



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

KISMENNYISÉGŰ U-235 MEGHATÁROZÁSA CSŐPOSTÁVAL KOMBINÁLT KÉSŐNEUTRON SZÁMLÁLÁSSAL (OAH-ABA-22/16-M)

Szentmiklósi László, Hlavathy Zoltán, Párkányi Dénes,
Janik József, Katona Csaba

MTA EK Nukleáris Analitikai Laboratórium,
Sugárbiztonsági Laboratórium, Reaktorüzem

Előzmények

- A neutron-koincidencia számlálás (neutron coincidence counting, NCC) és a későneutron-számlálás (delayed neutron counting, DNC) ismeretlen minták hasadóanyag-tartalmának kimutatására alkalmas analitikai technikák.
- OAH-ÁNI-ABA-08/09: Kis mennyiségű urán kimutatása aktív, hidegneutronos koincidencia-méréssel
 - Hasadási neutronok detektálása koincidenciában
 - Adott mintatípus esetén a detektált neutronok száma (singles) és a kettős koincidenciák száma (doubles) is arányos a tömeggel
 - Különböző minták esetén a detektált neutronok száma (singles) már függ a mátrixtól, mintamérettől, a kettős koincidenciák száma (doubles) továbbra is arányos a tömeggel
 - **DL: 1 μg U-235 (1000 s)**
- OAH-ÁNI-ABA-12/10: Urán kimutatása aktív, pulzáló hidegneutronos gerjesztéssel, a késő neutronok mérésével
 - Késő neutronok detektálása a nyaláb szaggatásával az impulzusok közötti szünetekben
 - Védelem optimalizálása
 - Késő neutron DL: **50 μg U-235 (3000 s)**
- OAH-ÁNI-ABA-04/11: a két módszer összehasonlító jellemzése

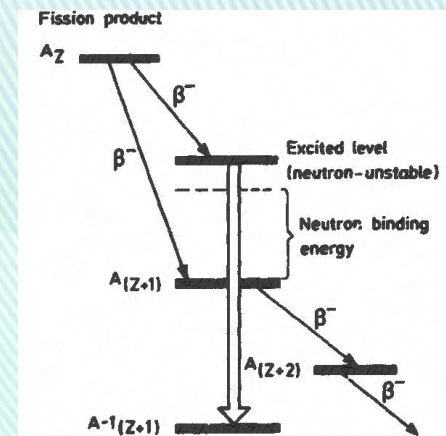
Célok

- Beláttuk, hogy a későneutron-számlálás versenyképessé tétele és a kimutatási határainak javítása csak a besugárzó neutronforrás intenzitásának növelésével lehetséges.
- A világban megfigyelhető a reaktoros neutronbesugárzáson alapuló későneutron-számlálás újjáéledése, amelynek fő alkalmazása a nyolcvanas években az urán nyersanyag feltérképezés volt, jelenleg pedig a nukleáris biztosítéki és törvényszéki mérések.
- Ennek érdekében ideai munkák során a Budapesti Kutatóreaktor pneumatikus csőposta berendezéshez kapcsolt függőleges csatornát használtuk besugárzásra, ahol hat nagyságrenddel nagyobb neutronfluxus áll rendelkezésünkre. Kb. $2,7-7,7 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ képest helyett kb. $5,5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$
- Hátránya, hogy a minta reaktorból a mérőhelyre történő visszajuttatása több másodpercet vesz igénybe, amely az analitikai jel csökkenését okozza, továbbá a lassú neutronok mellett itt a nagyobb energiájú neutronok jelenlétével és az általuk keltett esetleges zavaró reakciókkal is számolni kell.
- A jelen vizsgálat fő kérdése tehát az volt, hogy e két ellentétes hatás eredőjeként a kimutatási határ hogyan alakul a hidegneutronos koincidencia-számláláshoz képest, ill. elkezdjük a módszer határait feltérképezni.

Későneutron kibocsátás

- A hasadási termékek neutronkibocsátását megelőző béta-bomlás: hat-nyolc csoport $T_{1/2}$ alapján
- 10 ms - perces időskála

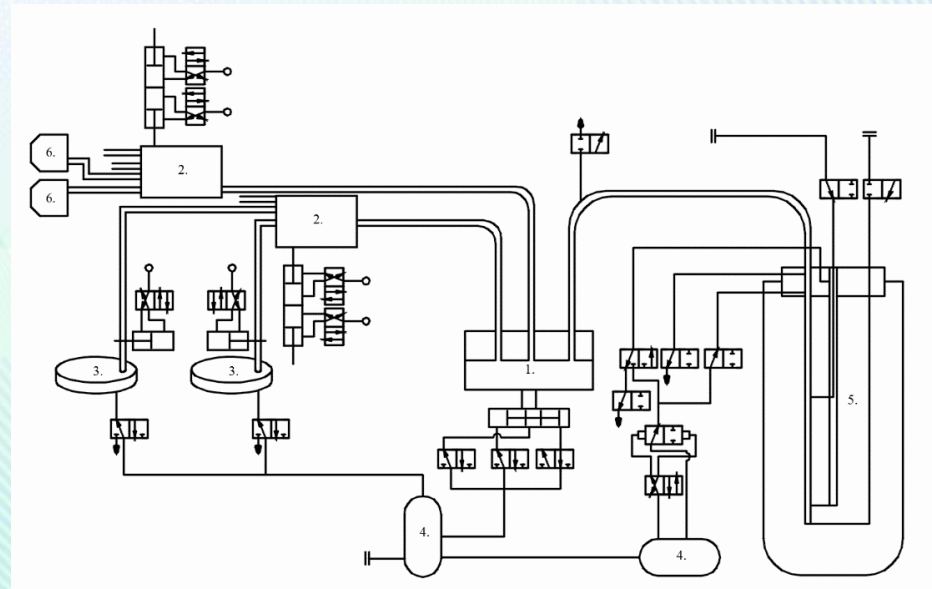
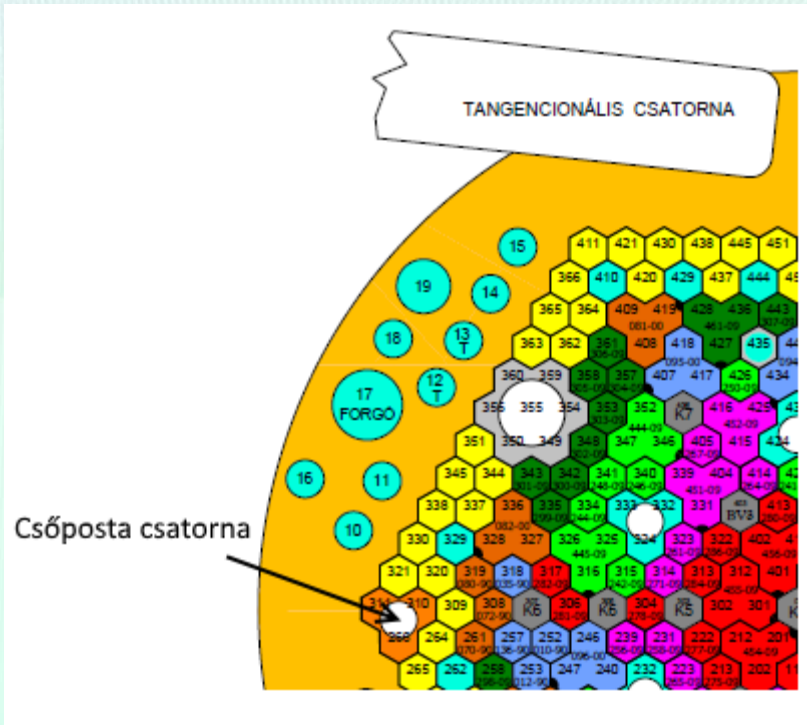
$$N_{dN} = N_f \sigma_f \Phi \frac{a_i}{\lambda_i} \sum_i (1 - e^{-\lambda_i t_b}) e^{-\lambda_i t_d} (1 - e^{-\lambda_i t_r}),$$



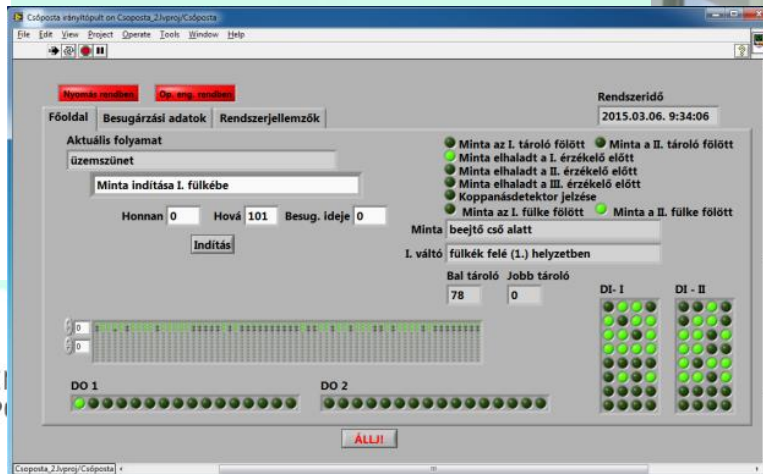
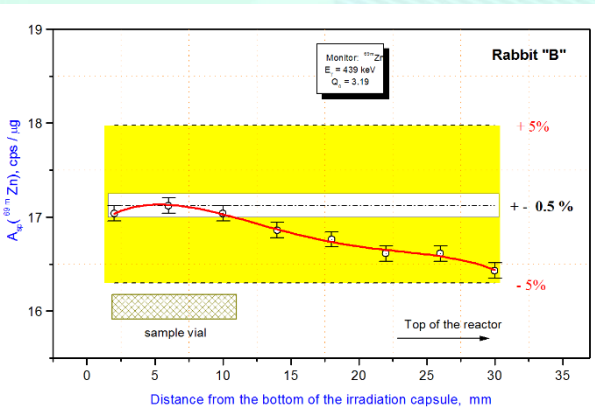
- ahol N_{dN} a későneutron-kibocsátással bomló atomok száma, N_f a hasadóképes nuklidok száma a mintában, σ_f a hasadási hatáskeresztmetszet, Φ a neutronfluxus, a_i az i -dik csoport hozama, λ_i az i -dik csoport bomlási állandója, t_b a besugárzási idő, t_d a várakozási idő, t_c a számlálási idő.

1. S. Amiel: Analytical Applications of Delayed Neutron Emission in Fissionable Elements, Anal. Chem. **34** (13) (1962) 1683-1692
2. G.R. Keepin: Physics of delayed neutrons – recent experimental results. Nucl. Technol. (1972) **14** 53-58.

A Budapesti Kutatóreaktor csőposta besugárzója

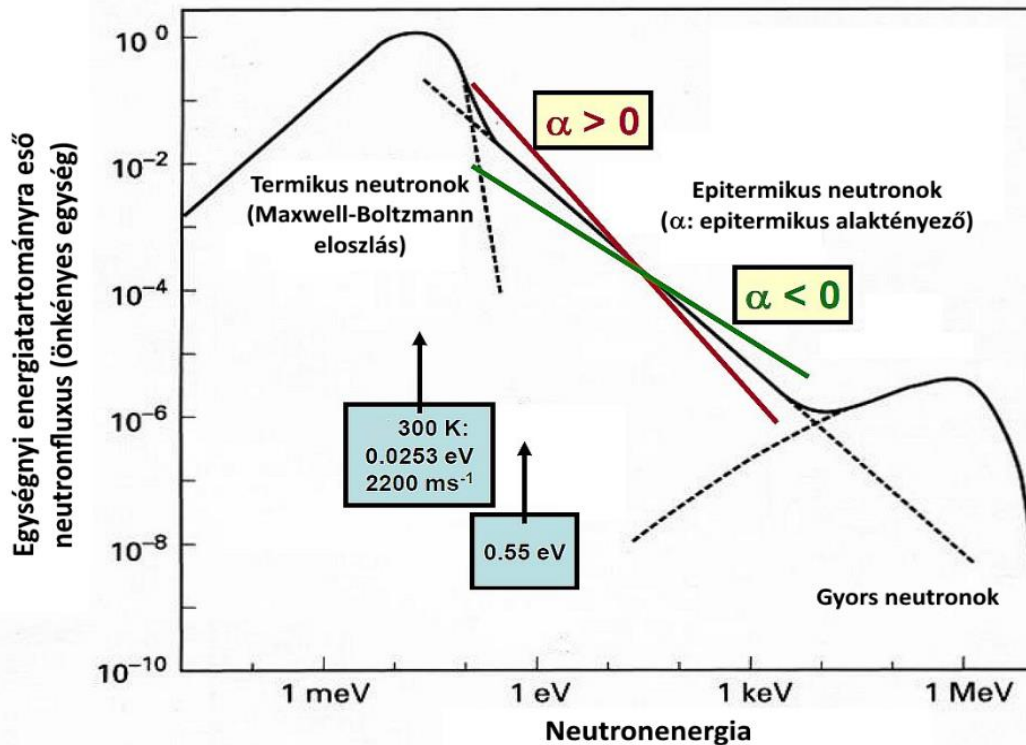


Transzfer idő kb 5-6 sec



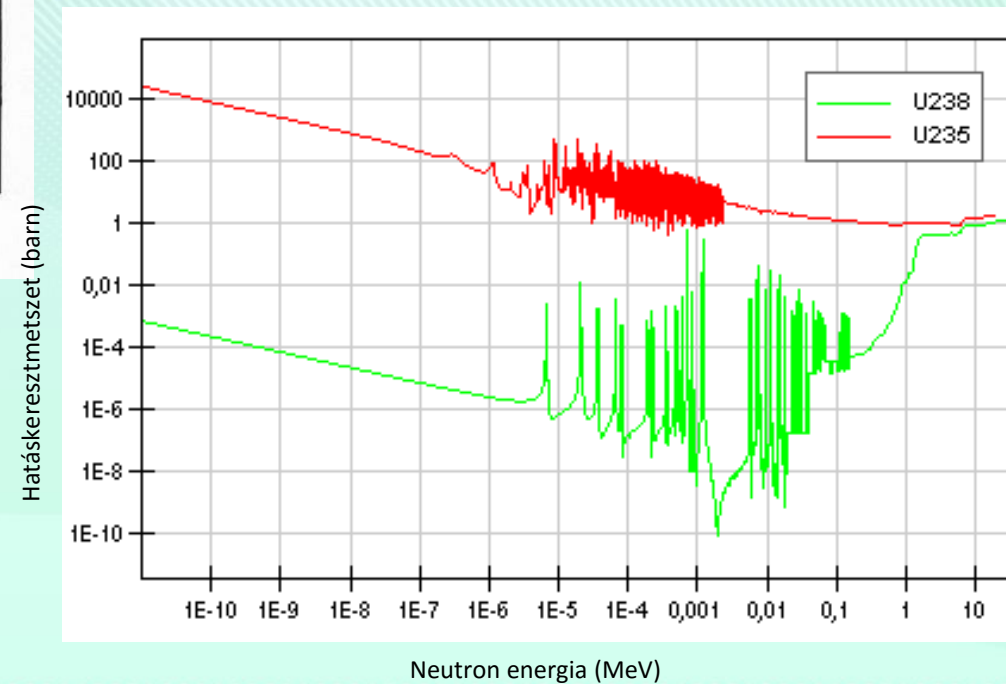
MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT

Neutronspektrum a csőpostában



Termikus neutronfluxus (cm ⁻² s ⁻¹)	5,53 × 10 ¹³
f (termikus – epitermikus fluxusarány)	38,3
α (1/E ^{1+α} epitermikus neutronfluxus eloszlásparamétere)	0,005
Gyors neutronfluxus (cm ⁻² s ⁻¹)	4,25 × 10 ¹²

Hasadási hatáskeresztmetszet



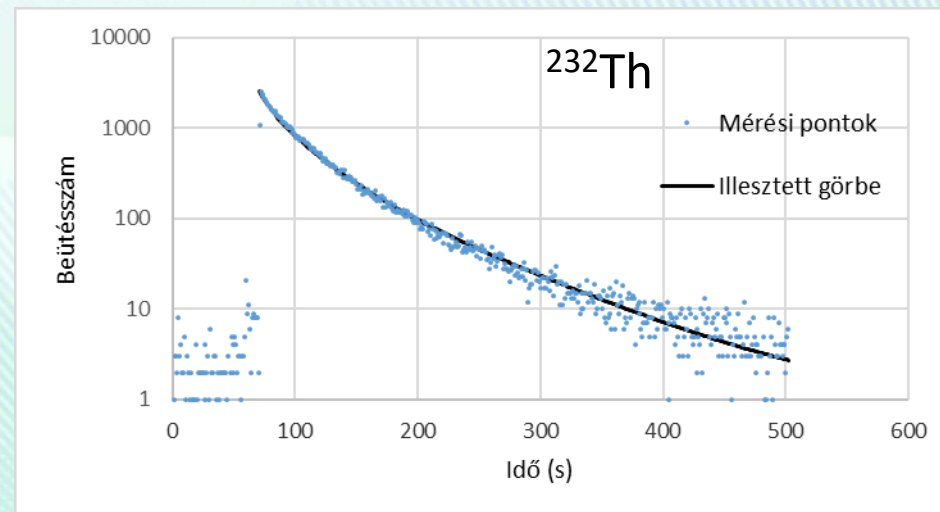
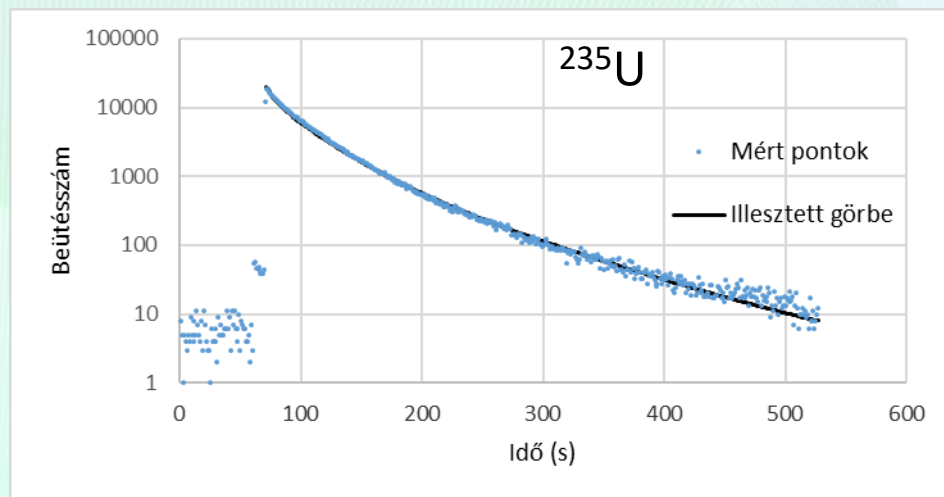
Nem csak lassú neutron van jelen, így elvileg a U-238, sőt még a Th-232 is hasadóképes

Neutrondetektor és PTR elektronika

Listamód: korlátlan adatfeldolgozás !



Az analitikai jel - A későneuronok nyolc csoportját jellemző felezési idő és csoportkoefficiens paraméterek



Csoport	$T_{1/2}(s)$	$\lambda_i (s^{-1})$	Abszolút hozam ^{235}U		Abszolút hozam ^{238}U		Abszolút hozam ^{232}Th	
1	55.6	0.012467	0.0328	\pm 0.0042	0.0084	\pm 0.0013	0.0334	\pm 0.0025
2	24.5	0.028292	0.1539	\pm 0.0068	0.104	\pm 0.0022	0.0733	\pm 0.0053
3	16.3	0.042524	0.091	\pm 0.009	0.0375	\pm 0.0008	0.0931	\pm 0.0019
4	5.21	0.133042	0.197	\pm 0.023	0.137	\pm 0.02	0.136	\pm 0.024
5	2.37	0.292467	0.3308	\pm 0.0066	0.294	\pm 0.012	0.3815	\pm 0.0076
6	1.04	0.666488	0.0902	\pm 0.0045	0.198	\pm 0.0023	0.1402	\pm 0.0082
7	0.424	1.634781	0.0812	\pm 0.0016	0.128	\pm 0.013	0.114	\pm 0.013
8	0.195	3.5546	0.0229	\pm 0.0095	0.0931	\pm 0.0034	0.0281	\pm 0.0006

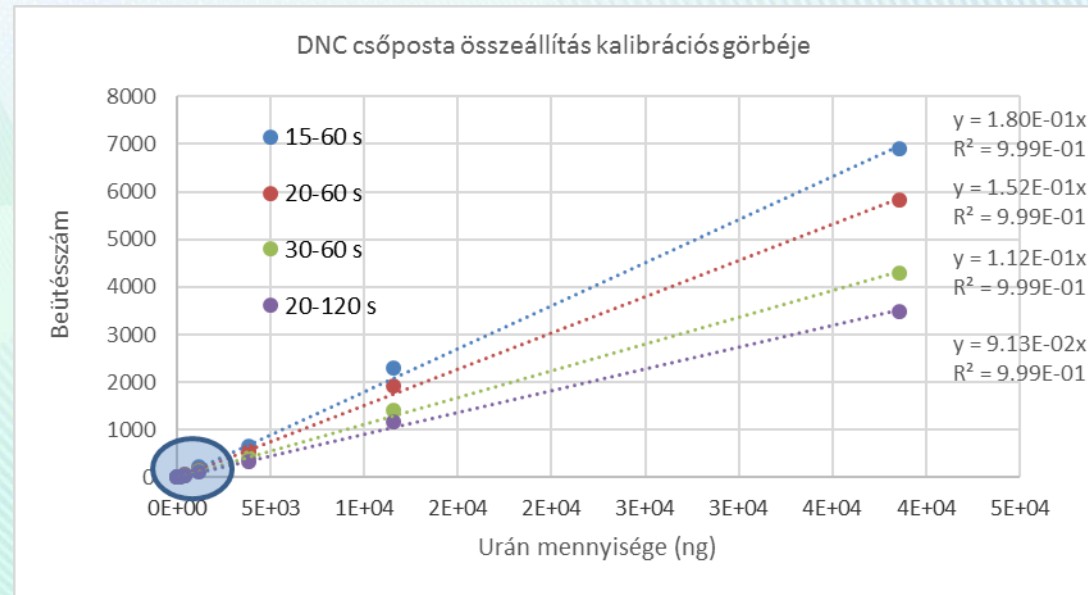
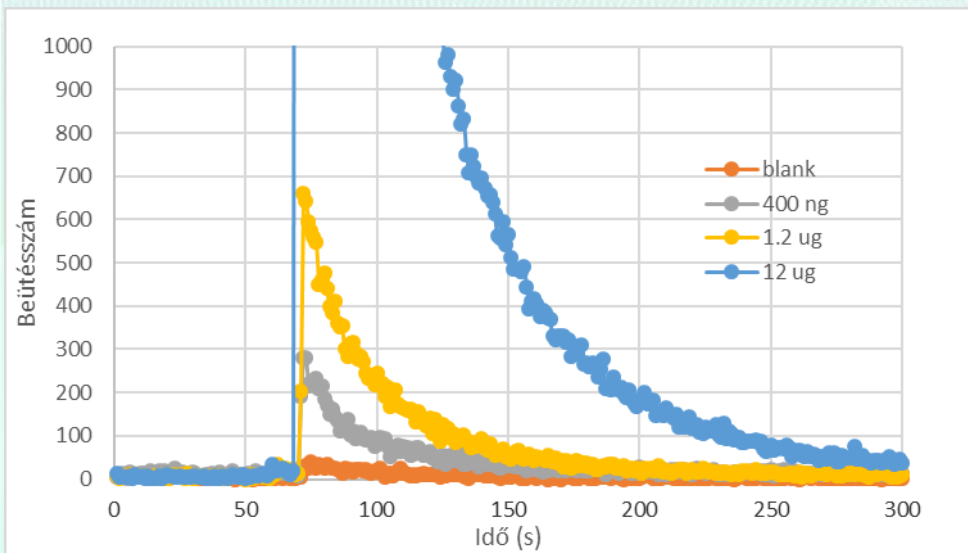
Besugárzási idő hatása

- a kb. 5 másodperces mintamozgatási idő miatt a 4-6 csoport teljesen figyelmen kívül hagyható, a 3 csoport intenzitása is negyedére csökken. A mért jel tehát főleg a 2. csoportból, kisebb részben az 1. csoportból származik. Az érzékenység maximalizálását tehát ezek telítésbe vitelével lehet elérni, amely azonban a párhuzamosan végbemenő (n,γ) reakciók, illetve a hasadványtermékek felhalmozódása miatt dozimetriai és hőterhelési aggályokat vethet fel.
- A tapasztalataink szerint 1 perces besugárzásnál a későneutron-hozam mintegy 60%-al haladta meg a 20 másodperces besugárzásnál mért értéket, és még hűtés nélkül is biztonságosnak tekinthető.
- Irodalmi adatok ezt a megfigyelést alátámasztják: az egy percen túli aktiválás már csak kissé növeli az érzékenységet és megfelelő optimumnak tekinthető.

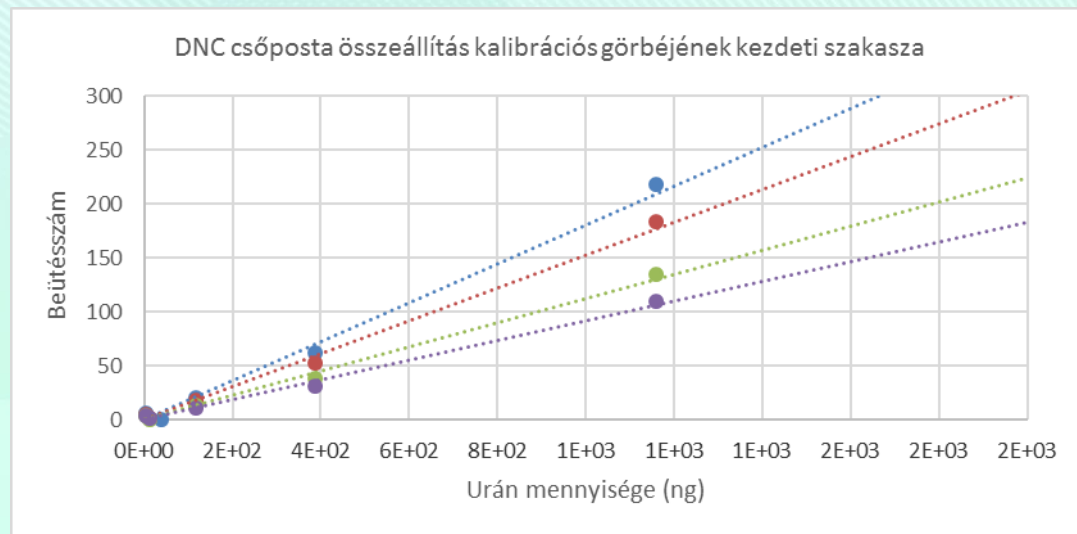
Háttér és blank

- Üzemelő reaktor esetén tapasztalható konstans szobaháttér kb. 2,3-2,6 cps
- Az üres mintatartó esetleges urántartalmából eredő, a mintával azonos idődinamikájú háttér
- A zavaró reakciók (pl. mintatartó oxigéntartalma miatt $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$, ahol utóbbi 4.14 s felezési idővel neutronkibocsátással bomlik
- A mérések során többször is in situ ellenőriztük a háttérkomponenseket (pl. minden mérés elején).
- A konstans szobaháttér értéke kb. 10%-on belül állandónak bizonyult, így korrekcióba vehető.
- A kimutatási határt főleg a kapszula okozta jel határozta meg: amikor Vespel helyett polietilén külső tokot alkalmaztunk, ahol az alapvonal lényegesen kisebbnek bizonyult.

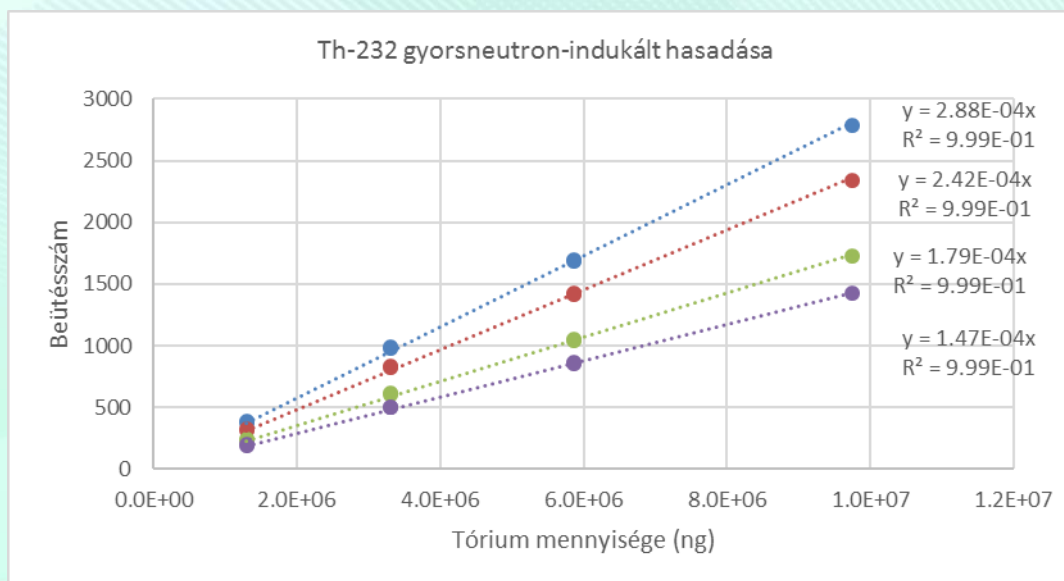
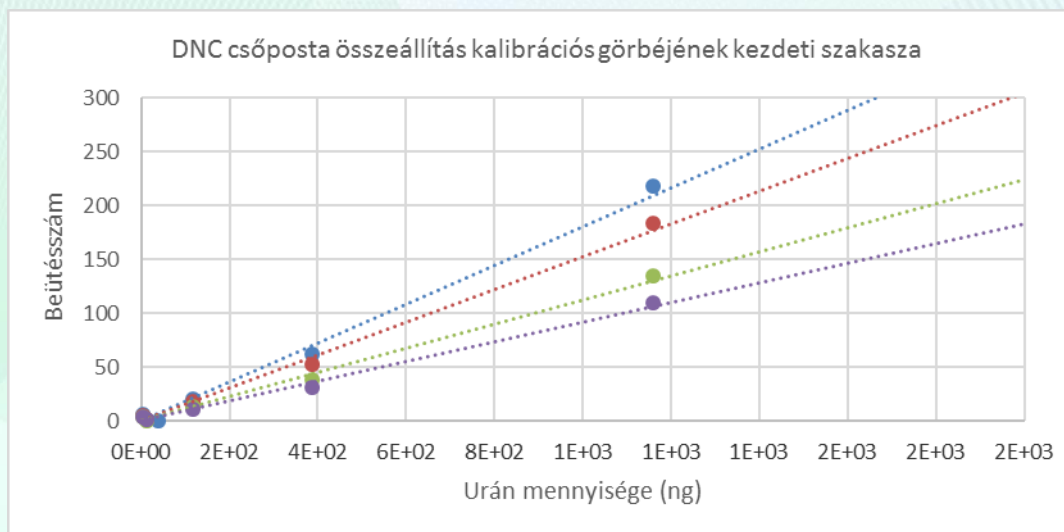
Kalibrációs görbék U-235-re



A 15-60 s, a 20-60 s, a 30-60 s és a 20-120 s közötti időablakokat dolgoztuk fel, az irodalmi ajánlások alapján.



U-235 és Th-232 relatív érzékenységei



Kb. 3 nagyságrend

Kimutatási határ

- 100 ng természetes urán (azaz kb. 1 ng ^{235}U) már a háttér kétszeresét és a háttér szórásának kb. tízszerest meghaladó jelet ad, így jelenleg ezt tekintjük a mennyiségi meghatározás alsó határának
- Ez megközelíti a korszerű, hasonló külföldi mérőhelyek teljesítőképességét (pl. a NIST-ben 20 ng U, 200 pg ^{235}U).
- Nem a beütések statisztikai ingadozása a meghatározó az ismételhetőségben, hanem a kísérleti faktorok (pl. trigger időzítés, az egyedi tokok okozta blank különbözősége).
- Jelenleg az eredmények reprodukálhatósága a kalibrációs tartomány alján kb. 5-10%, nagyobb urántartalmak esetén 2-3%.

Referencia minták mérése

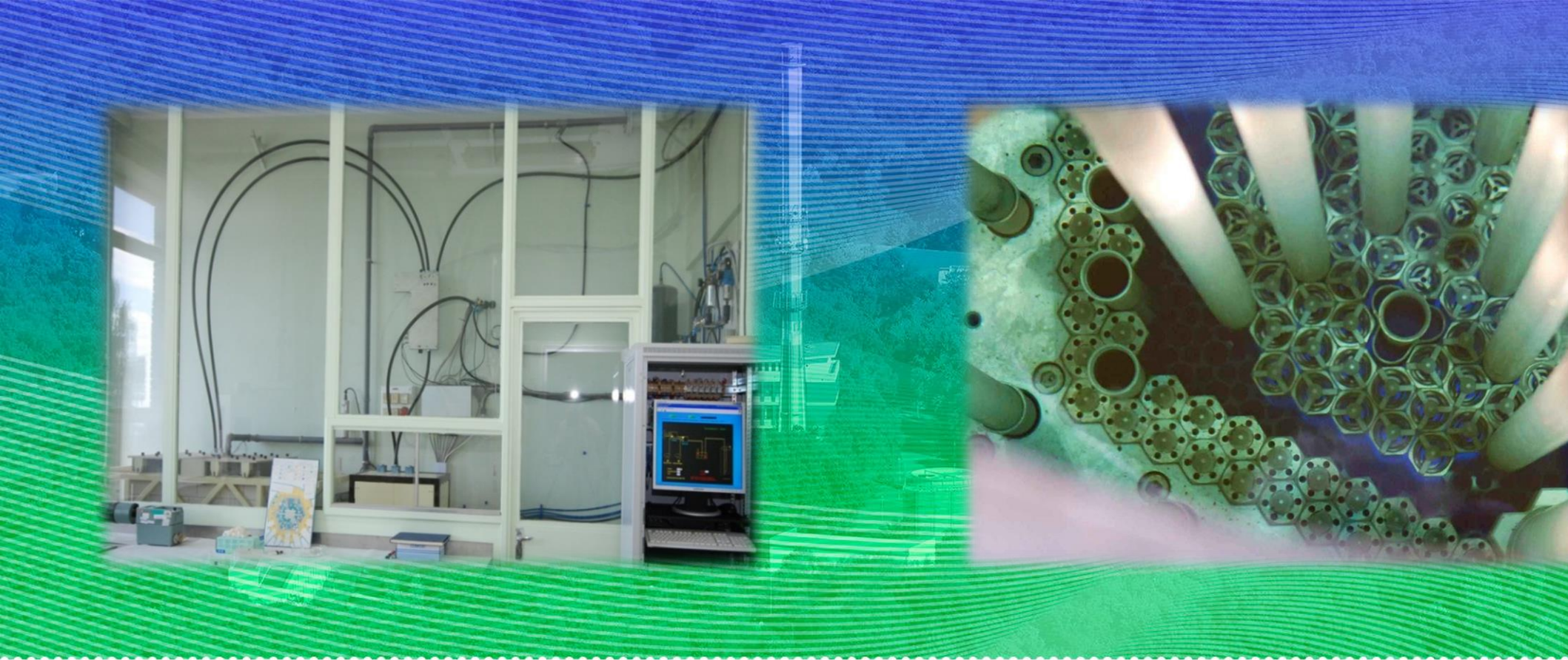
Minta neve	Típus	m (g)	nominális U koncentráció (ppm)	Mért beütésszám [20-120 s]	mért U tömeg (ng)	mért U koncentráció
IAEA-314 Stream Sediment	Geológiai standard	0.101421	56.8 ± 3.9	448	4871	50.5
ISE-952 Clay	Geológiai standard	0.109023	4.37 ± 0.8	40.0	439	4.0
USGS COQ-1 Carbonatite	Geológiai standard	0.120170	11 ± 0.6	119	1300	11.1
IAEA-CU-2006-06 Ceramic	Geológiai standard	0.104484	6.1 ± 0.5	53.3	585	5.6
VSI-051 Vörösiszap	Geológiai összemérés	0.115164	21.5 ± 0.94 (NAA) 15.7 ± 2.8 Bq/kg (γ-spektroszkópia) < 18 ppm (pXRF)	217	2374	20.6
USGS BCR-2 Basalt, Columbia River	Geológiai standard	0.147223	1.69 ± 0.19	23.0	247	1.7
USGS GSP-2 Granodiorite	Geológiai standard	0.103831	2.40 ± 0.19	25.9	283	2.7
USGS SDC-1 Mica Schist	Geológiai standard	0.162006	3.1 ± 0.2	45.5	498	3.0
IAEA SL-1 Lake Sediment	Geológiai standard	0.118909	4.02 ± 0.33	40.0	438	4.0
IAEA-SL-3 Lake Sediment	Geológiai standard	0.129169	2.3 ± 0.22	26.6	292	2.3
IRMM SP94086 (1) Al-0.2% U, 375ppm U-235, 99.962% U-238	Ötvözet	0.021715	0.75 ppm ²³⁵ U	216	17	0.8 ppm ²³⁵ U
		0.003228	0.75 ppm ²³⁵ U	31.3	2.7	0.8 ppm ²³⁵ U

MTA EK-ban rendelkezésre álló gerjesztő forrásokkal elérhető analitikai teljesítményjellemzők

Gerjesztő forrás	Paraméter	Koincidencia számlálás	Késő neutronok számlálása	
LINAC	Kimutathatósági határ ^{235}U -re	-	25 mg	
	Mérési idő	-	1 perc	
Hidegneutron nyaláb	Kimutathatósági határ ^{235}U -re	1 μg	10 ms-os tartomány	40-100 μg
			másodperces tartomány	40 μg
	Mérési idő	2,8 óra	10 ms-os tartomány	3000 s
			másodperces tartomány	1,5 óra
Reaktor, csőposta	Kimutathatósági határ ^{235}U -re	-	1 ng	
	Mérési idő	-	5-10 perc	

Összefoglalás

- A korábbi portfóliót kiegészítő mérés technikát sikerült meghonosítani, a berendezést kialakítani és bemérni
- A módszer kiváló linearitással rendelkezik a 4 ng – 40 mg természetes urán tartományon, több időablak analízise esetén is.
- Erősen szegényített urán, valamint tóriumminták besugárzásával bizonyítottuk, hogy a gyorsneutronok okozta zavaró reakciók nem torzítják az eredményeket.
- A kimutatási határt 1 ng U-235-re sikerült lecsökkenteni
- Kísérleti nehézségek (trigger időzítés, az egyedi tokok okozta blank különbözősége) még korlátozzák a reprodukálhatóságot és a kimutatási határt, így ezek megoldására további kísérleteket tervezünk.



Köszönöm a figyelmet!

Köszönjük az OAH-ABA-22/16-M számú szerződés anyagi támogatását



MAGYAR TUDOMÁNYOS AKADÉMIA
ENERGIATUDOMÁNYI KUTATÓKÖZPONT