

دقت اندازه‌گیری غیرتخریبی نمونه استاندارد اورانیوم بوسیله روش شمارش نوترونهای تاخیری

رضا اشرفی

مرکز تحقیقات هسته‌ای
سازمان انرژی اتمی ایران

چکیده

در این بررسی، انحراف معیار میانگین به میزان $1/86$ درصد و دقتی به میزان $0/84$ درصد اختلاف با نتیجه توصیه شده در اندازه‌گیریها و بررسی‌های اورانیوم در مواد مرجع استاندارد به دست آمده است. این عمل به وسیله آنالیز غیرتخریبی اورانیوم با استفاده از روش شمارش نوترون‌های تاخیری که قابل مقایسه با روشهای تخریبی شناخته شده از جمله اسپکتروسکوپی جرمی می‌باشد، انجام شده است.

در این روش پرتوزا کردن دوره‌ای نمونه، نگاهداری طولانی مدت نمونه پرتوزا شده، شمارش-های همزمانی نمونه‌های جزء و استاندارد و داده‌پردازیهایی ویژه سبب کاهش خطاهای اتفاقی و اصولی شده است. این بررسیها توسط روش اندازه‌گیری غیرتخریبی اورانیوم که در کنار استخراج راکتور تحقیقاتی با قدرت ۵ مگاوات با اورانیوم غنی شده ۹۳ درصد مرکز تحقیقات هسته‌ای دموکریتوس شهر آتن کشور یونان انجام شده است.

مقدمه

اندازه‌گیری اورانیوم با روش فعال کردن نوترونی و شمارش نوترونهای تاخیری (DNAA) روش شناخته شده‌ای است که در اکثر آزمایشگاههای آنالیز هسته‌ای بر اساس کارهای انجام شده توسط اکو (Echo) و تورک (Turk) از سال ۱۹۵۷ به کار گرفته شده است (۱).

نظر به نیاز روزافزون به اکتشاف و استخراج اورانیوم، این روش با به کارگیری سیستم انتقال خودکار نمونه با هوای فشرده جهت پرتودهی در کنار قلب راکتور و سپس شمارش نوترونهای تاخیری به وسیله آشکارساز BF_3 مناسب‌ترین روش اندازه -

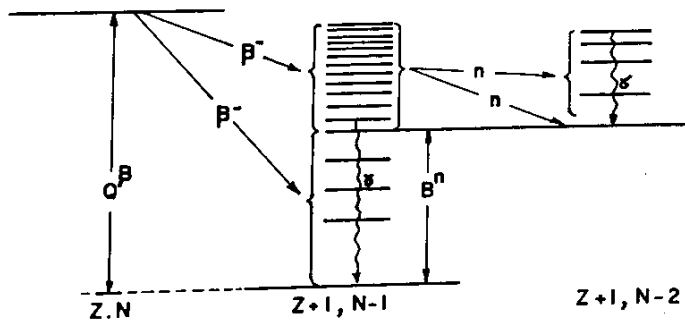
گیری اورانیوم در سنگ معدن می‌باشد. اوستل (Ostle) روش فعال کردن نوترونی و شمارش نوترونهای تاخیری را به عنوان یک روش دقیق و مقرون بصره در اندازه‌گیری‌های اورانیوم موجود در سنگهای معدن به منظور اکتشافات شیمیایی زمین پیشنهاد می‌کند (۱). همچنین سرعت مناسب در اندازه‌گیری و غیرتخریبی بودن آنالیز همراه با درستی، دقت و حساسیت زیاد روش سبب شده تا روش فعال کردن نوترونی و شمارش نوترونهای تاخیری در آنالیز نمونه‌های محیط زیست، باستانشناسی و تکنولوژی هسته‌ای مورد استفاده قرار گیرد (۲). اصولاً "روش (DNAA) جهت مقاصد تحقیقاتی به کار

را در کپسول‌های پلی‌اتیلنی در کنار قلب راکتور به وسیله نوترون بمباران کردیم ، جریان ضعیفی از نوترون در پاره‌های شکافت مشاهده می‌شود که به سرعت تضعیف می‌گردند که نوترونهای تاخیری نامیده می‌شوند . در اثر شکافت شدن هسته‌های ^{233}U ، ^{235}U و ^{239}Pu توسط نوترونهای حرارتی، ^{238}U و ^{232}Th توسط نوترونهای سریع در راکتور، پاره‌های شکافت حاصله از شکافت اورانیوم ، توریم و پلوتونیوم توسط تجزیه بتا (β -decay energy) به هسته‌های دیگری تبدیل می‌شوند که فوق‌العاده تحریک شده هستند و انرژی اضافی آنها بیشتر از انرژی بستگی نوترون (B_n) است یعنی $Q_{\beta} - B_n > 0$ است . این هسته‌ها بلافاصله پس از تجزیه یک نوترون از خود خارج می‌نمایند . شکل ۱ فرآیند تجزیه β^- و خروج نوترون را نشان می‌دهد . پس از خروج β^- هسته‌هایی یافت می‌شوند که با نیمه عمر نوکلید مادر تجزیه شده مطابقت

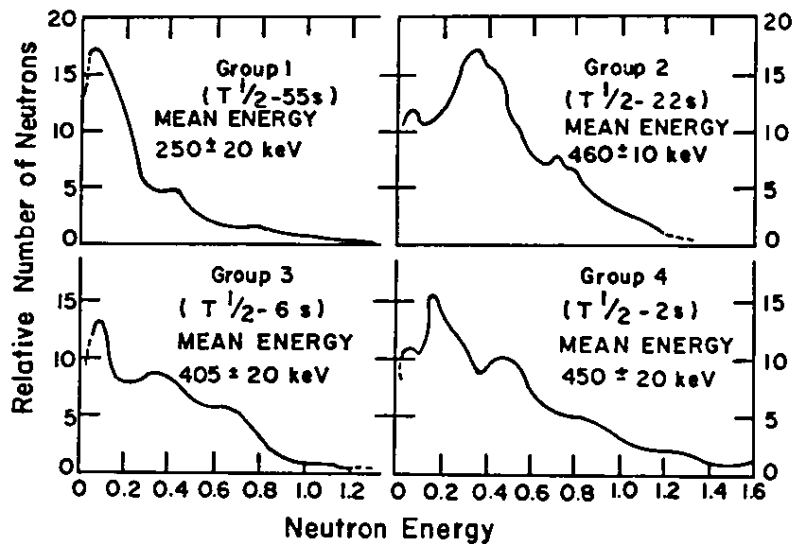
گرفته می‌شود و چون در تجزیه نمونه‌های مواد مرجع استاندارد (standard reference Materials) مربوط به پادمان هسته‌ای (Nuclear Safeguards) ، دقت (accuracy) و انحراف معیار میانگین (Precision) با تکرار پذیری بالائی مورد نظر است که از مدتها قبل با استفاده از روشهای شناخته شده دیگر مانند اسپکتروسکوپی جرمی به دست آمده است ، ولی به علت تخریبی بودن اندازه‌گیری و بررسی ، آلوده کردن محیط آزمایشگاه ، صرف وقت زیاد و هزینه زیاد تمام شده مواجه با اشکال بوده است . لذا با اصلاحات و شگردهائی که در روش (DNAA) به وجود آورده‌اند دقتی تا ۰/۰۵ درصد و انحراف معیار میانگین تا ۰/۱ درصد بدست آمده است (۳) .

تئوری

روش شمارش نوترونهای تاخیری بر این اساس است که بعد از اینکه نمونه‌های سنگ معدن اورانیوم



شکل ۱- نحوه انتشار نوترونهای تاخیری (از منبع ۴)



شکل ۲- طیف تعداد نسبی نوترون‌های تأخیری ساطع شده از پاره‌های شکافت برحسب انرژی نوترون (از منبع ۴).

σ_f = مقطع موثر شکافت گروه I،

ϕ = شار موثر نوترون،

a_i = درصد فراوانی گروه I، که نوترون‌های تأخیری ساطع می‌کنند،

λ_i = ثابت تجزیه گروه I، که نوترون‌های تأخیری ساطع می‌کنند و

t_b ، t_d ، t_c به ترتیب زمان پرتودهی، زمان بین پایان پرتودهی و شمارش و زمان شمارش است.

روش کار

دستگاه‌های مربوط به فعال کردن نوترونی و شمارش نوترون‌های تأخیری (DNAA) معمولاً در کنار راکتورهای تحقیقاتی نصب می‌شوند و اصطلاحاً "به آنها عیارسنج اورانیوم هم می‌گویند". سیستم تمام خودکار آن از قسمت‌های اصلی زیر تشکیل شده است.

دارند که اصطلاحاً "به آنها ماقبل (Precursors) می‌گویند" (۴). همچنین پاره‌های شکافت از نظر نیمه عمر و طیف انرژی نوترون به چهار گروه مطابق شکل ۲ تقسیم بندی شده‌اند.

معادله مربوط به خروج نوترون‌های تأخیری از یک هسته قابل شکافت که توسط نوترون بمباران شده است به قرار ذیل است:

$$N = N_f \cdot \sigma_f \cdot \phi \cdot \frac{a_i}{\lambda_i} (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_b}) \cdot e^{-\lambda_i \cdot t_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_i \cdot t_c})$$

که در آن:

N = تعداد اتم‌های گروه I که توسط خروج

نوترون‌های تأخیری تجزیه می‌شوند،

N_f = تعداد نوکلید قابل شکافت در نمونه،

۱- میکرو کامپیوتر :

(Control Unit Microcomputer)

این واحد کنترل انتقال نمونه‌ها و محاسبات را به عهده دارد .

۲- دستگاه مبادله اطلاعات : (Data Terminal)

با این دستگاه می‌توان با میکرو کامپیوتر ارتباط برقرار کرد و تعداد نمونه‌ها ، تعداد استانداردها و تعداد کپسول‌های پلی اتیلنی که به عنوان شمارش زمینه به کار می‌رود را همراه با زمان‌های پرتودهی ، خنک شدن نمونه تابش داده شده و زمان شمارش نوترون‌های تاخیری را به سیستم داد .

۳- دستگاه‌های اندازه‌گیری : این دستگاهها شامل

توزین نمونه‌ها و شمارش پرتو نوترون است . دستگاه شمارش نوترون تاخیری از آشکارساز BF₃ تشکیل شده است که با تقویت‌کننده اولیه ، آنالیز کننده تک کانالی و منبع تغذیه ولتاژ بالا مجموعاً " یک مدار را تشکیل می‌دهد .

۴- دستگاه انتقال نمونه : این دستگاه از یک دستگاه

کمپرسور و تیوب‌های مختلف جهت انتقال نمونه به داخل راکتور جهت پرتوگیری و از آنجا به قسمت اندازه‌گیری نوترون تاخیری و در انتها برای فرستادن نمونه به داخل انبار ذخیره (storage) به منظور نگهداری نمونه ، تشکیل شده است .

در این روش ابتدا نمونه استاندارد اورانیوم ، سپس کپسول پلی اتیلنی خالی (برای دریافت شمارش زمینه) و سپس نمونه‌های مجهول اندازه‌گیری و بررسی می‌شوند . کلیه اندازه‌گیری‌های این روش باید در شرایط یکسان شارنوترون و زمانهای مساوی پرتودهی ، خنک شدن و شمارش نوترون تاخیری و همچنین موقعیت یکسان پرتودهی باشد . در این روش بستگی به مقدار شار نوترون معمولاً " بین ۴۰ تا ۶۰

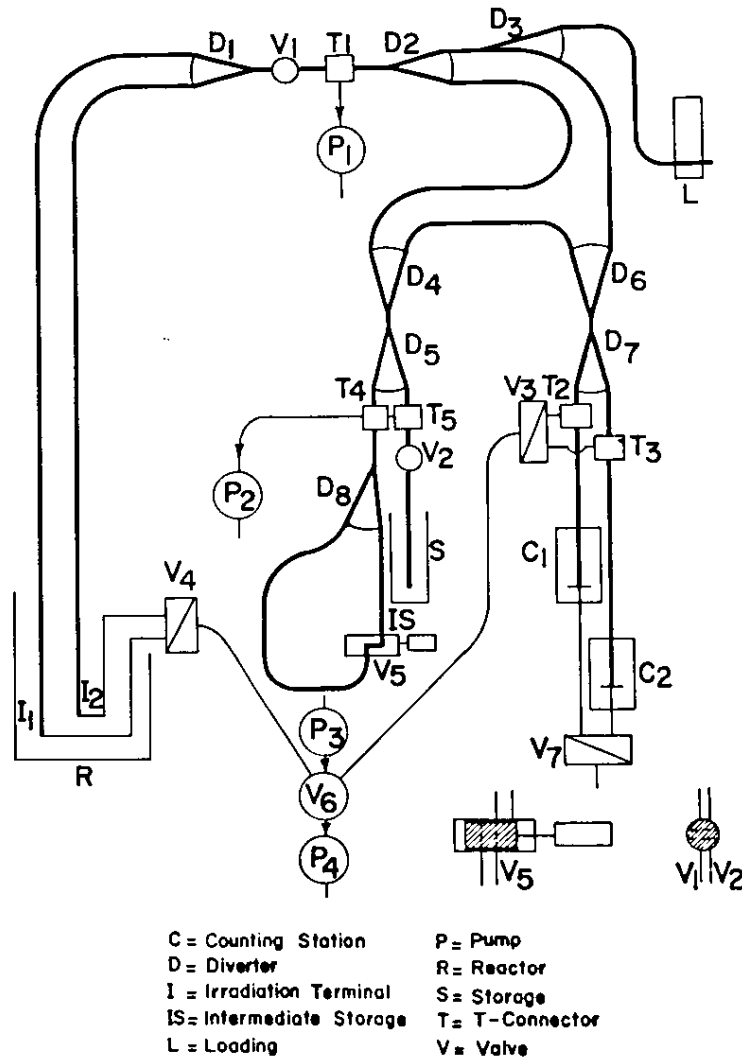
ثانیه زمان پرتودهی ، ۱۰ تا ۲۰ ثانیه خنک شدن نمونه تابش یافته و ۴۰ تا ۶۰ ثانیه زمان شمارش نوترون‌های تاخیری را انتخاب می‌کنند . زمانهای انتخابی بستگی به مقدار شار نوترون و غلظت نمونه مورد پرتوزا و بررسی دارد .

روش مرسوم پرتوزا کردن با نوترون و شمارش نوترون‌های تاخیری که از زمانهای پیش جهت آنالیز نمونه‌های اورانیوم در زمین‌شناسی بکار می‌رفته‌است به علت وجود منابع خطای متعدد مانند تغییرات طولانی و کوتاه مدت شارنوترون در راکتور ، تغییرات محل و زمان پرتودهی ، انباشته شدن پالس (Pulse Pile-up) ، تشدید پرتوها (radiation build-up) ، یک روش معمولی مناسب جهت اندازه‌گیری نمونه‌های پادمان هسته‌ای و مواد مرجع استاندارد نمی‌باشد . لذا جهت فائق آمدن بر خطاهای فوق‌الذکر از سیستم توسعه یافته اندازه‌گیری اورانیوم شکل ۳ استفاده شده است . همانطور که شکل نشان می‌دهد این سیستم دارای تیوب پرتودهی و سیستم شمارش دوگانه همراه با انبار ذخیره میانی است . در این سیستم :

۱- امکان پرتودهی کوتاه مدت دوره‌ای نمونه ، شمارش‌های آماری را بدون افزایش میزان شمارش اصلاح می‌کند . بنابراین از انباشته شدن پالس جلوگیری شده و عدم اطمینان به صحت محل پرتودهی و زمان پرتودهی کاهش می‌یابد .

۲- نگاهداری طولانی مدت نمونه پرتوزا شده در انبار ذخیره میانی (intermediate storage) سبب خنک شدن آن و در نتیجه جلوگیری از تشدید پرتو می‌شود که به طور همزمانی می‌توان نمونه بعدی را پرتودهی کرد که کلاً " سبب کاهش زمانی اندازه‌گیری نمونه‌ها می‌گردد .

۳- امکان شمارش‌های زنجیرهای جداگانه مورد استفاده قرار گرفته تا میزان شمارش هر کانال



شکل ۳- مدار سیستم نیمه خودکار آنالیز اورانیوم به روش شمارش نوترون‌های (از منبع ۵).

انگاشتن تغییرات کوتاه و طولانی مدت شار نوترون در راکتور می‌شود. همچنین بکارگیری نمونه‌ها و استانداردهای جزء سبب کاهش خطاهای وزنی و ناهمگونی (inhomogeneity) مواد قابل اندازه‌گیری می‌شوند.

اندازه‌گیری شده کاهش یابد و نتیجتاً " سبب دقت و تکرارپذیری شمارش گردد. ۴- داده پردازیهای مخصوص که شامل اندازه‌گیری نمونه‌ها و استانداردهای جزء و همچنین جمع و مقایسه نتایج حاصل بوده است موجب نادیده

رضا اشرفی . دقت اندازه‌گیری نمونه استاندارد اورانیوم

در این طرح همچنین جهت بررسی دقت و صحت روش از نمونه استاندارد NBL-101A به عنوان استاندارد و از نمونه استاندارد IAEA-S8 به عنوان نمونه قابل اندازه‌گیری استفاده شده است . روی هم-رفته دو مجموعه ۴ نمونه‌ای جزء برای ۴ دوره کاری

راکتور تهیه و در ظروف پلی اتیلنی به حجم ۱ سانتیمتر مکعب ریخته شد و به صورت دوره‌ای مطابق جدول ۱ ترکیبی از یک نمونه و یک استاندارد هرکدام ۵ مرتبه به مدت ۳۰ ثانیه پرتودهی ، ۲۰ ثانیه خنک شدن و ۳۰ ثانیه شمارش نوترونیهای تاخیری

جدول ۱- قسمت بالای جدول نتایج شمارش دوره‌ای نمونه و استاندارد اورانیوم در ۴ روز متفاوت کاری راکتور و در قسمت پائین جدول بترتیب مجموع شمارش نمونه و استاندارد اورانیوم ، متوسط شمارش نمونه و استاندارد اورانیوم و بالاخره انحراف معیار شمارش نمونه و استاندارد اورانیوم نشان داده شده است .

ردیف	مواد	دسته الف شمارش	دسته ب شمارش	دسته ج شمارش	دسته د شمارش
۱	نمونه	۱۱۵۷۳۲	۱۱۱۴۱۰	۱۱۳۴۲۶	۱۱۸۴۲۰
	استاندارد	۹۴۶۴۰۷	۹۵۷۹۷۰	۹۳۳۶۶۳	۹۵۴۹۴۶
۲	نمونه	۱۱۴۲۴۳	۱۱۰۷۰۱	۱۱۲۷۱۰	۱۱۸۱۰۱
	استاندارد	۹۵۰۷۱۱	۹۶۳۴۸۳	۹۳۷۹۳۲	۹۵۷۶۳۵
۳	نمونه	۱۱۶۲۰۴	۱۱۳۴۱۲	۱۱۱۴۵۲	۱۱۹۷۲۲
	استاندارد	۹۵۲۴۲۲	۹۶۰۷۱۲	۹۳۹۵۱۰	۹۵۳۳۷۴
۴	نمونه	۱۱۵۴۵۵	۱۱۲۱۳۰	۱۱۰۰۸۶	۱۱۷۴۵۲
	استاندارد	۹۴۸۸۹۸	۹۵۴۷۹۸	۹۳۰۷۱۴	۹۵۰۷۱۸
۵	نمونه	۱۱۵۵۹۲	۱۰۹۸۸۹	۱۱۲۹۳۰	۱۱۶۸۳۹
	استاندارد	۹۴۹۵۰۱	۹۴۸۶۶۲	۹۳۵۰۰۴	۹۵۸۳۲۹
مجموع شمارش ۵ نمونه		۵۷۷۲۲۶	۵۵۷۵۴۲	۵۶۰۶۰۴	۵۹۰۵۳۴
مجموع شمارش ۵ استاندارد		۴۷۴۷۹۳۹	۴۷۸۵۶۲۵	۴۶۷۶۸۲۳	۴۷۷۵۰۰۲
متوسط شمارش ۵ نمونه		۱۱۵۴۴۵	۱۱۱۵۰۸	۱۱۲۱۲۱	۱۱۸۱۰۷
متوسط شمارش ۵ استاندارد		۹۴۹۵۸۸	۹۵۷۱۲۵	۹۳۵۳۶۵	۹۵۵۰۰۰
انحراف معیار ۵ نمونه		۰/۶۳%	۱/۲%	۱/۲%	۰/۹۲%
انحراف معیار ۵ استاندارد		۰/۲۳%	۰/۵۹%	۰/۳۷%	۰/۳۳%

و محاسبه مقدار اورانیوم موجود در نمونه در جدول ۲ برای چهار دسته نمونه و استاندارد جزء نشان داده شده است.

با مقایسه مقدار متوسط اورانیوم اندازه‌گیری شده در نمونه یعنی $\bar{X} = 1206$ با $\mu = 1196$ (δ) مقدار اورانیوم موجود در نمونه و توصیه شده از طرف آژانس بین‌المللی انرژی اتمی دقتی (accuracy) برابر با 0.84% به دست آمده است که در انتهای جدول ۲ همراه با مقدار انحراف معیار میانگین اورانیوم اندازه‌گیری شده یعنی $1/84$ درصد آورده شده است.

انجام شد. تمام پرتودهیهای فوق در قدرت راکتور یک مگاوات و شار نوترون $5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ انجام گرفته است.

یافته‌ها و بررسی آنها

در جدول ۱ چهار مجموعه دوتایی نمونه و استاندارد اورانیوم هر کدام ۵ مرتبه پرتودهی و شمارش شده است. در انتهای جدول متوسط شمارش جهت محاسبه انحراف معیار میانگین شمارش‌ها به کار رفته است. همچنین مجموعه شمارش‌های نمونه و استاندارد جهت به دست آوردن مقدار شمارش بر حسب یک گرم نمونه و یک میلیونیم گرم استاندارد

جدول ۲- مقدار شمارش بر حسب یک گرم نمونه IAEA-8 (ستون دوم) مقدار شمارش بر حسب یک میکروگرم اورانیوم استاندارد NBL-101A (ستون سوم) و مقدار اورانیوم موجود در نمونه IAEA-8 را بر حسب میکروگرم اورانیوم در یک گرم نمونه (ستون چهارم) برای چهار دسته نشان می‌دهد.

X μg U/g	NBL - 101A C/μg U	IAEA - S8 C/g	
1191	471	560958	دسته الف
1237	475	587505	دسته ب
1208	464	560604	دسته ج
1188	474	562949	دسته د
$\bar{X} = 1206 \text{ } \mu\text{g U/g}$ مقدار متوسط اورانیوم در یک گرم نمونه $\frac{\sigma_X}{\bar{X}} = 1/84\%$ انحراف معیار میانگین (Precision) $\frac{\mu - \bar{X}}{\mu} = \frac{1196 - 1206}{1196} = 0.84\%$ دقت (accuracy)			

نتیجه‌گیری

در این مقاله نحوه استفاده از سیستم روش مرسوم آنالیز اورانیوم به طریق فعال کردن نوترونی و شمارش‌های نوترون‌های تاخیری (DNAA) که انحراف معیار میانگین آن (Precision) $\pm 5\%$ (۱) ، در اندازه‌گیری‌های نمونه‌های اکتشافات شیمیایی زمین است ، می‌باشد . با به‌کارگیری اصلاحات و شگردهائی مانند پرتودهی دوره‌ای نمونه و استانداردهای جزء به خاطر غیرتخریبی بودن آنالیز ، نگاهداری طولانی مدت نمونه‌های پرتوزا شده ، شمارش‌های همزمانی نمونه و بالاخره آنالیز و داده پردازیهی نمونه‌های مشابه جزء همراه با استفاده از مونیتور جهت کنترل تغییرات شار نوترون در راکتور توانسته‌ایم مواد مرجع استاندارد را اندازه‌گیری و بررسی کنیم و انحراف معیار میانگین را به $1/86\%$ درصد ، و دقت را به میزان $0/84\%$ درصد برسانیم . در حالی که در اندازه‌گیری‌های مشابه (۳) توانسته‌اند این دقت را به $0/05\%$ درصد و $0/1\%$ درصد برسانند . بنا براین آنالیز غیرتخریبی (DNAA) دارای تمام محاسن

پرتوزا کردن با نوترون مانند سرعت زیاد آنالیز ، عدم تداخل انرژی ، اندازه‌گیری غلظت‌های یک PPM و کمتر ، سادگی تهیه نمونه و استاندارد ، استفاده از امکانات خودکار کردن سیستم ، حداقل پرسنل مورد نیاز و قیمت ارزان آنالیز می‌باشد . همچنین نظر به دقت و حساسیت زیاد این روش و اعمال اصلاحات بیشتر در این روش می‌توان از چشمه‌های قابل حمل مانند Am-Be و Cf-252 (۳) و (۶) در مواقعی که امکان استفاده از راکتورهای هسته‌ای نمی‌باشد ، استفاده کرد و در محل اندازه‌گیری‌هایی به عمل آورد .

این تجربیات نشان می‌دهد از روش موجود عیار-سنجی اورانیوم در مرکز تحقیقات هسته‌ای تهران نه تنها می‌توان جهت کنترل کیفی سنگ معدن‌های اورانیوم به طور اندازه‌گیری خودکار استفاده کرد ، بلکه با انجام بعضی قسمت‌ها و محاسبات بطور غیر خودکار آنرا در جهت تحقیقات و شناسائی نمونه - های پادمان هسته‌ای و مواد مرجع استاندارد به کار برد .

References

1. R.J. Rosenberg, V. Pitkanen and A. Sorsa, Journal of Radioanalytical Chemistry, Vol, 37, 169 (1977).
2. N.N. Papadopoulos, Accurate Uranium Analysis by the Delayed Fission Neutron Method, Nuclear Analytical Methods, Proc. Int. Conf. Orleans, France (1986).
3. N.N. Papadopoulos, A New Nondestructive Measurement Technique for Accurate Nuclear Safeguards Analysis, Int. Sym. on Nuclear Material Safeguards, IAEA - SM - 239, 10-14 Nov. Vienna, Austria (1986).
4. T. Jahnsen, A.C. Pappas and T. Tunaal, Delayed Neutron Emission; Theory and Precursor Systematics. Delayed Fission Neutron, Proc. of

- a Pannel, 24-27 April, Vienna (1967).
5. IAEA Reference Materials S-8, Table 2, Analytical Quality Control Service (1987).
 6. R. Adam, P1 Agostini, L. Becker, M. Bernede, L. Caldon, G. Cordani, F. Farese, R. Hass and V. Vocino, Latest Development and Implementation of Instruments for Uranium Assay by Delayed Neutron Technique, Nuclear Safeguards Technology 2, 10-14 Nov. (1986).

ACCURATE NON-DESTRUCTIVE URANIUM STANDARD SAMPLE ANALYSIS
BY DELAYED NEUTRON COUNTING TECHNIQUE

Reza Ashrafi
Nuclear Research Center
Atomic Energy Organization of Iran
P.O. Box 11365-8486 Tehran-Iran

Abstract

High precision (relative standard deviation) and accuracy, of the order of 1.86% and 0.84% were achieved in uranium measurements of nuclear standard reference material samples. This has been done by a non-destructive analytical technique based on the delayed neutron counting method, competitive with well established destructive methods like mass spectrometry. This technique with cyclic activation, long intermediate sample storage, simultaneous measurement of the following sub-samples and sub-standards and special data processing reduced random and systematic errors. All of this has been done with uranium analyzer, that was designed, developed, constructed and installed at the 5MW swimming pool research reactor with 93 percent of enrichment uranium of the Nuclear Research Center "Demokritos" Athens, Greece.