



تعیین غلظت اورانیوم در سنگ معدن اورانیوم با استفاده از نوترون‌های تأخیری در راکتور مینیاتوری چشمه نوترون اصفهان (MNSR)

چامه سرا، فهیمه*^(۱) - شیرانی، احمد^(۱) - مختاری، جواد^(۲) - عمید، حسام^(۳)

^۱دانشگاه صنعتی اصفهان، دانشکده فیزیک، گروه فیزیک هسته‌ای

^۲سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای

^۳شرکت سوخت راکتورهای هسته‌ای

چکیده:

در این پژوهش، با استفاده از پرتودهی نمونه سنگ معدن اورانیوم با عیار مجهول در راکتور مینیاتوری اصفهان و شمارش نوترون‌های تأخیری آن و مقایسه نتایج با نتایج شمارش نوترون‌های تأخیری نمونه استاندارد، عیار یا غلظت اورانیوم در سنگ معدن اندازه‌گیری شده است. نمونه استاندارد و نمونه مجهول در زمان‌های مختلفی پرتودهی شدند و شمارش نوترون‌های تأخیری آنها در دو دقیقه ثبت شد. با توجه به دوبرابر بودن شمارش نمونه استاندارد نسبت به نمونه مجهول در دقیقه اول و دوم با دو آشکارساز مختلف BF_3 ، دو برابر بودن عیار اورانیوم در نمونه استاندارد نسبت به نمونه مجهول نتیجه گرفته شد. همچنین عیار اورانیوم در نمونه سنگ معدن اورانوفان که به عنوان نمونه استاندارد در نظر گرفته شد، از روش‌های طیف‌سنجی اتمی و اسپکتروسکوپی گاما (اکتیویته ویژه) به دست آمد.

کلمات کلیدی: نوترون تأخیری، سنگ معدن اورانیوم، غلظت اورانیوم، آشکارساز نوترون، راکتور مینیاتوری چشمه نوترون اصفهان (MNSR)

مقدمه:

نوترون‌های تأخیری نوترون‌هایی هستند که تا بعد از مدتی (تا حدود یک دقیقه) پس از عمل شکافت از پاره‌های شکافت گسیل می‌شوند. می‌توان نمونه سنگ معدن اورانیوم را در راکتور پرتو داد و با توجه به تعداد نوترون‌های تأخیری به غلظت سنگ معدن پی برد. نوترون‌های تأخیری را با توجه به نیمه عمرشان می‌توان در ۶ گروه دسته‌بندی

^۱Fission



کرد. نیمه عمر ۳ گروه از نوترون‌های تأخیری کمتر از $\frac{2}{3}$ ثانیه است. با توجه به زمان انتقال نمونه از راکتور به سیستم آشکارسازی، عملاً نمی‌توان آن‌ها را شمارش کرد. بنابراین سه گروه دیگر مولد نوترون‌های تأخیری که نیمه عمر بیشتری دارند مورد توجه هستند. در ادامه به چند مورد از کارهای تحقیقاتی که در آنها برای تعیین غلظت اورانیوم^{۲۳۵} از نوترون‌های تأخیری استفاده شده است، اشاره می‌شود.

در یک پروژه تحقیقاتی اندازه‌گیری مقدار اورانیوم در سنگ‌ها، سنگ معدن‌ها، رسوبات، فلزات، و گرافیت با استفاده از روش شمارش نوترون‌های تأخیری توسط هامپلتون^۳ و همکاران در راکتور A.W.R.E HERALD با قدرت ۵ مگاوات با شار نوترون $4 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ واقع در آلدرمستون انگلیس انجام شده است [۱]. در پروژه‌های دیگر توسط کاپسیمالیس^۴ و همکاران تعیین همزمان U^{235} و PU^{239} با استفاده از آنالیز فعال سازی نوترون‌های تأخیری در راکتور HFIR آمریکا صورت گرفته است [۲]. تعاملات عنصری در آنالیز اورانیوم با شمارش نوترون‌های تأخیری توسط کونزندورف^۵ و همکاران در راکتور تحقیقاتی DR 3 دانمارک با شار نوترون $2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ انجام شده است [۳]. در پژوهشی دیگر توسط مون^۶ و همکاران تعیین اورانیوم در نمونه‌های محیطی با آنالیز فعال سازی نوترون‌های تأخیری با استفاده از راکتور تحقیقاتی HANARO کره با شار نوترون $3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ انجام شده است [۴].

تعیین سریع غلظت اورانیوم و پلوتونیوم در ترکیب‌ها از طریق اندازه‌گیری منحنی شدت-زمان نوترون‌های تأخیری در راکتور تحقیقاتی مونیخ آلمان با روش اسکن چند کاناله با ۵ آشکارساز ^3He که روی یک سیستم انتقال سریع نصب شده است با شار نوترون $6 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ توسط هنکلمن^۸ و همکاران به انجام رسیده است [۵]. نهایتاً تعیین غلظت اورانیوم به روش فعال سازی نوترون‌های تأخیری در راکتور تحقیقاتی NIST آمریکا با شار نوترون $3/4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ در مقاله‌ای توسط اریکسون^۹ و همکاران ارائه شده است [۶].

با استفاده از شمارش نوترون‌های تأخیری حاصل از پرتودهی نمونه سنگ معدن با عیار مجهول و مقایسه با نتایج پرتودهی و شمارش نمونه استاندارد، می‌توان عیار یا غلظت سنگ معدن را اندازه‌گیری کرد. راکتور

^۱Uranium

^۲Hamilton

^۳Kapsimalis

^۴H.Kunzendorf

^۵J.H.Moon

^۶Detector

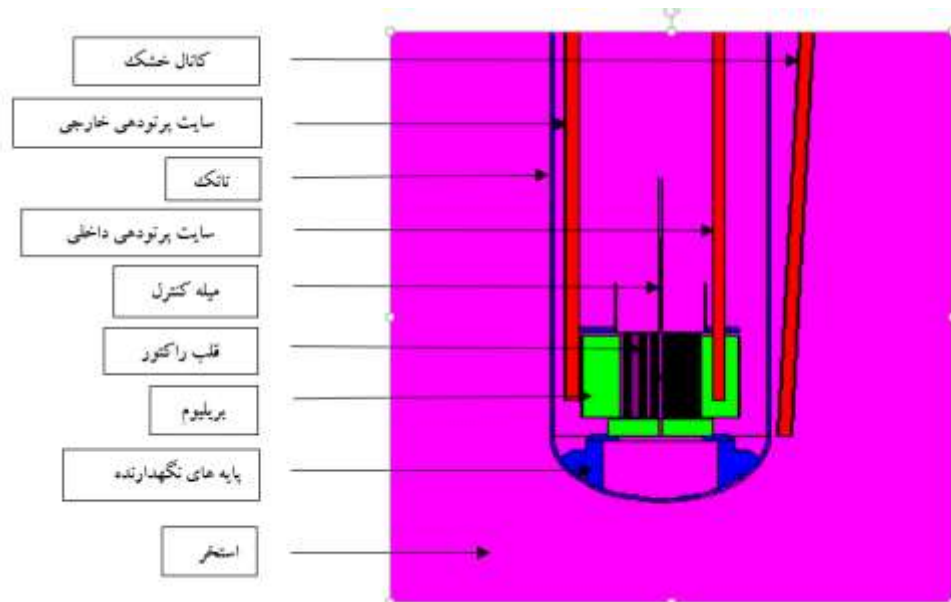
^۸R. Henkelmann

^۹M. Eriksson

MNSR به عنوان چشمه نوترون در نظر گرفته شده است که شار نوترون حاصل از راکتور در کانال داخلی $10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ است که برای پرتودهی نمونه سنگ معدن اورانیوم با عیار نامشخص استفاده می شود.

روش کار:

راکتور MNSR یک راکتور غیر همگن حرارتی، متراکم، ایمن، با قدرت کم و از نوع تانک-استخری است که در آن از اورانیوم با غنای بالا به عنوان سوخت، آب سبک به عنوان کند کننده و سرد کننده با انتقال حرارت طبیعی به صورت همرفت و خصوصیت زیر کنندگی، و از فلز بریلیوم به عنوان بازتابنده استفاده شده است. راکتور دارای قدرت حرارتی ۳۰ کیلووات بوده و شار حداکثر حرارتی آن $10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ است که در این توان حداکثر ۲/۵ ساعت قابل استفاده می باشد (شکل شماره ۱).



شکل شماره (۱). نمای کلی راکتور MNSR و اجزای آن.

در هر اندازه گیری نمونه سنگ معدن توسط سیستم رابیت به یکی از کانال های پرتودهی منتقل و در توان و زمان مشخصی پرتودهی می شود. سپس نمونه در زمانی بسیار کوتاه توسط سیستم رابیت به ظرف کند کننده منتقل می گردد. درحالی که نوترون های تأخیری حاصل از شکافت پرنوترونی و سریع هستند، بنابراین استفاده از کند کننده برای کاهش انرژی



نوترون‌های تأخیری ضروری است. همانطور که گفته شد در این پروژه برای شمارش نوترون‌های تأخیری از آشکارساز BF_3 استفاده شده است که این آشکارسازها توانایی شمارش نوترون‌های حرارتی را دارند. بنابراین نوترون‌های تأخیری برای اینکه شمارش شوند، بایستی کند شوند. یکی از کارهای انجام شده، طراحی و بهینه سازی کندکننده برای کند کردن نوترون‌های تأخیری می‌باشد که این موضوع به عنوان مقاله در بیست و پنجمین کنفرانس هسته‌ای ایران پذیرفته شده است [۷]. در این پژوهش ابتدا سنگ معدن اورانوفان در آزمایشگاه پودر شده و همگن شده و سپس مقدار یک گرم از این پودر به عنوان نمونه استاندارد درون پلاستیک‌های نازکی ریخته و پیچیده شده و با حرارت کاملاً بسته شده است. نمونه مجهول (این نمونه توسط پرسنل راکتور مینیاتوری نمونه سازی شده و برای پژوهشگر مجهول بوده است) که شامل ۰/۵ گرم سنگ معدن پودر شده اورانوفان و ۰/۵ گرم از نوعی سنگ فاقد اورانیوم می‌باشد، نیز به همین روش بسته‌بندی شده است. بعد از آن نمونه درون کپسول‌های پلی اتیلنی قرار داده شد. راکتور مورد استفاده در این پژوهش، راکتور مینیاتوری اصفهان (MNSR) می‌باشد. این راکتور مجهز به دو سیستم پنوماتیک است که وظیفه انتقال نمونه‌ها به داخل راکتور و خارج کردن آنها را به عهده دارد. مدت زمان پرتو دهی در این آزمایش ۲ دقیقه می‌باشد. نمونه استاندارد داخل کپسول پلی اتیلنی مورد نظر به وسیله سیستم ریبت و با استفاده از فشار هوا به داخل راکتور مینیاتوری منتقل، پرتو دهی و خارج می‌گردد. پس از خروج از راکتور بلافاصله کپسول حاوی نمونه را به درون کندکننده و در مرکز آن منتقل کردیم. از آنجا که بیشترین نیمه عمر نوترون‌های تأخیری ۵۵/۷ ثانیه است، به مدت ۲ دقیقه شمارش نوترون‌های تأخیری را ثبت کردیم. در مرحله بعد نمونه مجهول را نیز به همین روش پرتو دهی کرده و شمارش نوترون‌های تأخیری آن را ثبت کردیم (شکل شماره ۲ ملاحظه شود).



شکل شماره (۲). اتاق پرتو دهی نمونه و سیستم ریبت.



غلظت اورانیوم موجود در نمونه استاندارد (سنگ معدن اورانوفان)، در آزمایشگاه بخش هسته‌ای مرکز هسته‌ای اصفهان هم از روش طیف‌سنجی اتمی و هم از روش اسپکتروسکوپی گاما، اندازه‌گیری شده است که در روش طیف‌سنجی اتمی عیار با دستگاه ICP_OES به دست آورده شده که مقدار آن 0.12% با خطای 0.01% محاسبه شد و در روش اسپکتروسکوپی گاما ابتدا در آزمایشگاه و با استفاده از آشکار ساز HPGe با اندازه‌گیری طیف انرژی گاما، اکتیویته آن به دست آورده شد که مقدار $0.14 \pm 4700 \text{ Bq}$ شد و با تقسیم این مقدار بر وزن نمونه مقدار اکتیویته ویژه آن را به دست آوردیم و با تقسیم اکتیویته ویژه آن بر اکتیویته ویژه اورانیوم طبیعی ($10^{-10} \times 6/91 \text{ ci/gr}$)، عیار اورانیوم 235 به دست آمد. مقادیر عیار به دست آمده در جدول شماره ۱ آورده شده است.

جدول شماره (۱). روش‌های اندازه‌گیری عیار اورانیوم در نمونه استاندارد.

روش اندازه‌گیری عیار	مقدار عیار به دست آمده
طیف‌سنجی اتمی	$0.12 \pm 0.01\%$
اسپکتروسکوپی گاما	$0.11 \pm 0.02\%$

نتایج:

نتایج نهایی حاصل از شمارش، در جدول شماره ۲ آورده شده است. همانطور که مشخص است نمونه استاندارد و مجهول به صورت جداگانه پرتو دهی شدند و شمارش نوترون‌های تأخیری آنها در دقیقه اول و دوم ثبت شد. همانطور که از جدول پیداست شمارش نمونه استاندارد در دقیقه اول و دوم و همچنین مجموع شمارش آن در مدت زمان ۲ دقیقه، حدوداً ۲ برابر شمارش نمونه مجهول در دقیقه اول و دوم و همچنین مجموع شمارش آن شده است. از آنجا که عیار نمونه استاندارد 0.12% اندازه‌گیری شده است، با توجه به دو برابر بودن تعداد نوترون‌های تأخیری نمونه استاندارد نسبت به نمونه‌ای که به عنوان نمونه مجهول در نظر گرفته شده است، می‌توان نتیجه گرفت که عیار نمونه مجهول حدوداً 0.06%



% می‌باشد. از آنجا که نمونه‌ای که ما به عنوان نمونه مجهول در نظر گرفتیم و در آزمایشگاه نمونه‌سازی شده است، نمونه‌ای یک گرمی شامل ۰/۵ گرم از سنگ معدن پودر و همگن شده اورانوفان به همراه ۰/۵ گرم از نوعی سنگ موجود در آزمایشگاه که فاقد اورانیوم بوده، می‌باشد، بنابراین غلظت اورانیوم در این نمونه مجهول ۰/۰۶% است. نتایج آزمایش انتظار ما را برآورده کرده است و درستی روش شمارش نوترون‌های تأخیری را به ما نشان می‌دهد. همانگونه که انتظار داشتیم شمارش نمونه استاندارد دو برابر شمارش نمونه‌ای که ما به عنوان نمونه مجهول در نظر گرفتیم شده است. بنابراین روش شمارش نوترون‌های تأخیری به درستی اعتبار سنجی شده است. با توجه به نتایج به دست آمده می‌توان عیار اورانیوم در هر نوع سنگ معدن اورانیوم با عیار مجهول را از روش شمارش نوترون‌های تأخیری به دست آورد.

جدول شماره (۲). نتایج حاصل از شمارش نوترون‌های تأخیری.

آشکارساز BF_3 (۲)			آشکارساز BF_3 (۱)			نمونه
مجموع شمارش در دو دقیقه	شمارش در دقیقه دوم	شمارش در دقیقه اول	مجموع شمارش در دو دقیقه	شمارش در دقیقه دوم	شمارش در دقیقه اول	
۱۰۱۱۵±۱۰۰	۳۳۶۱±۵۸	۶۷۵۴±۸۲	۹۸۵۹±۹۹	۳۲۶۴±۵۷	۶۵۹۵±۸۱	استاندارد(سنگ معدن اورانوفان)
۴۹۴۸±۷۰	۱۶۱۴±۴۰	۳۳۳۴±۵۷	۴۸۵۳±۶۹	۱۶۴۸±۴۱	۳۲۰۵±۵۶	نمونه مجهول
۲/۰۴±۰/۰۳۵	۲/۰۸±۰/۰۶۳	۲/۰۳±۰/۰۴۳	۲/۰۳±۰/۰۳۵	۱/۹۸±۰/۰۵۹	۲/۰۶±۰/۰۴۳	نسبت(شمارش نمونه استاندارد به شمارش نمونه مجهول)



بحث و نتیجه‌گیری

در این پژوهش با استفاده از دو آشکارساز گازی BF_3 نوترون‌های تأخیری حاصل از شکافت اورانیوم در یک نمونه سنگ معدن اورانیوم با غلظت مشخص و یک نمونه سنگ معدن اورانیوم به عنوان نمونه مجهول آشکارسازی و شمارش شد. نتایج حاصل برای تعیین غلظت اورانیوم در نمونه مجهول قابل قبول بود. لازم به ذکر است که نمونه‌های مجهول بیشتری در اختیار داشتیم اما از آنجا که دز نوترون بالا بود و سیستم انتقال نمونه به داخل کندکننده اتوماتیک نبود و به صورت دستی انجام شد، به دلیل شرایط ایمنی کار، امکان پرتودهی سایر نمونه‌ها میسر نشد.

مراجع:

[1] Hamilton E.I "The determination of uranium in rocks and minerals by the delayed neutron method", [Earth and Planetary Science Letters](#), **Volume 1, Issue 2**, March 1966, Pages 77-81

[2] Kapsimalis R" The simultaneous determination of ^{235}U and ^{239}Pu using delayed neutron activation analysis "Journal of Radio analytical and Nuclear Chemistry December 2013, Volume 298, [Issue 3](#), pp 1721–1726

[3] Kunzendorf H" Elemental interferences in the analysis of uranium by delayed-neutron counting "[Volume 15, Issues 1–3](#), 1981, Pages 583-595

[4] Moon J.H"U determination in environmental samples by delayed neutron Activation analysis in Korea "[Journal of Radio analytical and Nuclear Chemistry](#) October 2009

[5] Henkelmann R "Rapid determination of uranium and plutonium content in mixtures through measurement of the intensity–time curve of delayed neutrons "[Volume 215, Issues 1–2](#), January 2004, Pages 246-251

[6] Eriksson M "Delayed-neutron activation analysis at NIST "December 2013, Volume 298, [Issue 3](#), pp 1819–1822

[7] چامه سرا، ف، شیرانی، الف، خورسندی، ج، مختاری، ج، طراحی ظرف کند کننده نوترون‌های تأخیری در سیستم اندازه گیری عیار سنگ معدن اورانیوم با استفاده از راکتور *MNSR*، بیست و پنجمین کنفرانس هسته ای ایران، دانشگاه آزاد اسلامی واحد بوشهر، ۱۳۹۷.