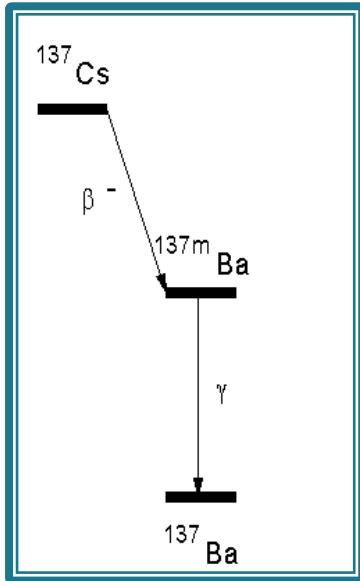
Cursus Stralingsveiligheid CD 2022–2023

M.A. Hofstee

Mariet.hofstee@maastrichtuniversity.nl

Hoofdstuk 5.7 en 19

Vervalschemas

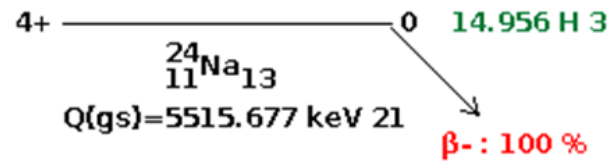


Emissiewaarschijnlijkheid

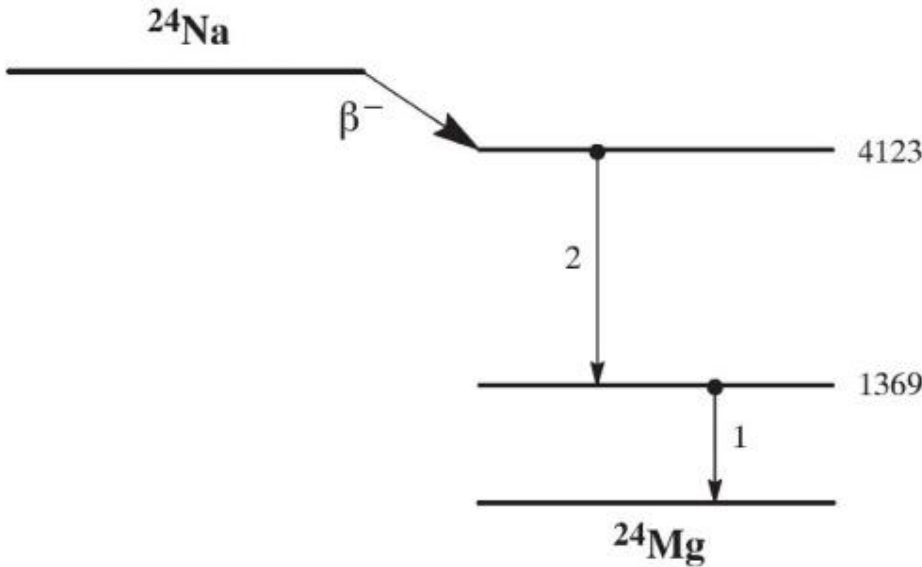


- ▶ γ of f in $(\text{Bq s})^{-1} =$ emissiewaarschijnlijkheid (Engels: yield), de kans dat in een verval een deeltje (van die energie) wordt uitgezonden.
 - Voorbeeld: Bij β^+ verval (100%) van ^{11}C komen twee 511 keV fotonen vrij, dus de $\gamma = 2 (\text{Bq s})^{-1}$

24-Na

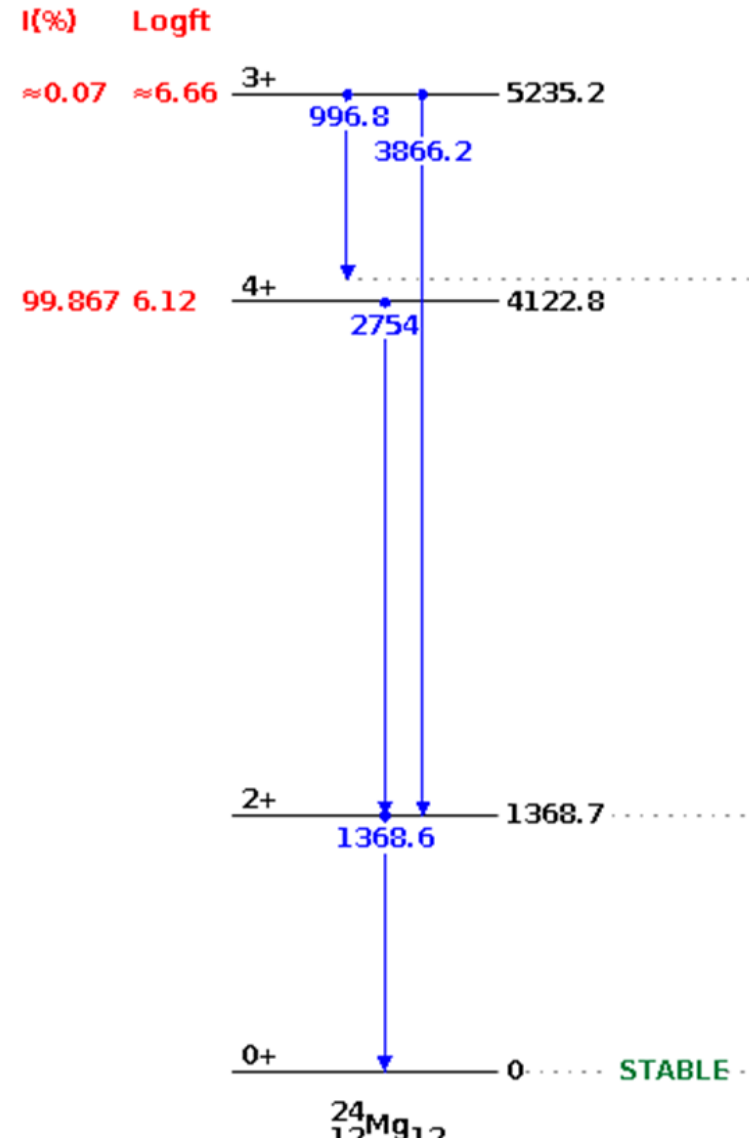


Vervalschema (vereenvoudigd)



Belangrijkste uitgezonden straling

Straling	$y \text{ (Bq}\cdot\text{s)}^{-1}$	$E \text{ (keV)}$
β^-	0,999	554 1390
γ_1	1,000	1369
γ_2	0,999	2754



Oefening



Het radionuclide ^{137}Cs vervalt met een emissiewaarschijnlijkheid $f_{\beta_1} = 0,944$ naar $^{137\text{m}}\text{Ba}$ onder uitzending van een β^- -deeltje met $E_{\beta_1, \text{max}} = 0,514$ MeV, en in de overige gevallen vervalt het rechtstreeks naar de grondtoestand van ^{137}Ba . De energie van het isomere niveau $^{137\text{m}}\text{Ba}$ is 662 keV, en de conversiecoëfficiënt van de isomere overgang is $\alpha = 0,110$.

- bereken de energie $E_{\beta_2, \text{max}}$ van de β^- -overgang naar de grondtoestand van ^{137}Ba
- bereken de emissiewaarschijnlijkheid van het γ -foton
- teken het vervalschema met alle gegevens

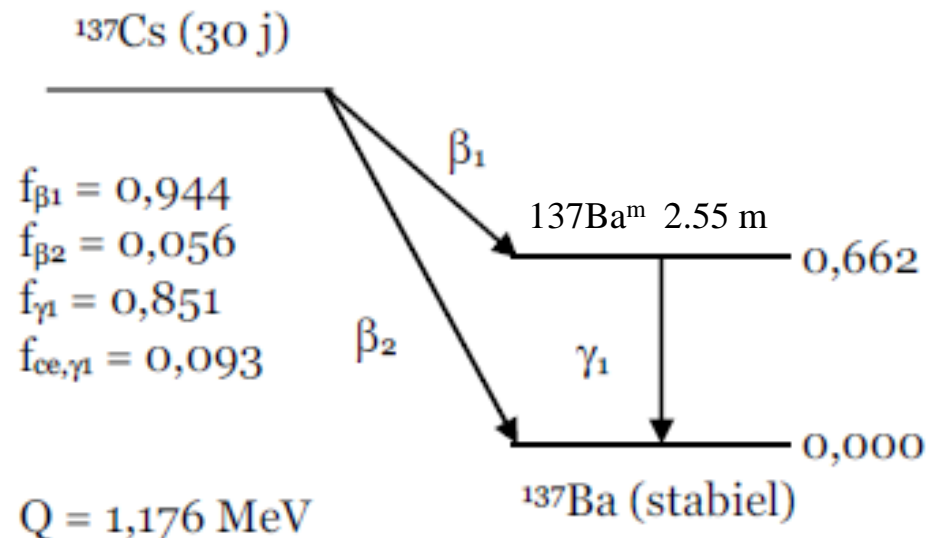
- $$E_{\beta_2, \text{max}} = 0,514 + 0,662$$

$$= 1,176 \text{ MeV} = Q$$
- $$f_{\gamma_1} = f_{\beta_1} \times N_{\gamma_1} / (N_{\gamma_1} + N_{\text{ce}, \gamma_1})$$

$$= f_{\beta_1} / (1 + N_{\text{ce}, \gamma_1} / N_{\gamma_1}) = f_{\beta_1} / (1 + \alpha)$$

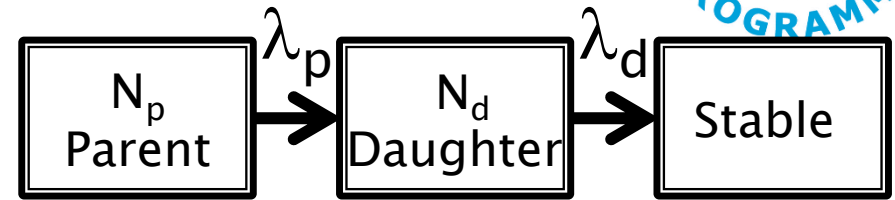
$$= 0,944 / 1,110 = 0,85$$
- $$f_{\beta_2} = 1 - f_{\beta_1} = 1 - 0,944 = 0,056$$

$$f_{\text{ce}, \gamma_1} = \alpha \times f_{\gamma_1} = 0,110 \times 0,85 = 0,0935$$

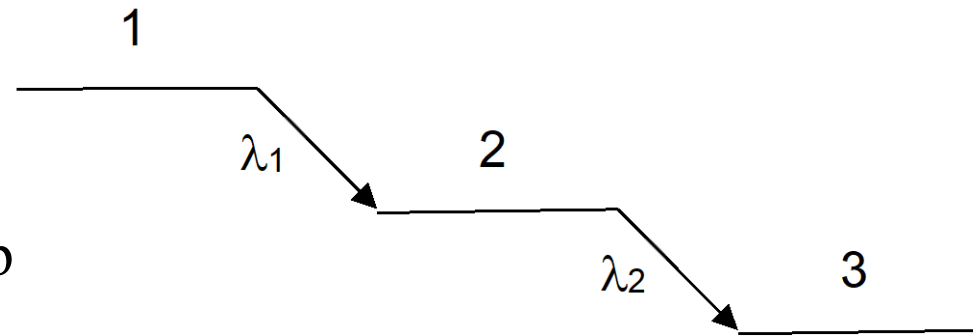


Moeder-dochter relatie

$$\frac{dN_p}{dt} = -\lambda_p N_p$$



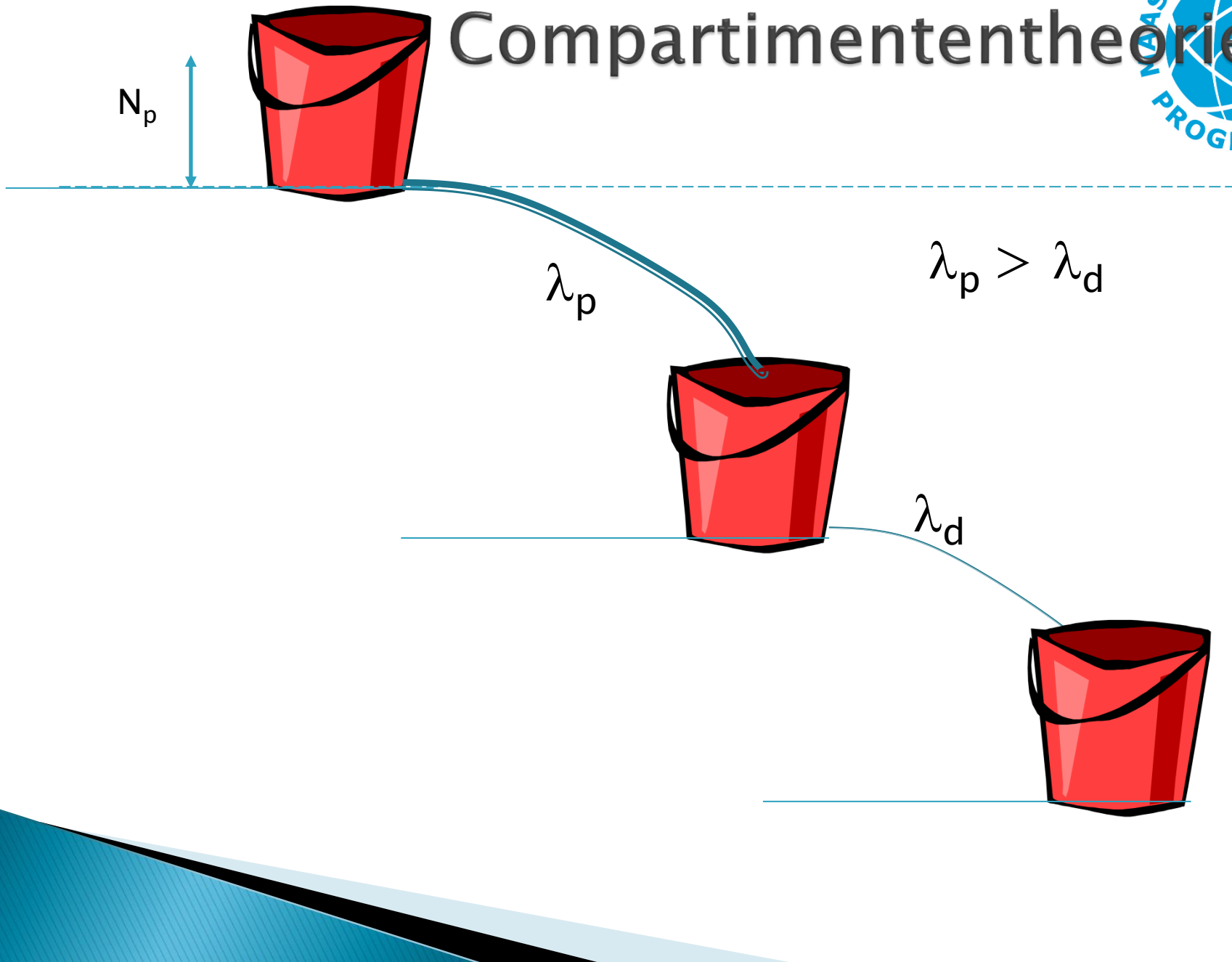
$$\frac{dN_d}{dt} = -\lambda_d N_d + \lambda_p N_p$$



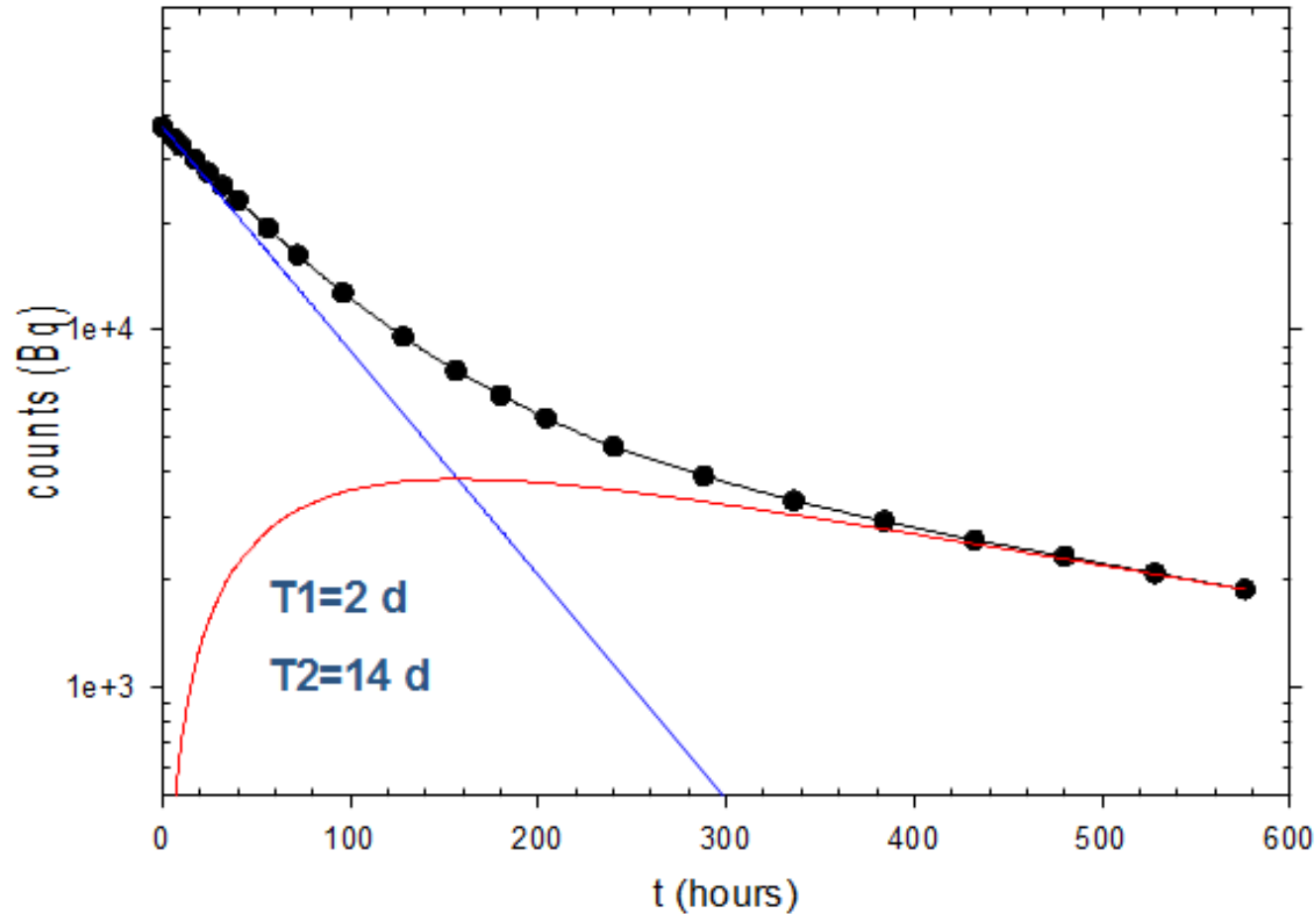
$$A_d = A(0) \frac{\lambda_p}{\lambda_d - \lambda_p} \left[\exp(-\lambda_p t) - \exp(-\lambda_d t) \right]$$

(met $A_d(0)=0$ en $BR = 100\%$)

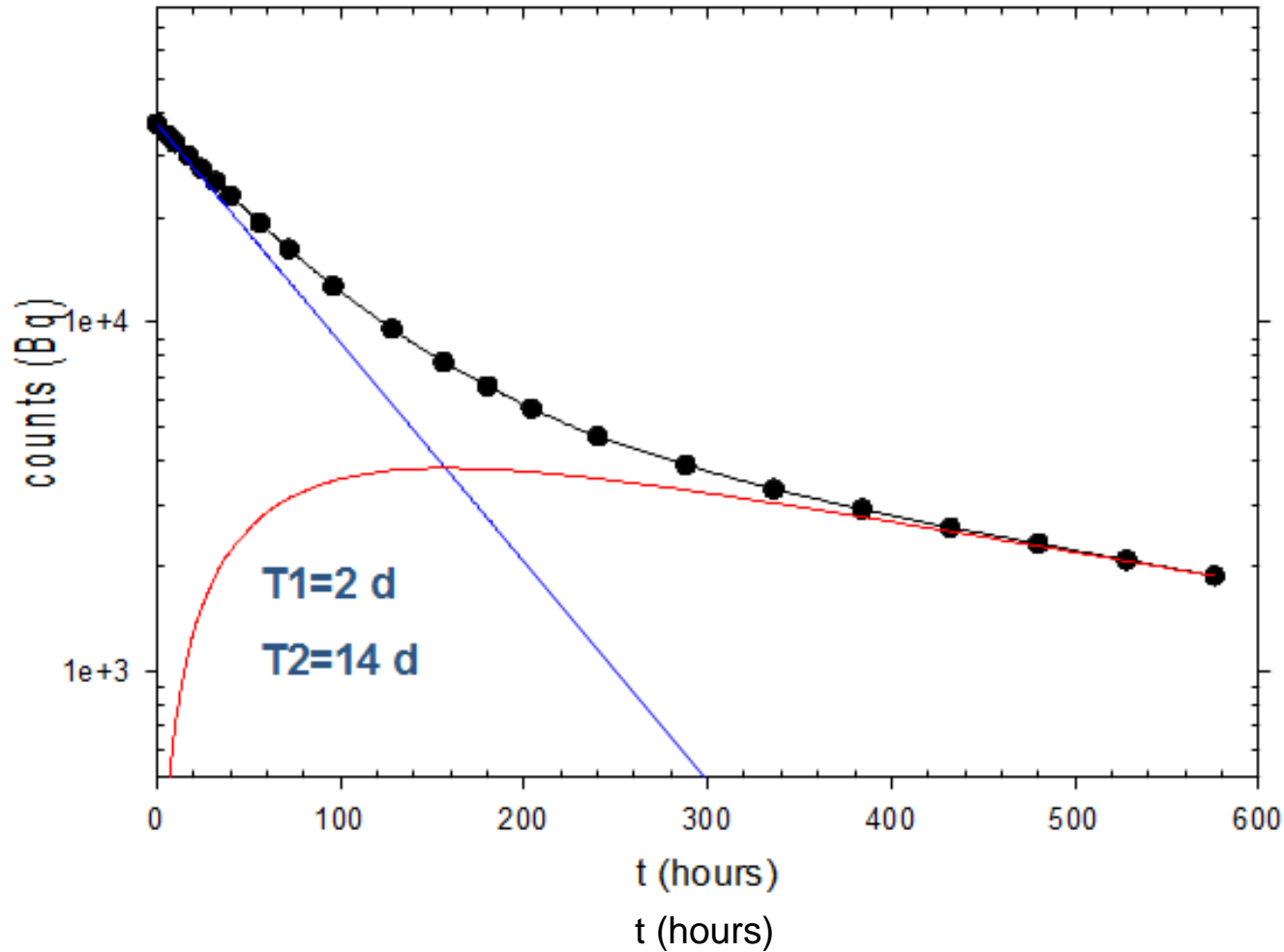
Compartimententheorie



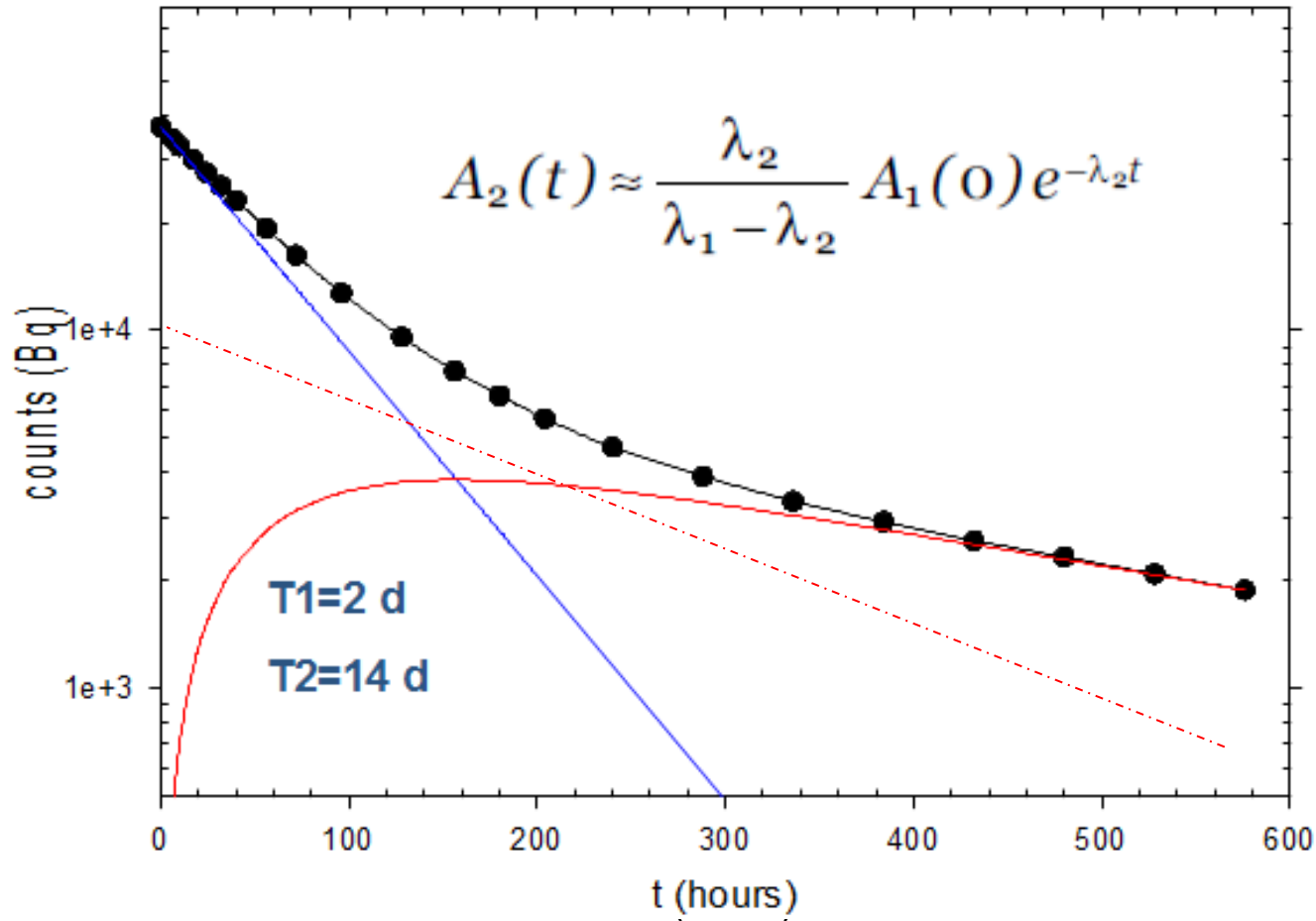
Geen evenwicht: $T1 < T2$

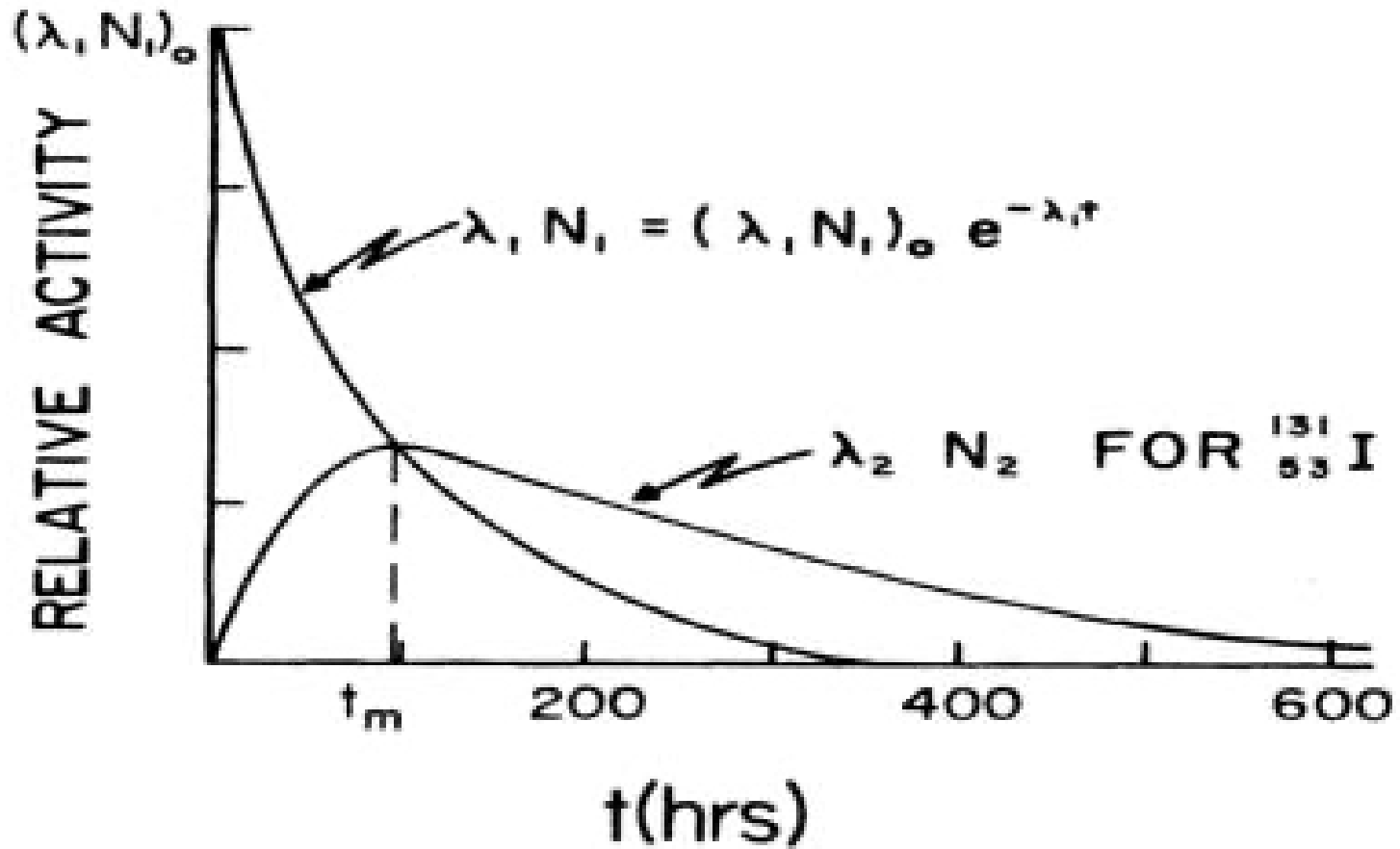
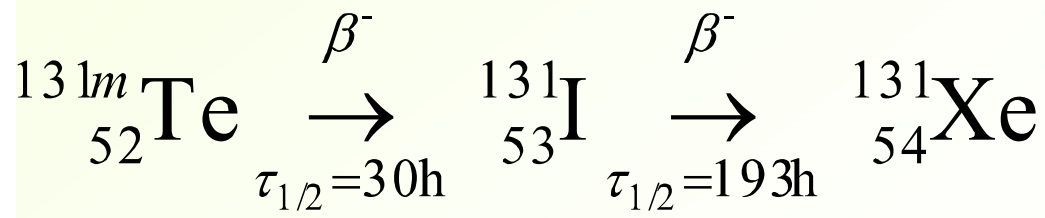


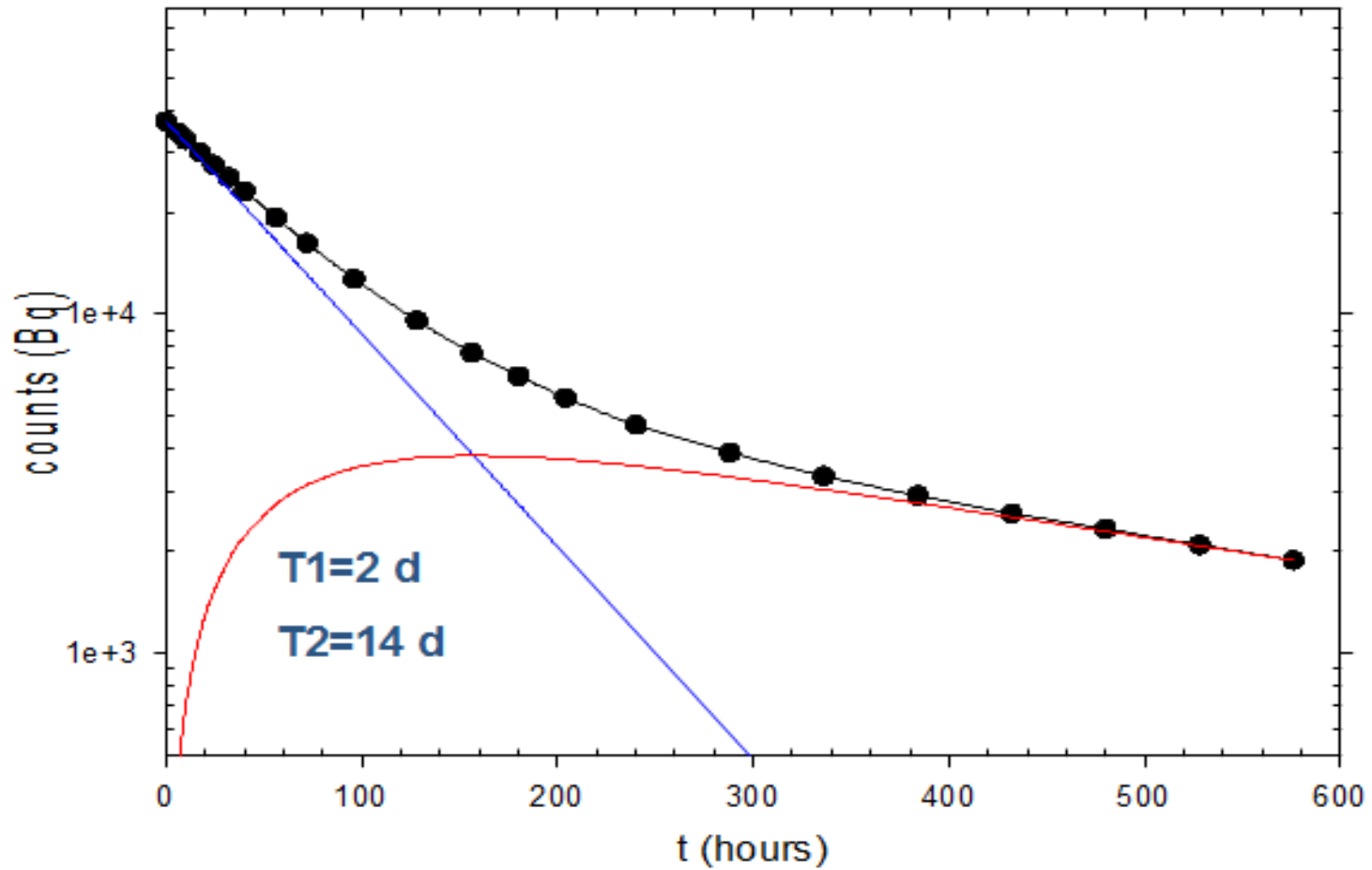
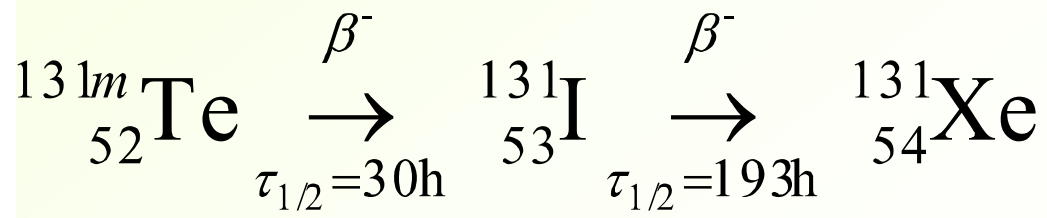
Geen evenwicht: $T1 < T2$

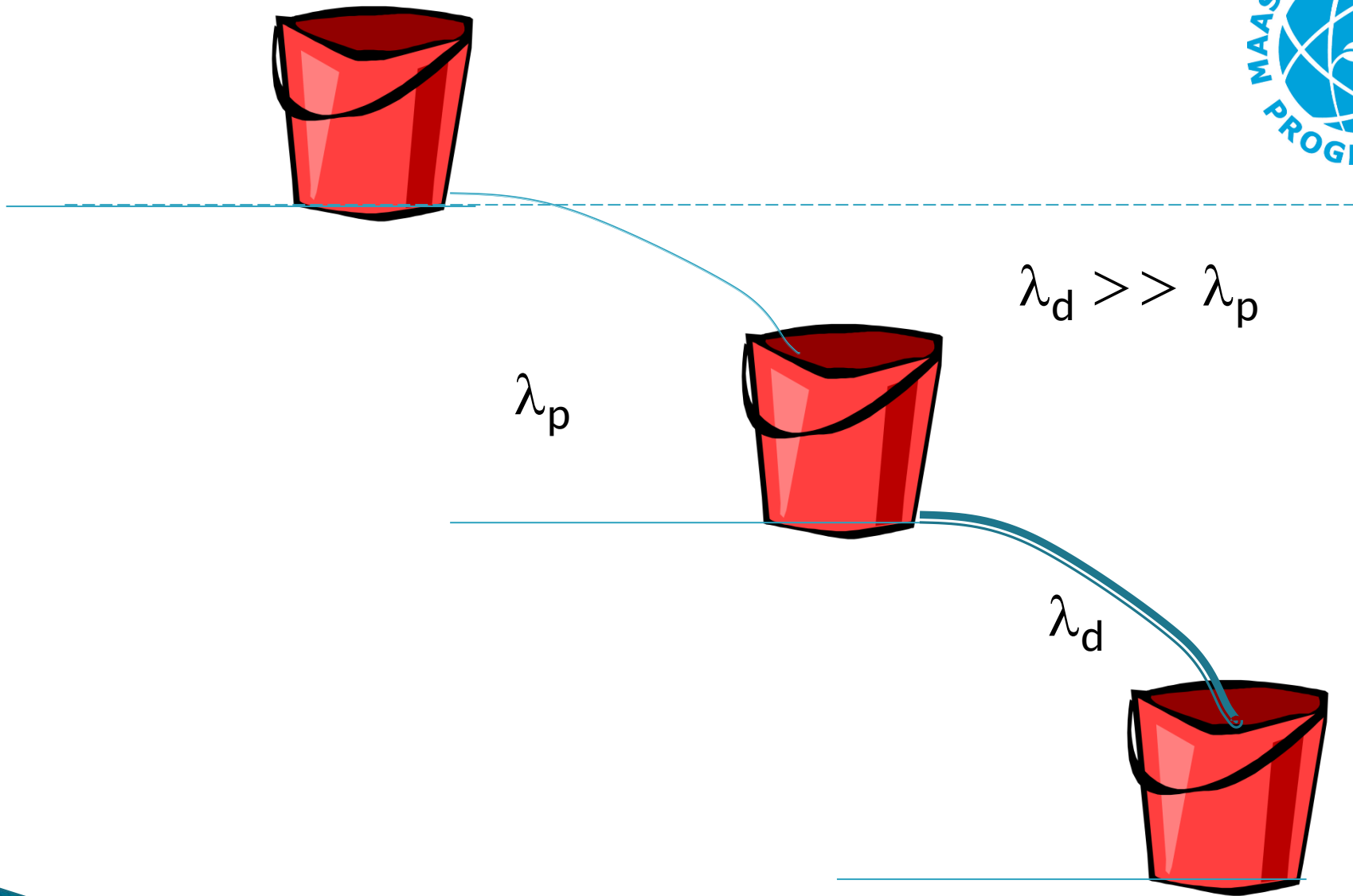


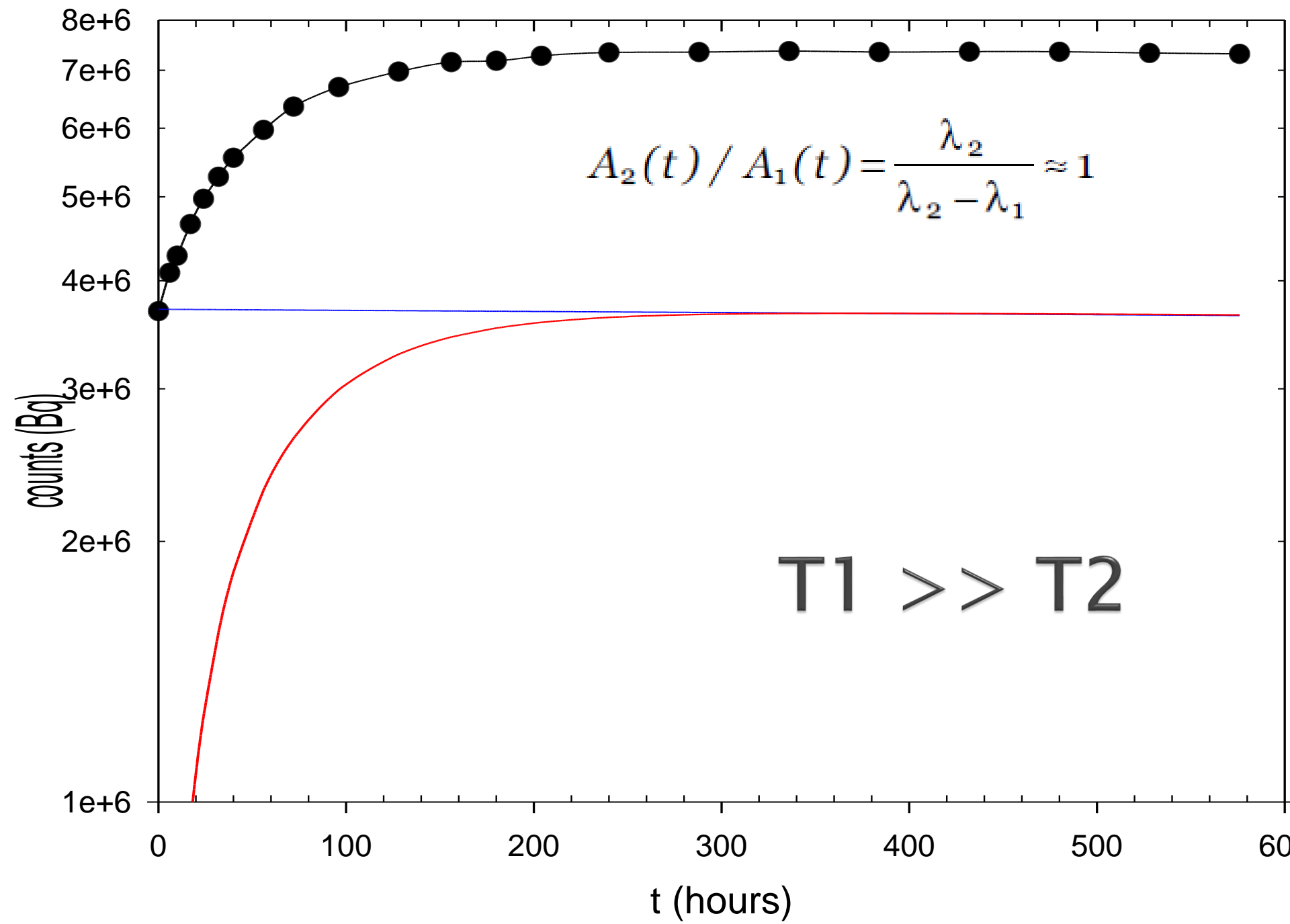
Geen evenwicht: $T1 < T2$

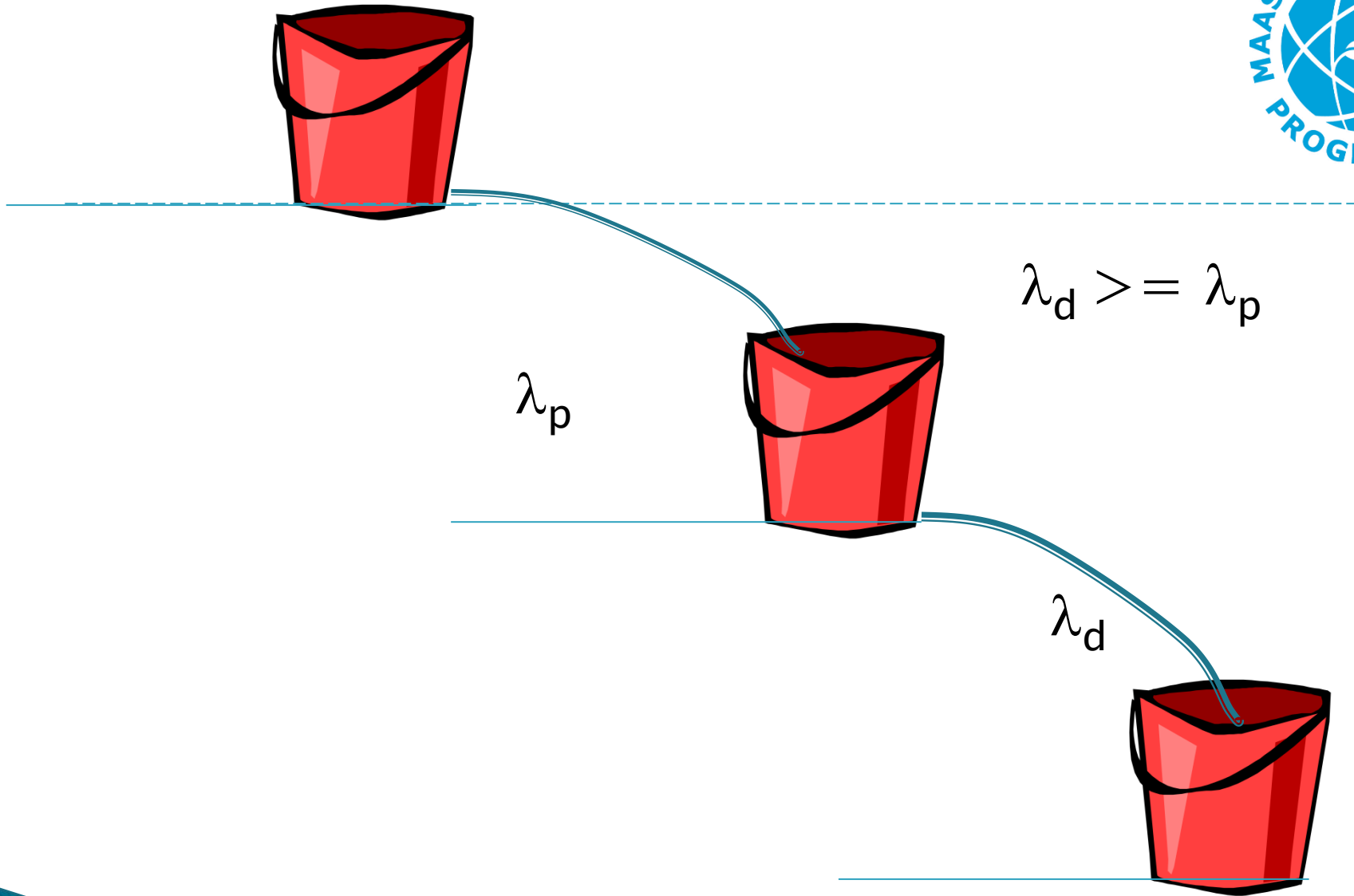




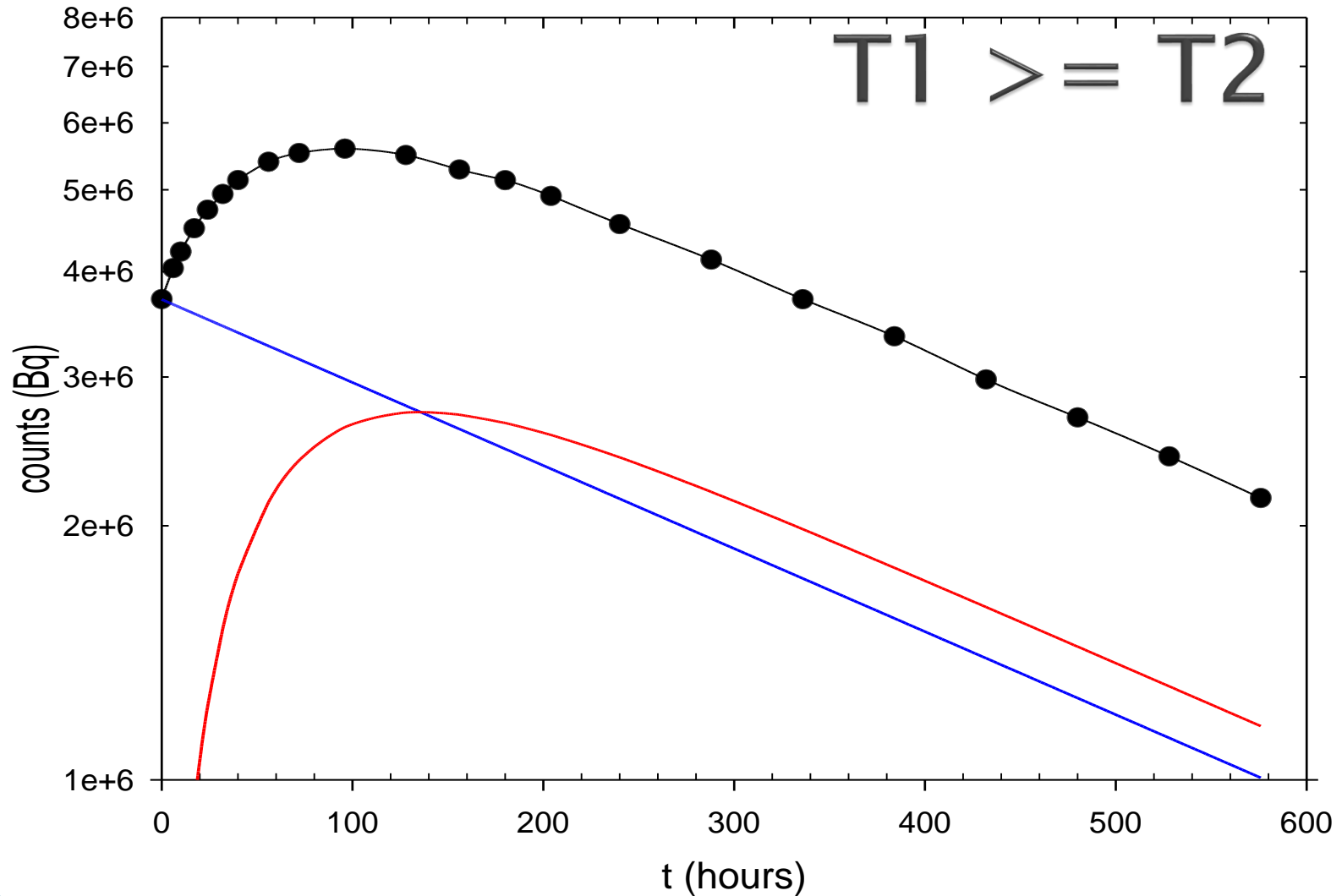
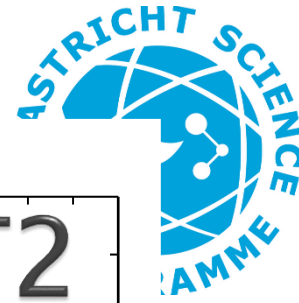








Radiochemisch Evenwicht



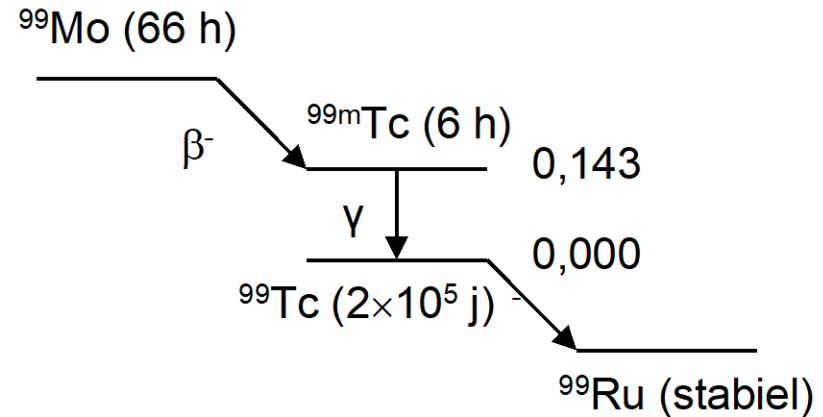
Bijvoorbeeld ^{99}Mo en $^{99}\text{Tc}^m$

Oefening



11 Het radionuclide ^{99}Mo vervalt via de kort levende isomere toestand $^{99\text{m}}\text{Tc}$ naar de grondtoestand van ^{99}Tc . Dit radionuclide heeft een lange halveringstijd en vervalt op zijn beurt naar stabiel ^{99}Ru . Op tijdstip $t = 0$ heeft men 1,0 GBq zuiver ^{99}Mo .

- wat zijn de activiteiten van ^{99}Mo en $^{99\text{m}}\text{Tc}$ op tijdstip $t = 6 \text{ h}$?
- wat zijn de activiteiten van ^{99}Mo en $^{99\text{m}}\text{Tc}$ op tijdstip $t = 66 \text{ h}$?
- wat is de activiteit van ^{99}Tc op tijdstip $t = 660 \text{ h}$?
- wat is de activiteit van ^{99}Tc op tijdstip $t = 2 \times 10^5 \text{ j}$?



Antwoord

^{99}Mo vervalst met $T_{1/2} = 66 \text{ h}$

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ groeit eerst in met $T_{1/2} = 6 \text{ h}$ en vervalst vervolgens samen met ^{99}Mo met $T_{1/2} = 66 \text{ h}$

^{99}Tc groeit eerst in met $T_{1/2} = 66 \text{ h}$ en vervalst vervolgens met $T_{1/2} = 2 \times 10^5 \text{ j}$

merk op dat bij een moeder-dochterrelatie de ingroei altijd met de kortere en het verval altijd met de langere van de twee betrokken halveringstijden plaatsvindt

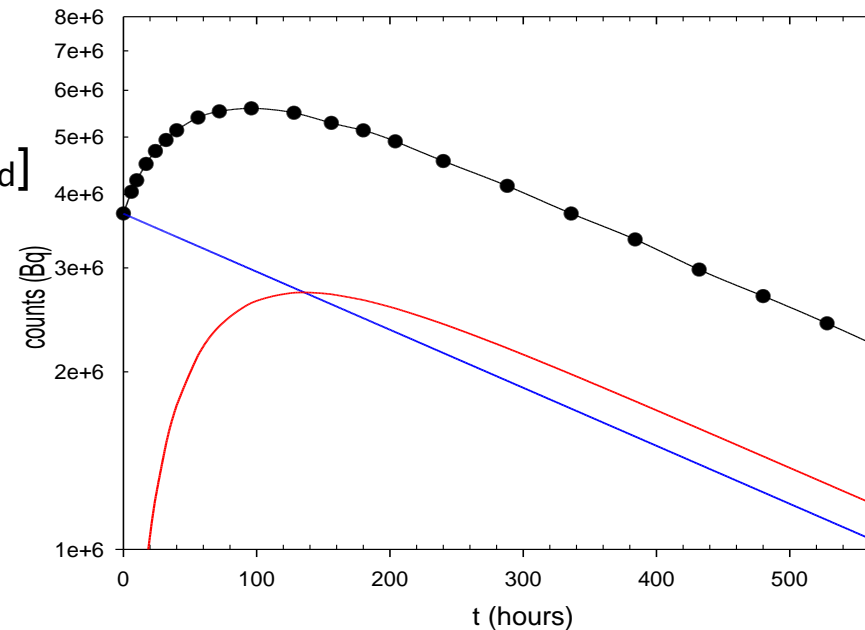
$$A_d = A_p(0) \lambda_d / (\lambda_d - \lambda_p) * [e^{-\lambda_p t} - e^{-\lambda_d t}]$$

$$A_d = A_p(0) 1/\tau_d / (1/\tau_d - 1/\tau_p) * [(1/2)^{-t/t_p} - (1/2)^{-t/t_d}]$$

$$A_d = A_p(0) 1/(1 - \tau_d/\tau_p) * [(1/2)^{-t/t_p} - (1/2)^{-t/t_d}]$$

$$A_p(0) = 1 \times 10^9 \text{ Bq}, A_d(0) = 0$$

$$A_p = A_p(0) e^{-\lambda_p t}$$



a) Mo is maar een beetje vervallen, invullen levert

$$A(6u) = A(0) (1/2)^{t/t_p} = 1 \text{ GBq } 0.5^{(6/66)} = 0.94 \text{ GBq}$$

^{99m}Tc is aan het ingroeien:

$$A_d = A_p(0) \frac{1}{(1 - T_{1/2d}/T_{1/2p})} * [\frac{1}{2}^{t/t_p} - \frac{1}{2}^{t/t_d}] =$$

$$1 \text{ GBq } \frac{1}{(1 - 6/66)} * [0.94 - 0.5] = 1.1 * 0.44 = 0.48$$

b) Mo is precies voor de helft vervallen

$$A(66u) = A(0) (1/2)^{t/t_p} = 1 \text{ GBq } 0.5 = 0.5 \text{ GBq}$$

^{99m}Tc is hiermee in evenwicht

$$A_d = A_p(0) \frac{1}{(1 - \tau_d/\tau_p)} * [\frac{1}{2}^{t/t_p} - \frac{1}{2}^{t/t_d}] =$$

$$1 \text{ GBq } \frac{1}{(1 - 6/66)} * [0.5 - 0.0005] = 1.1 * 0.5 = 0.55$$

c) Mo en dus ook ^{99m}Tc zijn nu vrijwel geheel vervallen, alles is nu ^{99}Tc geworden, dus $N_{\text{Tc}}(660u) = N_{\text{Mo}}(0)$

$$A_{\text{Tc}} = N_{\text{Mo}}(0) \lambda_{\text{Tc}} = A_{\text{Mo}}(0) / \lambda_{\text{Mo}} * \lambda_{\text{Tc}} = A_{\text{Mo}}(0) * \tau_{\text{Mo}} / \tau_{\text{Tc}}$$

$$= 1 \text{ GBq } 66u / (2 \times 10^5 \text{ j}) = 1 \times 10^9 * 66 / (2 \times 24 \times 365 \times 10^5)$$

$$= 38 \text{ Bq}$$

d) $2 \times 10^5 \text{ j}$ is een halfwaardetijd van ^{99}Tc ,

$A(660u) \approx A(0)$, dus na $2 \times 10^5 \text{ j}$ is er nog $38/2 = 19 \text{ Bq}$ over.

PAUZE

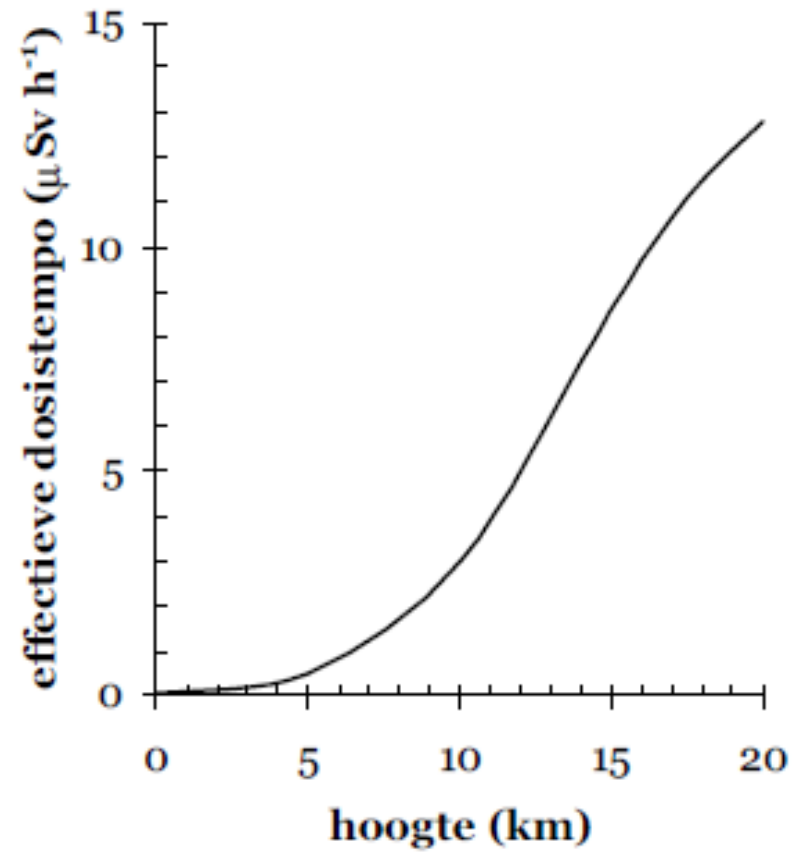
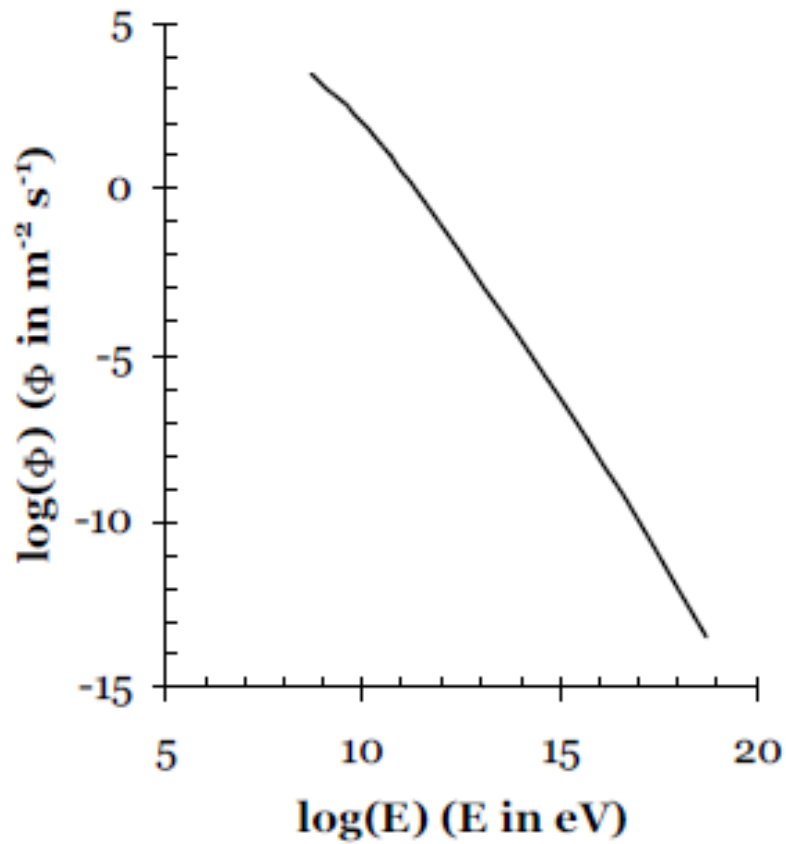


Natuurlijke Radioactiviteit



- ▶ Stralingsdosis wordt gemeten in Sievert (Sv).
(heeft te maken met de door de straling gedeponeerde energie in het weefsel)
- ▶ Maximum blootstelling per jaar voor radiologische werker:
20 mSv/jaar
- ▶ Maximum blootstelling aan (extra) straling voor individueel lid van de bevolking: 1 mSv/jaar
- ▶ Dosis door natuurlijke radionucliden: 2 mSv/jaar

Kosmische straling: Fluenties vs hoogte en energie



Enkelvoudige primordiale nucliden



- ▶ Primordiaal: sinds het ontstaan van de aarde nog niet vervallen

140 g K in referentiemens leidt tot **dosis van 0,2 mSv per jaar**

Vrijstellingsgrens voor Rb:
10 000 Bq/g

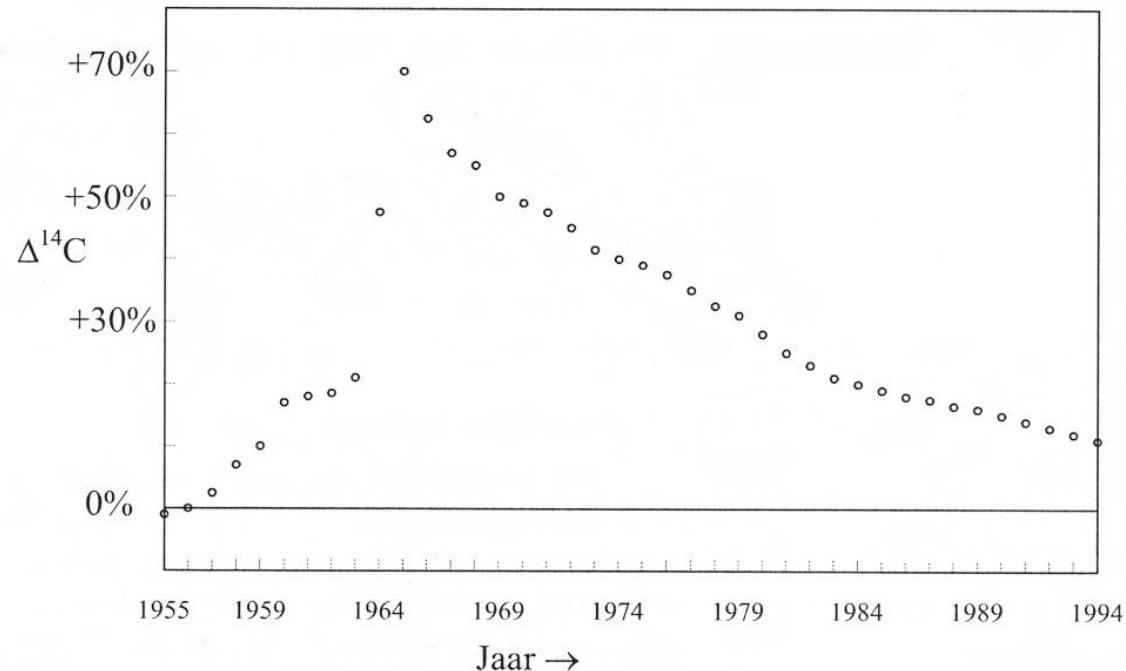
Tabel 15.1 Tabel van enkelvoudige primordiale radionucliden.

Radionuclide	Halveringstijd (jaar)	Isotopisch voorkomen (at%)	Specifieke activiteit (Bq/g)*
^{40}K	$1,28 \cdot 10^9$	0,0118	30
^{87}Rb	$4,7 \cdot 10^{10}$	27,8	900
^{115}In	$6 \cdot 10^{14}$	95,7	0,2
^{123}Te	$1,24 \cdot 10^{13}$	0,87	0,07
^{138}La	$1,3 \cdot 10^{11}$	0,09	0,7
^{144}Nd	$2,1 \cdot 10^{15}$	23,9	0,01
^{147}Sm	$1,06 \cdot 10^{11}$	15,0	120
^{148}Sm	$7 \cdot 10^{15}$	11,2	0,001
^{152}Gd	$1,1 \cdot 10^{14}$	0,2	0,001
^{174}Hf	$2,0 \cdot 10^{15}$	0,18	$6 \cdot 10^{-5}$
^{186}Os	$2 \cdot 10^{15}$	1,6	$6 \cdot 10^{-5}$
^{190}Pt	$6,1 \cdot 10^{11}$	0,013	0,014
^{204}Pb	$1,4 \cdot 10^{17}$	1,4	$6 \cdot 10^{-7}$

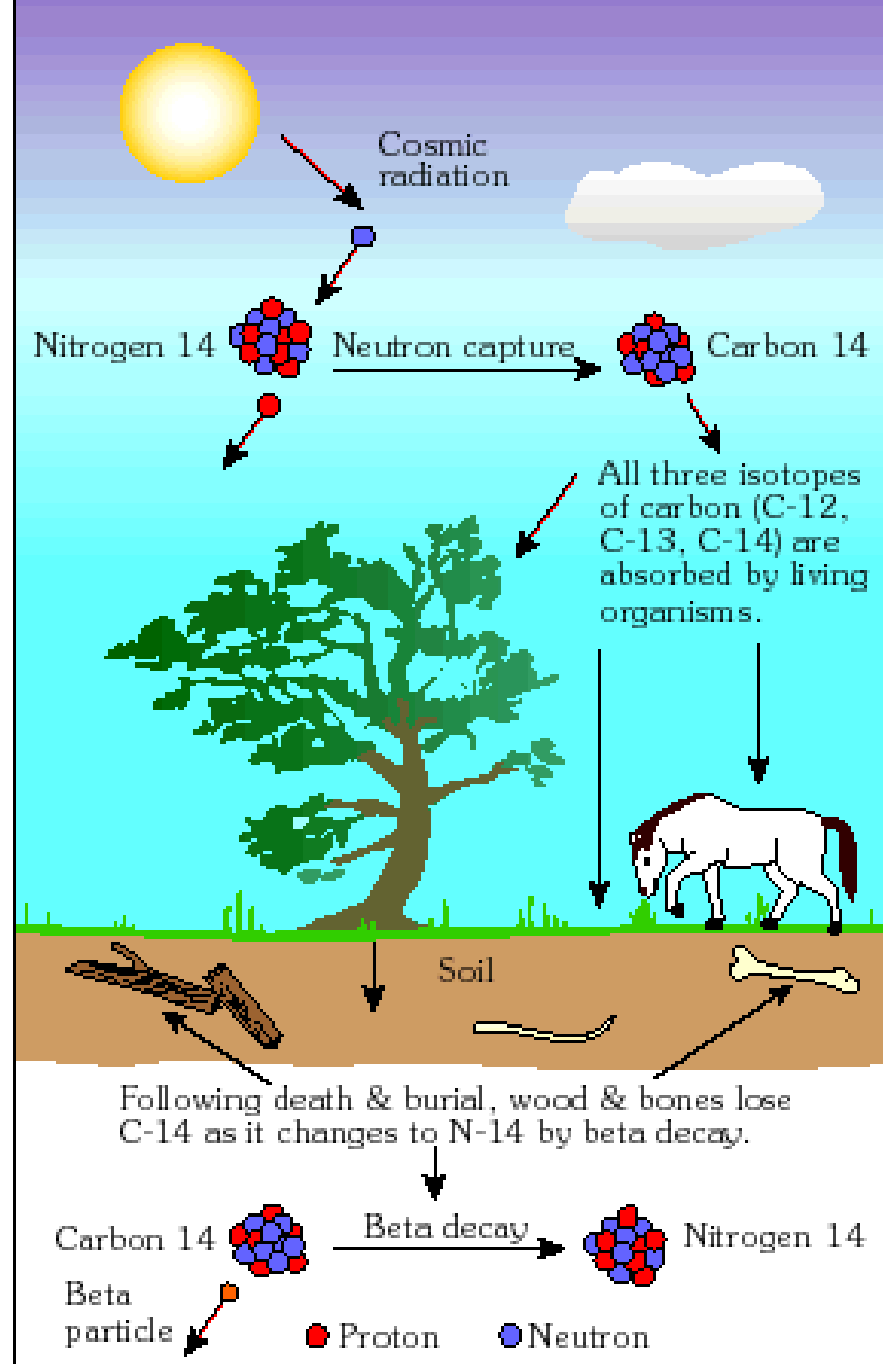
* De opgegeven massa is die van het element waarvan het (natuurlijk) isotoop is.

Cosmogene radionucliden: ^{14}C

- ▶ ^{14}C wordt in de atmosfeer gemaakt door ^{14}N (n,p) ^{14}C
 - ▶ Komt voornamelijk voor als $^{14}\text{CO}_2$
 - ▶ Specifieke activiteit 220 Bq/kg koolstof (tot 1963)
 - ▶ Toepassing: Datering, $T_{1/2} = 5730$ j
-
- ▶ Suess effect: ^{14}C concentratie daalt door toename CO_2 uit fossiele brandstoffen
 - ▶ Referentiemens bevat 16 kg C = 3500 Bq ^{14}C .
Dosis 0,01 mSv/jaar



Datering met ^{14}C



Andere cosmogene radionucliden: Tritium en ^7Be

- ▶ Tritium wordt gevormd door de reactie $^{14}\text{N} (n, ^3\text{H}) ^{12}\text{C}$ in de atmosfeer
- ▶ Komt voornamelijk voor als getritieerd water: $^3\text{H}^1\text{HO}$
- ▶ concentratie oppervlaktewater 0,5 Bq / liter tot 1963,
- ▶ daarna maximaal 100 Bq / l door kernproeven.
- ▶ $T_{1/2} = 12,3$ jaar, dus afname sinds 1970. Huidig niveau 2 Bq / l.
- ▶ Oorsprong van bijvoorbeeld grondwater hiermee te achterhalen.
- ▶ Referentiemens bevat ongeveer 50 l water, dus 100 Bq.
- ▶ **Dosis $4 \cdot 10^{-5}$ mSv / jaar**, dus volstrekt verwaarloosbaar.

^7Be ontstaat in de atmosfeer, concentratie 1 mBq / m^3 in lucht en 0,5 Bq / l in regenwater. **Dosis $3 \cdot 10^{-3}$ mSv / jaar**

Natuurlijke vervalreeksen



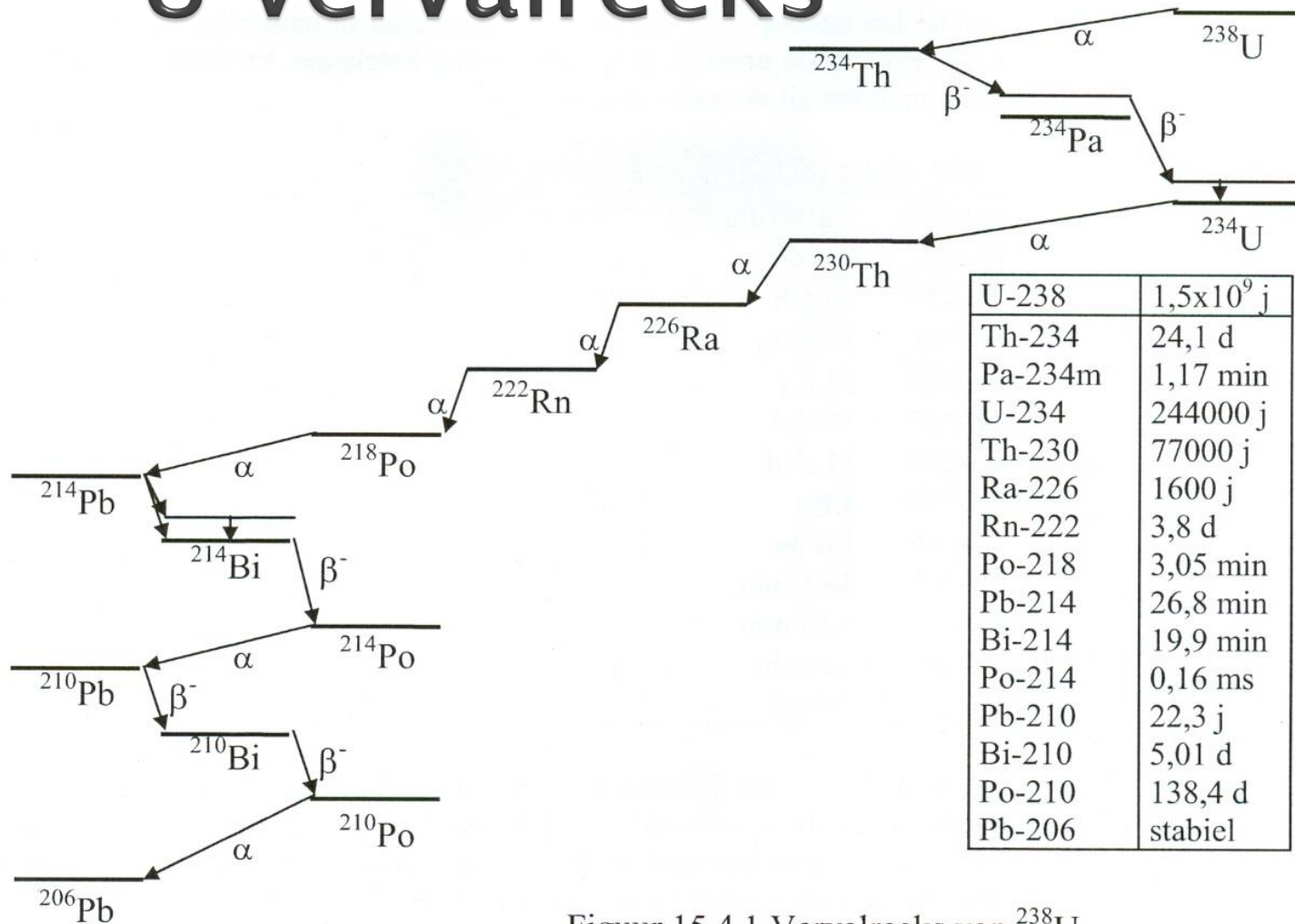
- ▶ Door het bestaan van enkele zeer lang levende nucliden die α -straling uitzenden bestaan er in de natuur 3 vervalreeksen, met $A = 4n$, $4n+2$ en $4n+3$ (n geheel).
- ▶ De $4n+1$ reeks is al uitgestorven
- ▶ $A = 4n+2$ begint bij ^{238}U ($T_{1/2} = 1,5 \cdot 10^9$ jaar)
- ▶ $A = 4n+3$ begint bij ^{235}U ($T_{1/2} = 7 \cdot 10^8$ jaar)
- ▶ $A = 4n$ begint bij ^{232}Th ($T_{1/2} = 10^{10}$ jaar)

Eindpunten (Oefening)



Z	207At 1.81 H ε: 91.40% α: 8.60%	208At 1.63 H ε: 99.45% α: 0.55%	209At 5.41 H ε: 95.90% α: 4.10%	210At 8.1 H ε: 99.82% α: 0.18%	211At 7.214 H ε: 58.20% α: 41.80%	212At 0.314 S α: 100.00% ε < 0.03%	213At 125 NS α: 100.00%	214At 558 NS α: 100.00%	215At 0.10 MS α: 100.00%
84	206Po 8.8 D ε: 94.55% α: 5.45%	207Po 5.80 H ε: 99.98% α: 0.02%	208Po 2.898 Y α: 100.00% ε: 4.0E-3%	209Po 102 Y α: 99.52% ε: 0.48%	210Po 138.376 D α: 100.00%	211Po 0.516 S α: 100.00%	212Po 0.299 μS α: 100.00%	213Po 3.72 μS α: 100.00%	214Po 164.3 μS α: 100.00%
83	205Bi 15.31 D ε: 100.00%	206Bi 6.243 D ε: 100.00%	207Bi 31.55 Y ε: 100.00%	208Bi 3.68E+5 Y ε: 100.00%	209Bi STABLE 100%	210Bi 5.012 D β-: 100.00% α: 1.3E-4%	211Bi 2.14 M α: 99.72% β-: 0.28%	212Bi 60.55 M β-: 64.06% α: 35.94%	213Bi 45.59 M β-: 97.80% α: 2.20%
82	204Pb ≥1.4E+17 Y 1.4% α	205Pb 1.73E+7 Y ε: 100.00%	206Pb STABLE 24.1%	207Pb STABLE 22.1%	208Pb STABLE 52.4%	209Pb 3.253 H β-: 100.00%	210Pb 22.20 Y β-: 100.00% α: 1.9E-6%	211Pb 36.1 M β-: 100.00%	212Pb 10.64 H β-: 100.00%
81	203Tl STABLE 29.524%	204Tl 3.783 Y β-: 97.08% ε: 2.92%	205Tl STABLE 70.48%	206Tl 4.202 M β-: 100.00%	207Tl 4.77 M β-: 100.00%	208Tl 3.053 M β-: 100.00%	209Tl 2.161 M β-: 100.00%	210Tl 1.30 M β-: 100.00% β-n: 7.0E-3%	211Tl >300 NS β-
	122	123	124	125	126	127	128	129	N

De ^{238}U vervalreeks



Figuur 15.4.1 Vervalreeks van ^{238}U

- ▶ ^{234}U komt alleen voor in evenwicht met ^{238}U , dus activiteiten gelijk:

$$N(^{234}\text{U}) = \{\lambda(^{238}\text{U}) / \lambda(^{234}\text{U})\} \cdot N(^{238}\text{U})$$

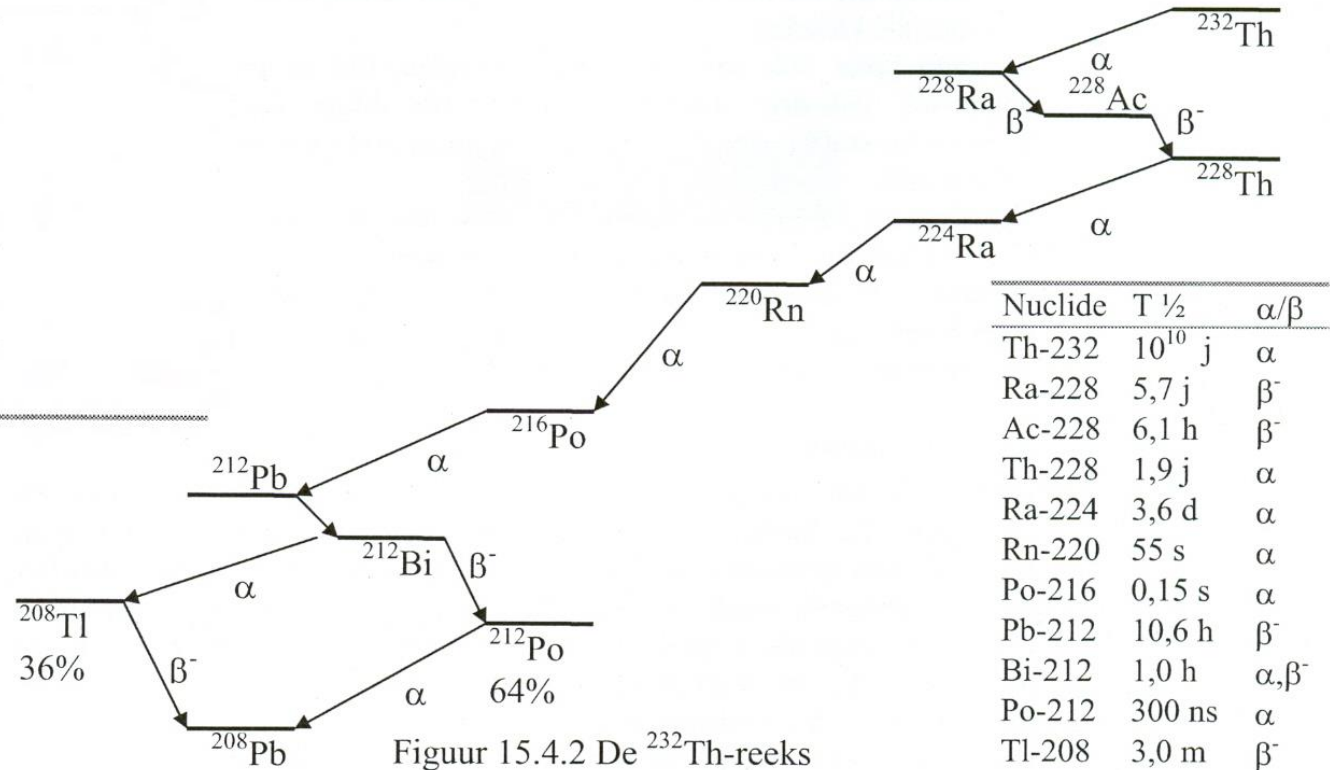
- ▶ ^{230}Th in het algemeen niet in evenwicht met ^{238}U (chemisch verschillend)
- ▶ ^{226}Ra : langst levende Radium isotoop (P&M Curie, ≈ 1900)
- ▶ ^{222}Rn is edelgas, kan gemakkelijk vrijkomen (zie later)
- ▶ ^{210}Pb en dochters zijn aanwezig in lood; en afwezig in “oud lood” voor afscherming
- ▶ ^{210}Po is vrij vluchtig en komt vrij in diverse industriële processen

Andere vervalreeksen



Tabel 15.4.2 De U-235-reeks ($4n+3$)

Nuclide	Halveringstijd	Vervalwijze
U-235	7×10^8 j	α
Th-231	25,6 h	β^-
Pa-231	32500 j	α
Ac-227	21,8 j	β^-
Th-227	18,7 d	α
Ra-223	11,4 d	α
Rn-219	4,0 s	α
Po-215	1,8 ms	α
Pb-211	36,1 min	β^-
Bi-211	3,13 min	α
Th-207	4,8 min	β^-
Pb-207	stabiel	-



Figuur 15.4.2 De ^{232}Th -reeks

Nuclide	$T_{1/2}$	α/β
Th-232	10^{10} j	α
Ra-228	5,7 j	β^-
Ac-228	6,1 h	β^-
Th-228	1,9 j	α
Ra-224	3,6 d	α
Rn-220	55 s	α
Po-216	0,15 s	α
Pb-212	10,6 h	β^-
Bi-212	1,0 h	α, β^-
Po-212	300 ns	α
Tl-208	3,0 m	β^-
Pb-208	stabiel	-

Andere vervalreeksen

- ▶ ^{235}U reeks is relatief onbelangrijk omdat ^{235}U slechts voor 0,7% voorkomt in natuurlijk uranium.
- ▶ ^{235}U splijt na vangst van een thermisch (laagenergetisch) neutron. Hierbij vrijkomende snelle neutronen (kunnen) zorgen voor een kettingreactie.
- ▶ Voor kernbom moet ^{235}U verrijking $\geq 90\%$ zijn
- ▶ In kernreactor is verrijking $\approx 5\%$
- ▶ ^{228}Th meestal in evenwicht met ^{232}Th ; alleen na chemisch zuiveren duurt dat “even” omdat de tussenproducten ^{228}Ra en ^{228}Ac weer moeten ingroeien

Natuurlijke radionucliden in de industrie



- ▶ Th wordt gebruikt:
 - in gloeikousjes van gaslampen (mag niet meer)
 - in las-elektrodes
 - in optische componenten (hoge brekingsindex)
 - Th-houdende monazietzanden in de keramische industrie (tegels etc)
- ▶ Is ook gebruikt als contrastmiddel in Röntgendiagnostiek
- ▶ ^{232}Th is indirecte splijtstof via $^{232}\text{Th} + n \rightarrow ^{233}\text{Th} \rightarrow \dots \rightarrow ^{233}\text{U}$
- ▶ U is bijproduct van fosfaatindustrie (kunstmest) wordt (werd) ook gebruikt als groene kleurstof, bijv. in tegels
- ▶ ^{238}U als contragewicht in vliegtuigen

1 g $^{226}\text{Ra} \leftrightarrow 1\text{Ci}$

Radium is historisch als wondermiddel gebruikt in tandpasta's, als opwekkend poeder (Tho Radia), als radium-drinkbeker, etc.

Meest recente toepassing: als lichtgevende verf in bijv. wijzerplaten (“**radium girls**”)

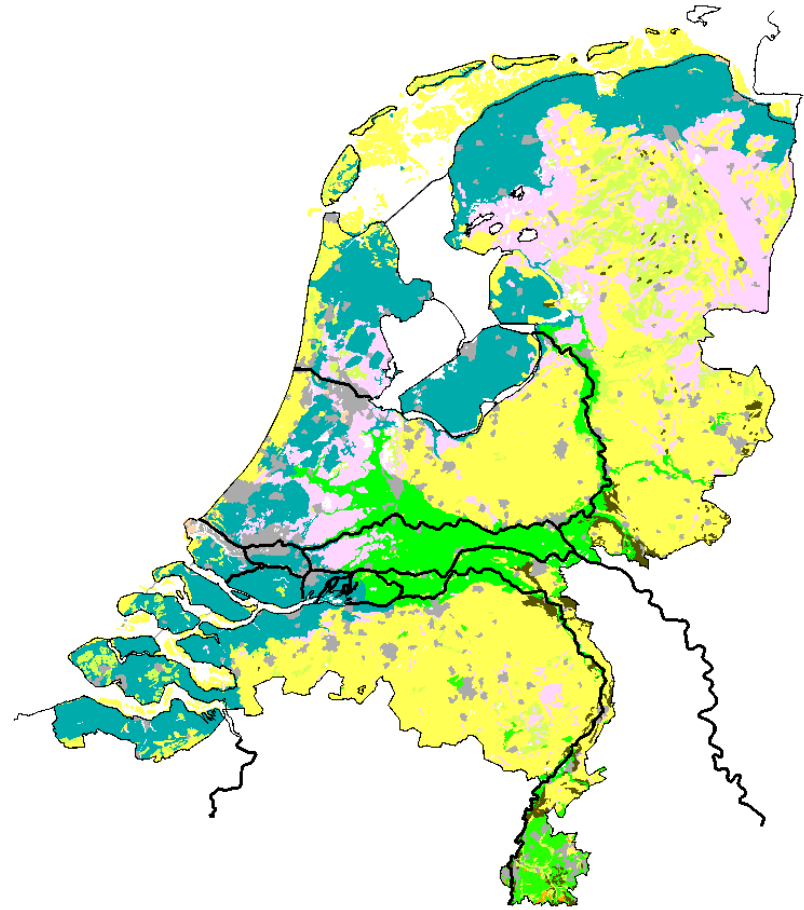
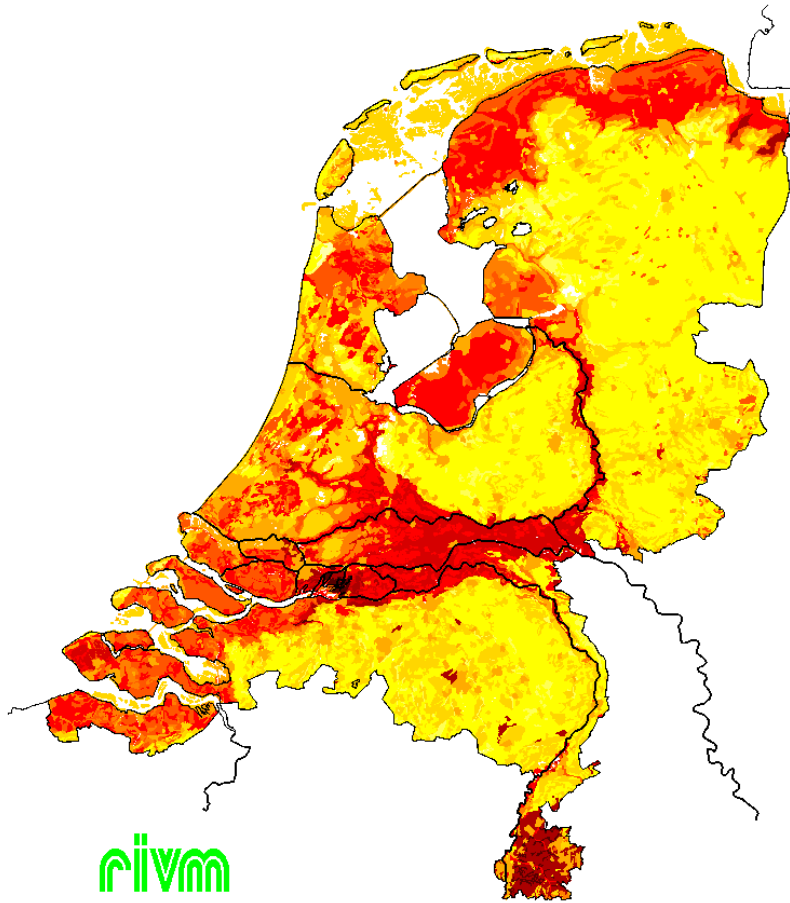


Natuurlijke radionucliden in de industrie

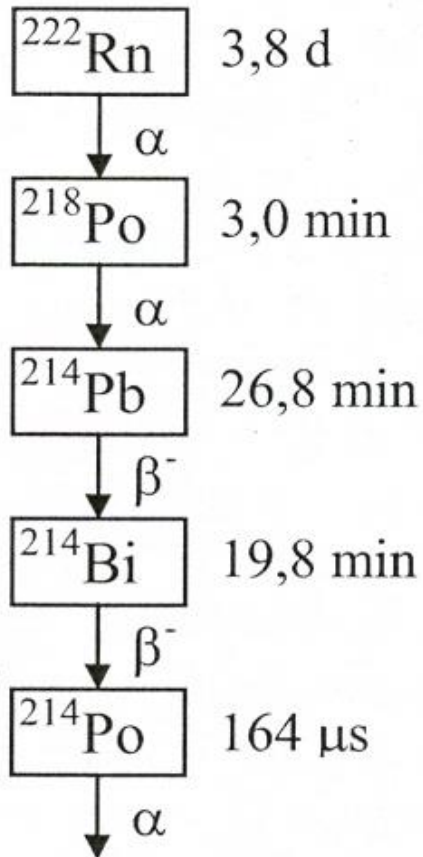


- ▶ In olie- en gaswinning komen radioactieve dochters uit de U- en Th-reeks mee naar boven
- ▶ Radium isotopen (^{226}Ra en ^{228}Ra / ^{224}Ra) lossen op in water → dochters
- ▶ Radon isotopen (^{220}Rn en vooral ^{222}Rn) komen vrij als gas, dochters slaan dan weer neer.
- ▶ lood kan vrijkomen en bevat dan ^{210}Pb ($\rightarrow ^{210}\text{Bi} \rightarrow ^{210}\text{Po}$)
- ▶ ^{210}Po is relatief vluchtig en komt snel vrij bij verhitting of in gasstromen.
- ▶ Grootste risico is inademing van aerosolen (Rn en dochters)

Dosis vs. bodemsoort



Radon in woonhuizen



- ▶ ^{222}Ra komt uit de grond en uit bouwmaterialen
- ▶ Grote verschillen in Rn concentratie door verschillende grondsoorten en ventilatiegedrag
- ▶ Dochters hechten aan aerosolen, die worden ingeademd → dosis in de longen
- ▶ Grootste dosis van de α -emitters (Rn en Po)
- ▶ Geschatte bevolkingsdosis door Rn en dochters in woonhuizen:

1 mSv per jaar (!)

Zeer veel variatie (grond, constructie, ventilatie)

Bevolkingsdosis



- ▶ Totale dosis per persoon door inwendige besmetting:
- ▶ gemiddeld 1,4 mSv / jaar
- ▶ Externe bestraling door dezelfde nucliden levert 0,3 mSv / jaar
- ▶ Directe kosmische straling levert eveneens 0,3 mSv / jaar

Totale dosis \approx 2,0 mSv / jaar

Tabel 15.7.1 Radioactieve stoffen in de mens

Nuclide*	Oorsprong ⁺	A (Bq)	E (μ Sv/j)
⁴⁰ K	P	4000	180
⁸⁷ Rb	P	500	6
²³⁸ U+d	P	1	10
²³⁰ Th	P	0,1	7
²²⁶ Ra+d	P	1	7
²¹⁰ Pb	P	22	130
²³² Th+d	P	0,07	3
²²⁸ Th+d	P	0,3	13
²²² Rn+d	P	10	900
²²⁰ Rn+d	P	1	100
³ H	C	25	0,01
	B	100	0,04
¹⁴ C	C	3500	10
	B	300	1,5
⁷ Be	C	0,2	0,001
⁹⁰ Sr	B	40	2
¹³⁷ Cs	B	20	1
	T	60	3
¹³⁴ Cs	T	10	0,5
²³⁹ Pu	B	0,07	2
Totaal		8500	1400

* +d = inclusief kortlevende dochters

⁺ P = primordiaal

C = cosmogeen

B = van kernexplosies

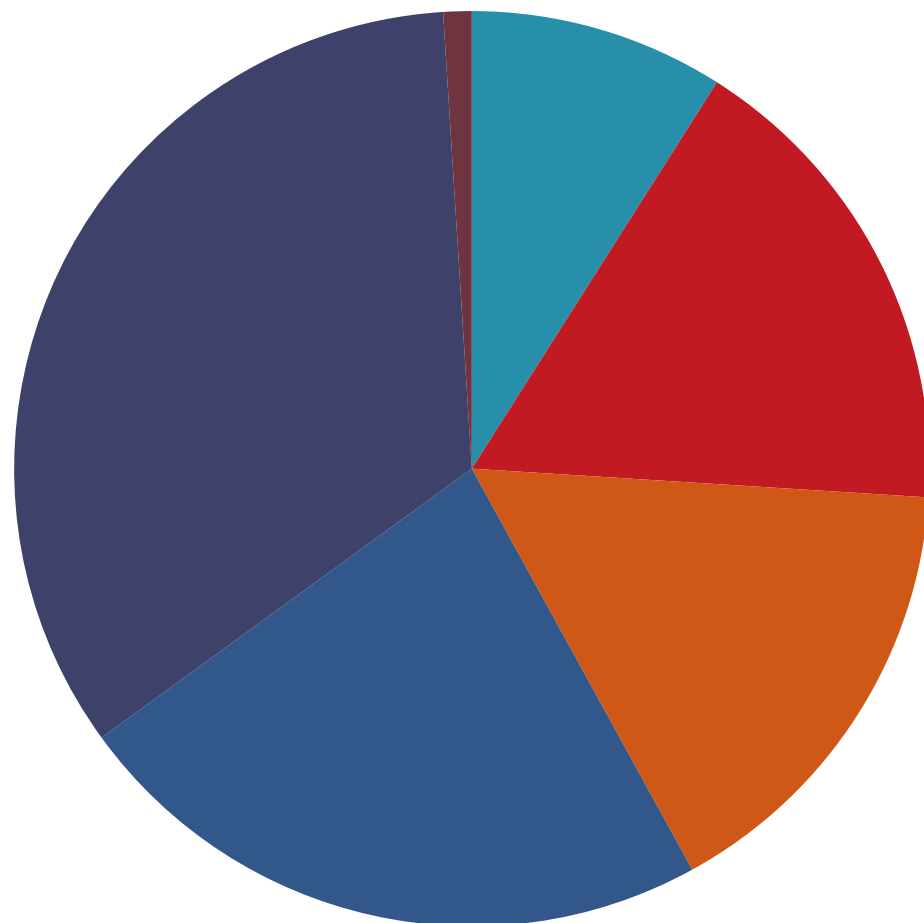
T = van Tsjernobyl

Bevolkingsdosis

- ▶ Totale dosis per persoon door inwendige besmetting:
- ▶ gemiddeld 1,4 mSv / jaar
- ▶ Externe bestraling door dezelfde nucliden levert 0,3 mSv / jaar
- ▶ Directe kosmische straling levert eveneens 0,3 mSv / jaar

Totale dosis \approx 2,0 mSv / jaar









Stralingsbelasting



- Kosmische Straling
- Uitwendig Gamma
- Inwendig Gamma
- Radon
- Medisch
- Overig

RADIATION FROM CHERNOBYL

KiloBecquerels (KBq) per square metre

-  more than 1,480
-  185 to 1,480
-  40 to 185
-  10 to 40
-  2 to 10
-  less than 2
-  No data
-  Chernobyl plant

0 500 1 000 km

Sources: *Atlas des dépôts de césium 137 en Europe après l'accident de Tchernobyl*, rapport EUR 16733, Bureau des publications de la Communauté européenne, Luxembourg, 1996. Adapted from *Le Monde Diplomatique*, July 2000.

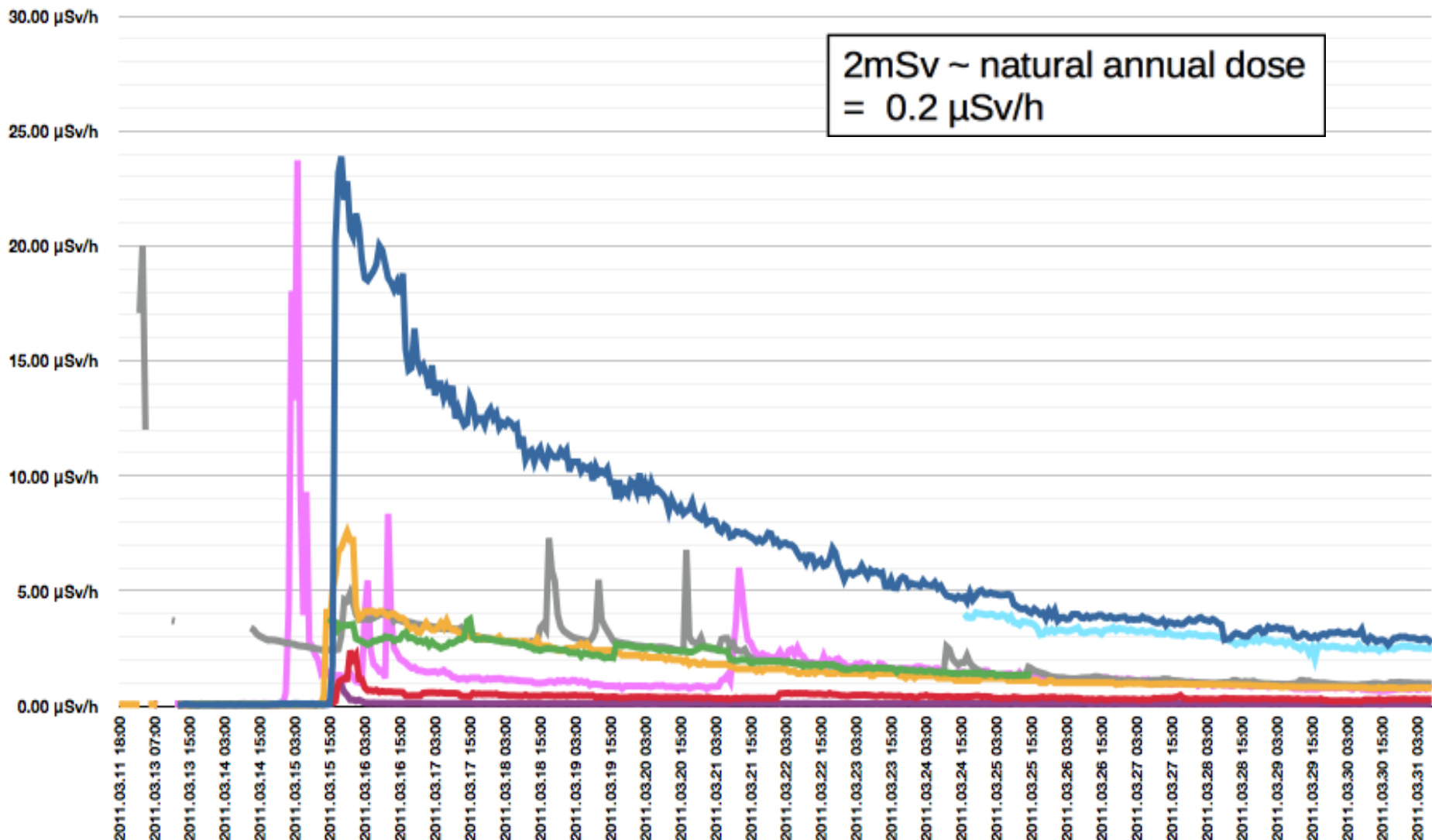


PHILIPPE REKACEWICZ

JUNE 2002

Sources: UNEP/GRID-Arendal, European Environment Agency; *AMAP Assessment Report : Arctic Pollution Issues*, Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), 1998, Oslo; European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP); Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long range transmission of air pollutants in Europe, 1999. Adapted from *Le Monde Diplomatique*, July 2000.

2mSv ~ natural annual dose
= 0.2 μSv/h



- 福島県北保健福祉事務所事務局東側 - Fukushima Health Office
- 郡山中合同庁舎 - Kouriyama Town Hall
- 白河合同庁舎 - Shirakawa Town Hall
- 会津若松合同庁舎 - Aizuwakamatsu Town Hall
- 南会津合同庁舎 - Minami Aizu Town Hall
- 南相馬合同庁舎 - Minami Souma Town Hall
- いわき合同庁舎 - Iwaki Town Hall
- 郡山合同庁舎東側入口 - Kouriyama Town Hall East