



Uránminták kormeghatározása gamma-spektrometriai módszerrel (2. év)

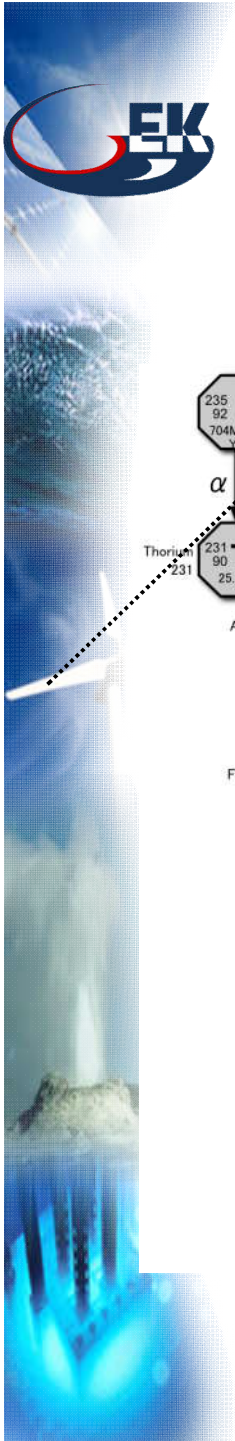
Kocsonya András, Lakosi László

MTA Energiatudományi Kutatóközpont Sugárbiztonsági Laboratórium



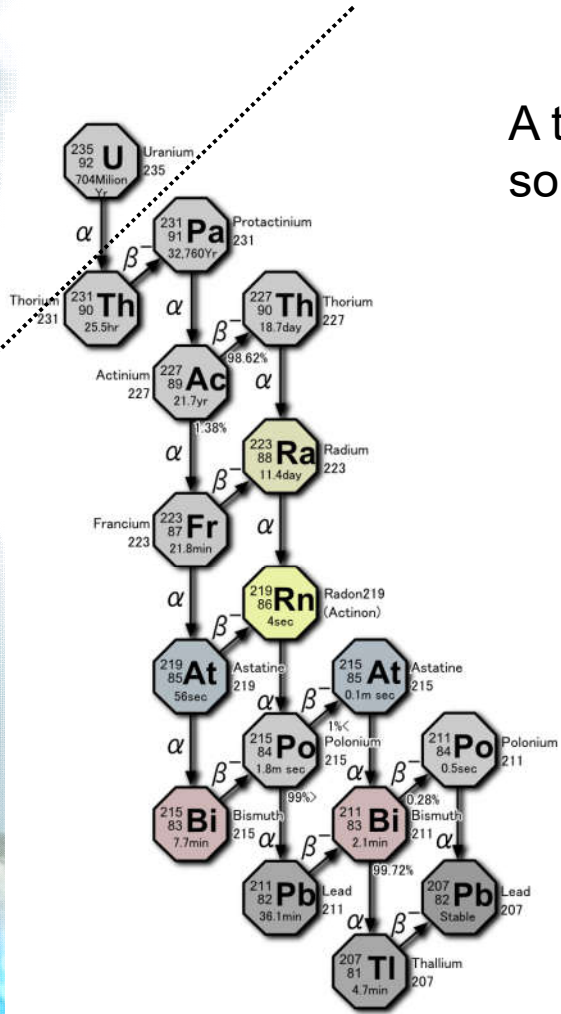
Előzmények

- [1] Zsigrai J., Nguyen Cong T., Lakosi L.: Uránminták korának gamma-spektroszkópiai meghatározása, Az OAH és az MTA IKI között kötött, OAH/ÁNI-ABA-02/04 számú szerződés teljesítéseként készült jelentés (2004)
- [2] Zsigrai J, Nguyen C, Lakosi L,: Közepes dúsítású uránminták korának gamma-spektroszkópiai meghatározása, Az OAH és az MTA IKI között kötött, OAH/ÁNI-ABA-05/05 számú szerződés teljesítéseként készült jelentés (2005)
- [3] Zsigrai J., Nguyen Cong T., Lakosi L.: Kutatóreaktori urán fűtőelem-kötegek korának gamma-spektroszkópiai meghatározása, Az OAH és az MTA IKI között kötött, OAH/ÁNI-ABA-04/06 számú szerződés teljesítéseként készült jelentés (2006)
- [4] Zsigrai József, Nguyen Cong Tam, Lakosi László:
Nagydúsítású uránminták karakterizálása gamma-spektrometriával
OAH/ÁNI-ABA-12/07 (2007)
- [5] Zsigrai J, Nguyen Cong T, Lakosi L, Alacsony dúsítású uránt tartalmazó tárgyak korának meghatározása. Az OAH és az MTA IKI között kötött, OAH/ÁNI-ABA-09/07 számú szerződés teljesítéseként készült jelentés (2007)
- [6]: Nguyen Cong Tam, Lakosi László, Szabó Sándor:
Uránminták kormeghatározása gamma-spektrometriai módszerekkel
OAH NBI ABA 15/13M (2013)
- [7] Almási István, Kocsonya András, Kovács Zsuzsanna, Nguyen Cong Tam:
Uránminták kormeghatározása gamma-spektrometriai módszerekkel
OAH NBI ABA 14/14-M (2014)

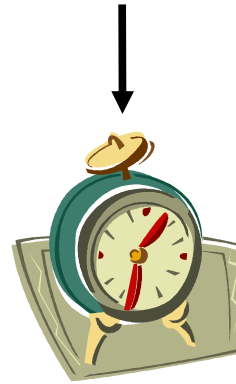


Nukleáris anyagok kora

kor: az utolsó kémiai tisztítás / dúsítás óta eltelt idő

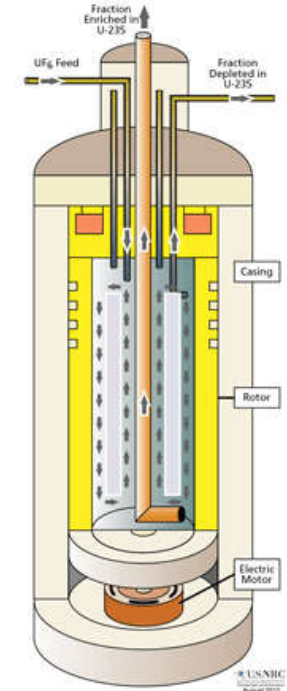


A tisztítási folyamat során a leányelem-sor eltávolításra kerül az anyagból.

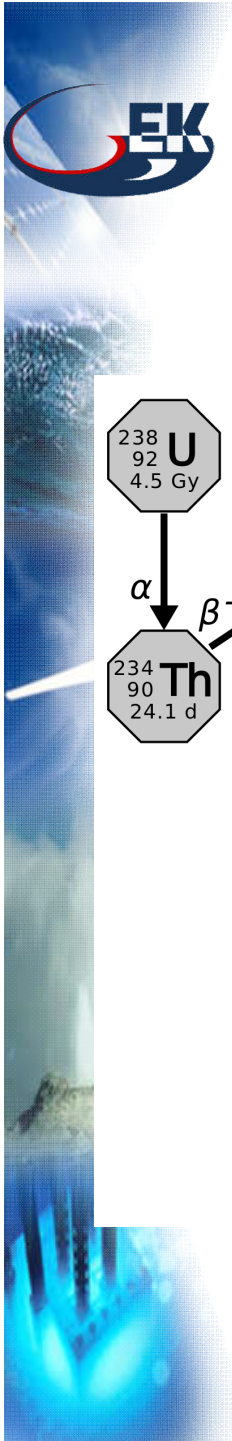


A tisztítás után a leányelem-sor ismét felépül.

A leányelem / anyaelem arányból a nukleáris anyag kora meghatározható.

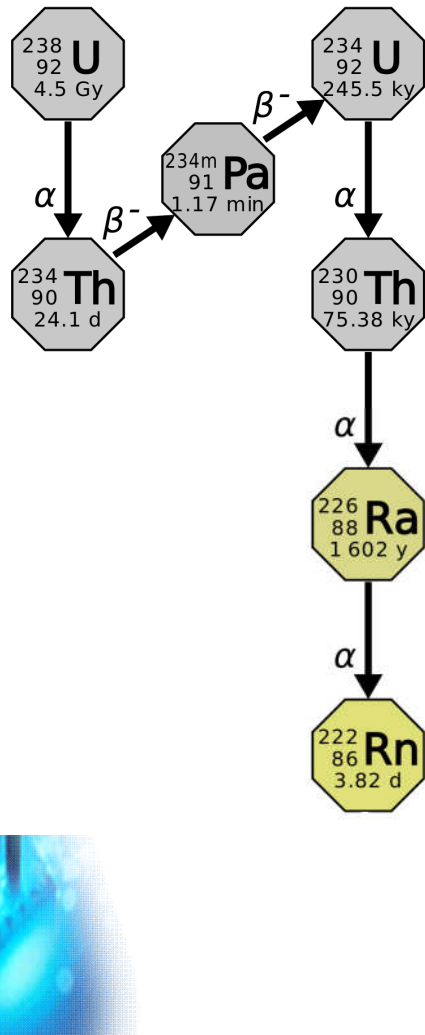


Schematic of a centrifuge



Urán-kormeghatározás

^{238}U : 4.468×10^9 év felezési idő túl hosszú ahhoz, hogy ésszerű idő alatt mérhető mennyiségű leányelem keletkezzen
 ^{234}U : 2.455×10^5 év



$^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U}$: a bomlás következtében $1000 \times$ kevesebb keletkezik, mint amennyi a természetes uránban van

^{234}U : 53.20 keV 0.123%, 120.90 keV 0.0342%

^{230}Th nyomnyi mennyiségben nem mérhető gamma-spektrometriával (67.67 keV 0.377%)

tömegspektrometriás kormeghatározás: $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ arány

$$\frac{m_{\text{Th}230}}{m_{\text{U}234}} = \frac{M_{\text{Th}}}{M_{\text{U}}} \lambda_{\text{U}234} T$$

^{226}Ra 186.2 keV 3.59% (ez az egyetlen gamma vonala)

$\leftrightarrow ^{235}\text{U}$ 185.7 keV 57.2%

^{226}Ra leányelemei rövid felezési idejűek

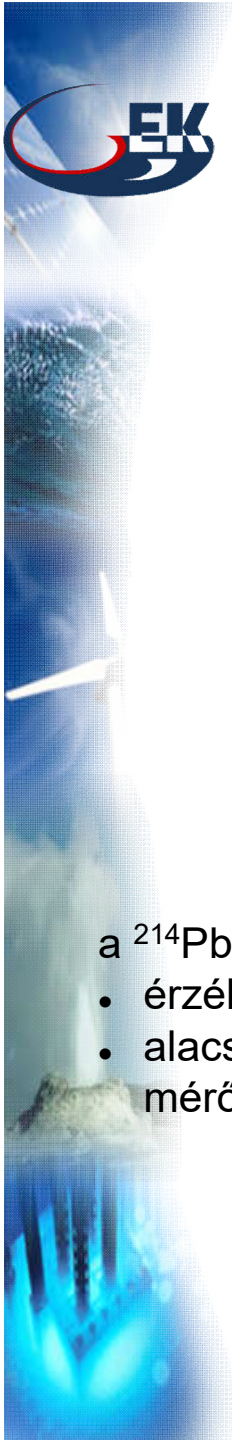
leghosszabb (^{222}Rn 3.82 nap)

szekuláris egyensúly a ^{226}Ra -tal

^{214}Bi : sok erős gamma-vonala van

(609.3 keV, 1120.3 keV, 1764.5 keV)

könnyen mérhető gamma-spektrometriával



Urán-kormeghatározás gamma-spektrometriával

a radioaktív bomlás kinetikája:
$$\frac{A_{Bi\ 214}}{A_{U\ 234}} = \frac{A_{Ra\ 226}}{A_{U\ 234}} = \frac{1}{2} \lambda_{Th} \lambda_{Ra} T^2$$

$$\frac{A_{214Bi}}{A_{234U}} = \frac{A_{214Bi}}{A_{238U}} \times \frac{A_{238U}}{A_{235U}} \times \frac{A_{235U}}{A_{234U}} = \frac{A_{214Bi}}{A_{234mPa}} \times \frac{A_{238U}}{A_{235U}} \times \frac{A_{235U}}{A_{234U}}$$

$^{214}Bi/^{234m}Pa$ aktivitásarányt kell mérni

^{214}Bi : 609.3 keV (46.1%)

^{234m}Pa : 766.4 keV (0.294%)

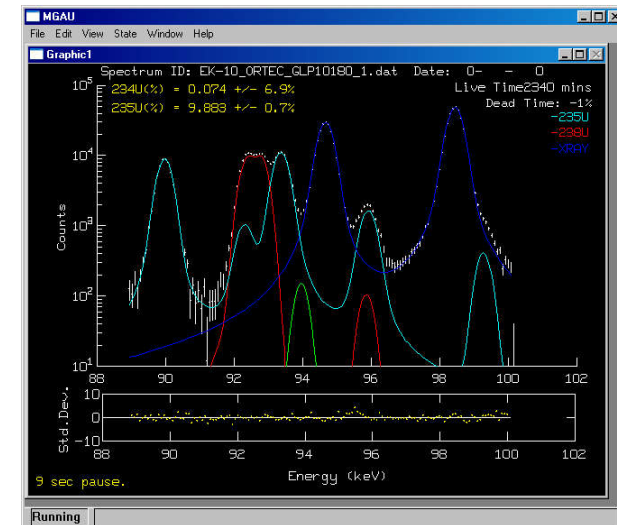
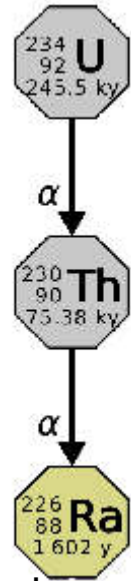
Mérés: koaxiális vagy üreges HPGe detektorral

a ^{214}Pb kis aktivitása miatt:

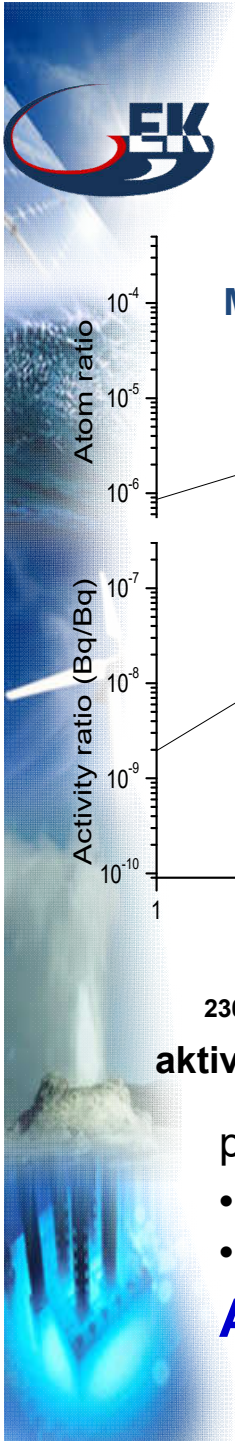
- érzékeny detektor
- alacsony háttérű mérőhely



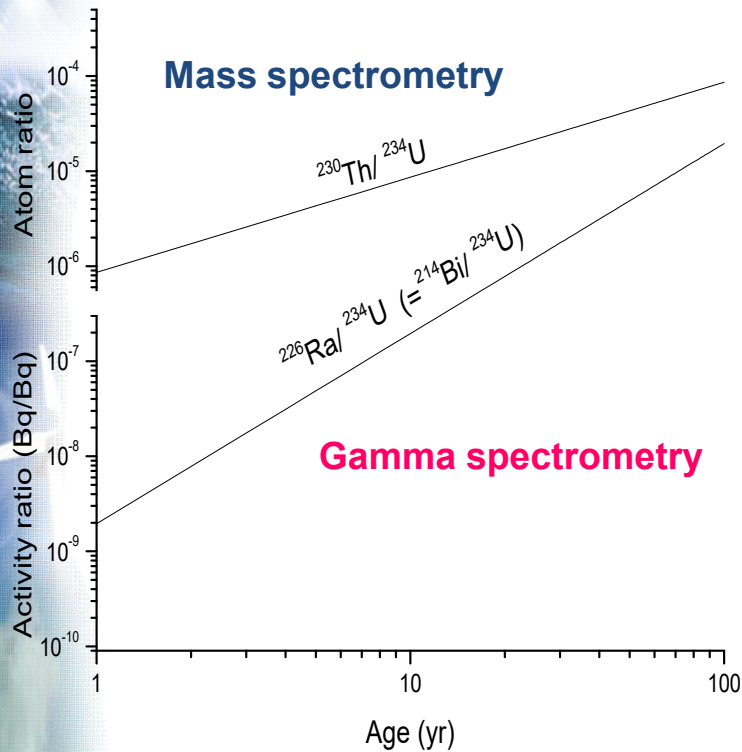
az urán izotóparányt kell mérni
mérés: planár HPGe detektor
(jó energiafelbontás)
értékelés: MGAU program



A módszert az MTA IKI Sugárbiztonsági osztály munkatársai dolgozták ki.



A gamma-spektrometriás kormeghatározás határai

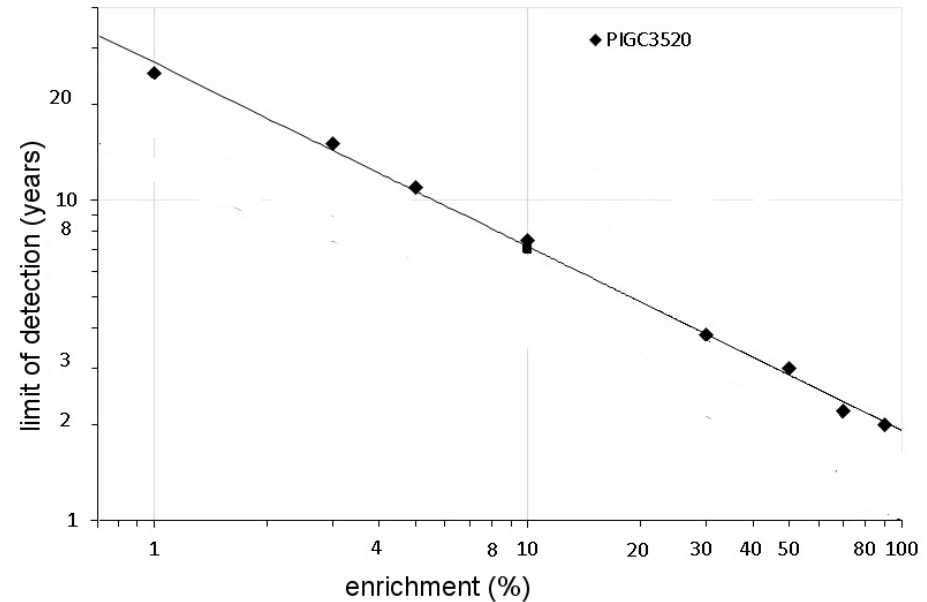


$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ atomarány / $^{214}\text{Bi}/^{234}\text{U}$
aktivitásarány az urán életkor szerint

problémás eset:

- alacsony dúsítás: kevés ^{234}U
- fiatal kor: kevés leányelem keletkezett

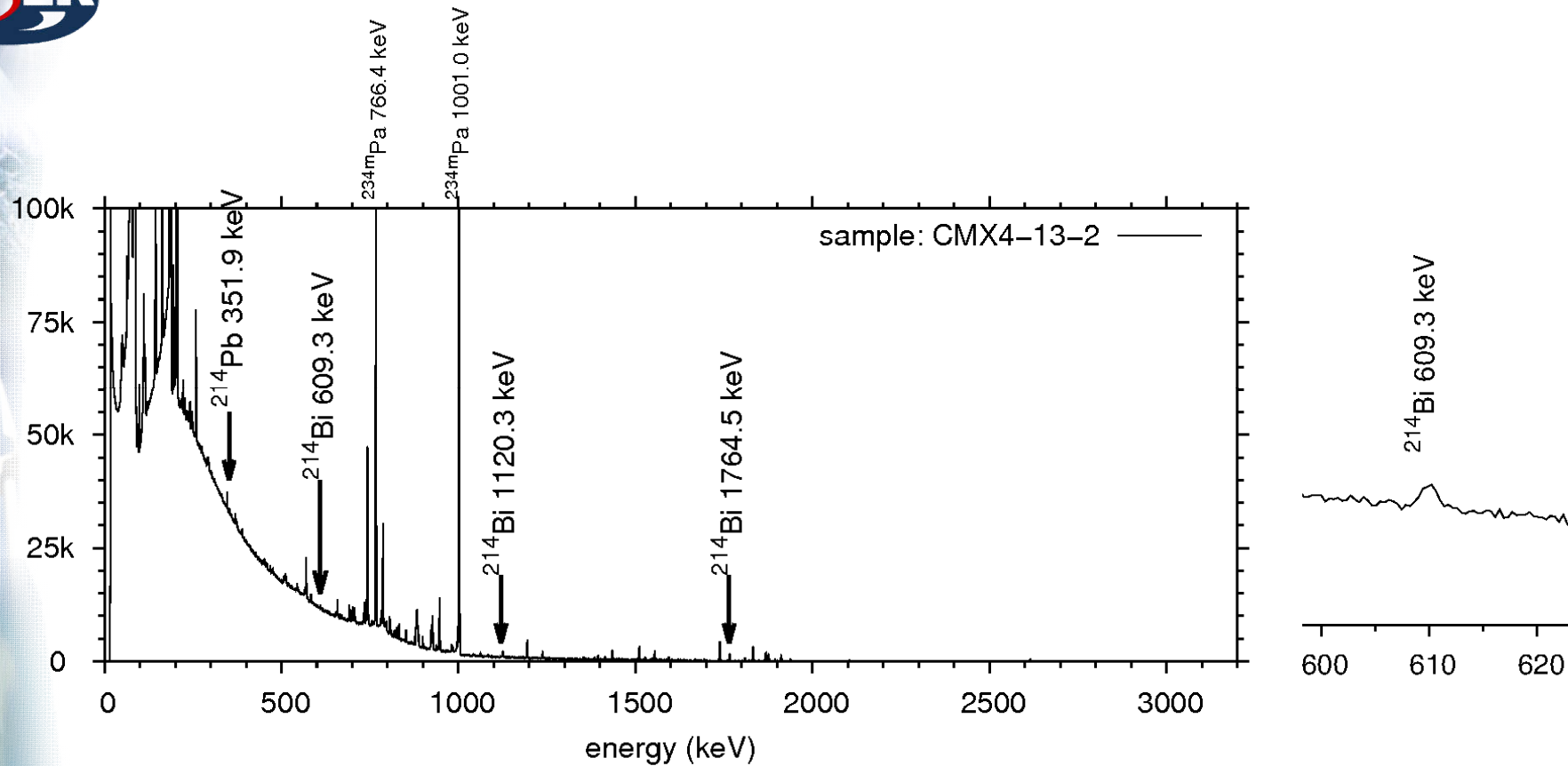
**A korra vonatkozó kimutatási határ
a ^{214}Bi kimutatási határ csökkentésével
javítható**



A gamma-spektrometriás kormeghatározás
kimutatási határa az urán-dúsítás szerint



Miért a ^{214}Bi 609.3 keV-es vonalát mérjük?

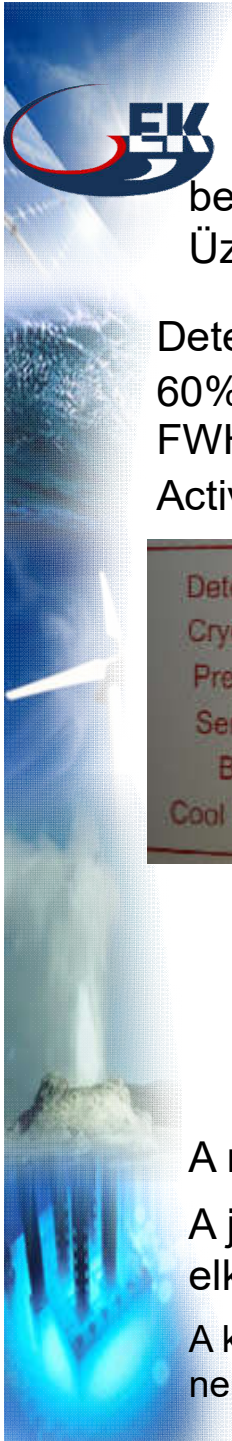


^{214}Pb 351.9 keV (+295.2 keV, 242.0 keV): a folytonos háttér túl magas

^{214}Bi 1120.3 keV \leftrightarrow $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 1120.6 keV

^{214}Bi 1764.5 keV: az árnyékolás kevésbé hatásos, határfok lényegesen csökken

nehézség a ^{214}Bi 609.3 keV-es vonal mérésénél: a $^{234\text{m}}\text{Pa}$ 1001.0 keV-es vonalához tartozó Compton-háton ül



Az üreges HPGe detektor jellemzői

beszerzés: 2014 augusztus

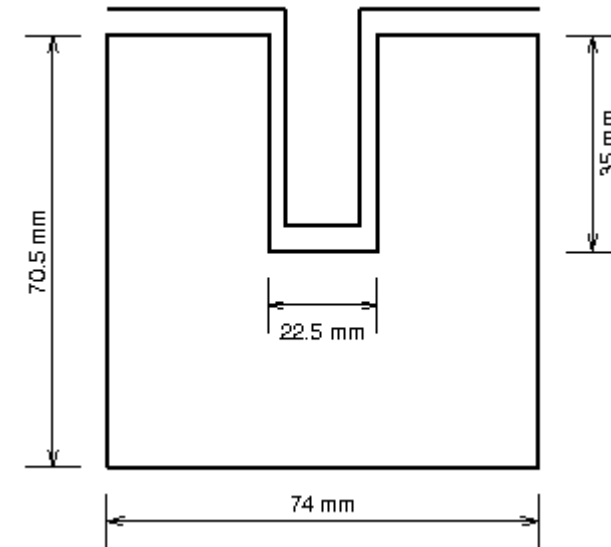
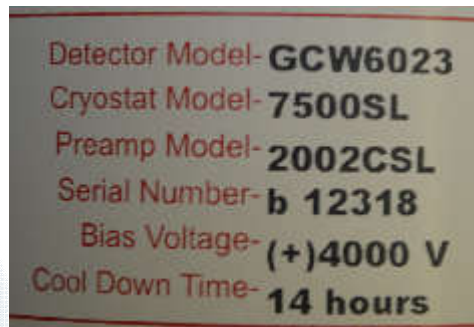
Üzembe helyezés, első tapasztalatok → 2014 évi jelentés

az üreg átmérője: 14 mm
mélysége: 40 mm

Detector type: Canberra GCW 6023

60% relative efficiency,
FWHM = 2.3 keV @ 1332.5 keV of ^{60}Co

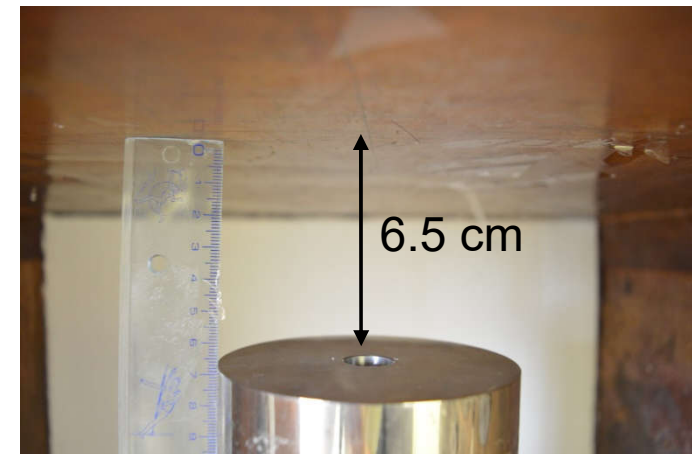
Active volume: 293 cm³



A minta mérete korlátozott: üreg átmérő 14 mm

A jó detektálási hatásfok miatt, a magas holtidő elkerülése érdekében a minták aktivitása < 1 kBq

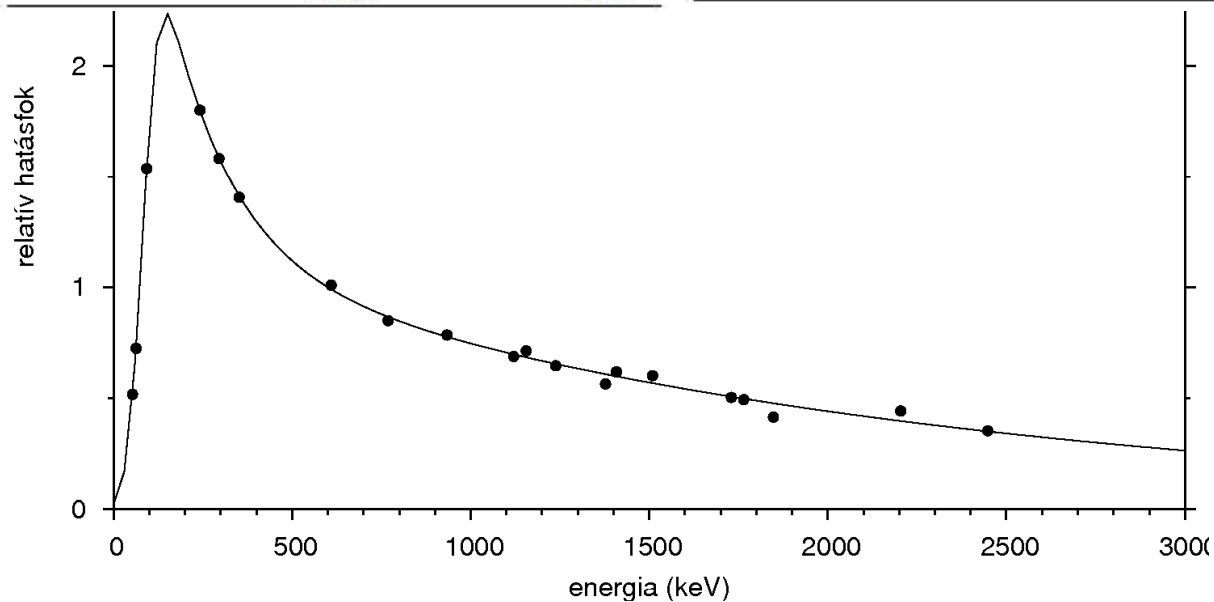
A kamra mérete miatt szokásos méretű kémcsövek nem alkalmasak mintatartónak.

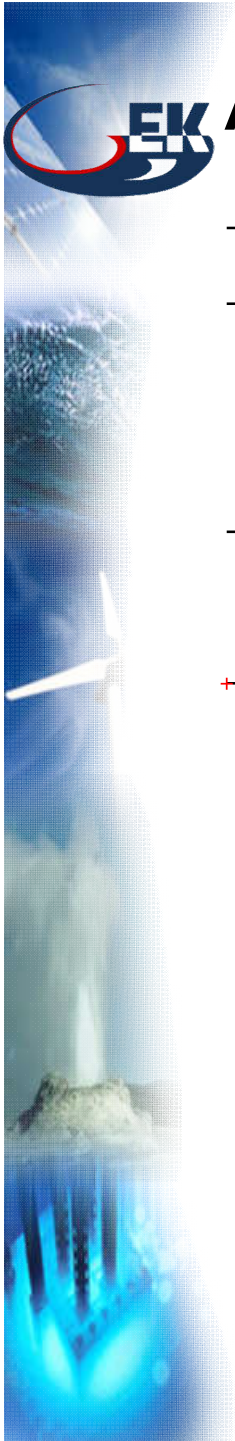




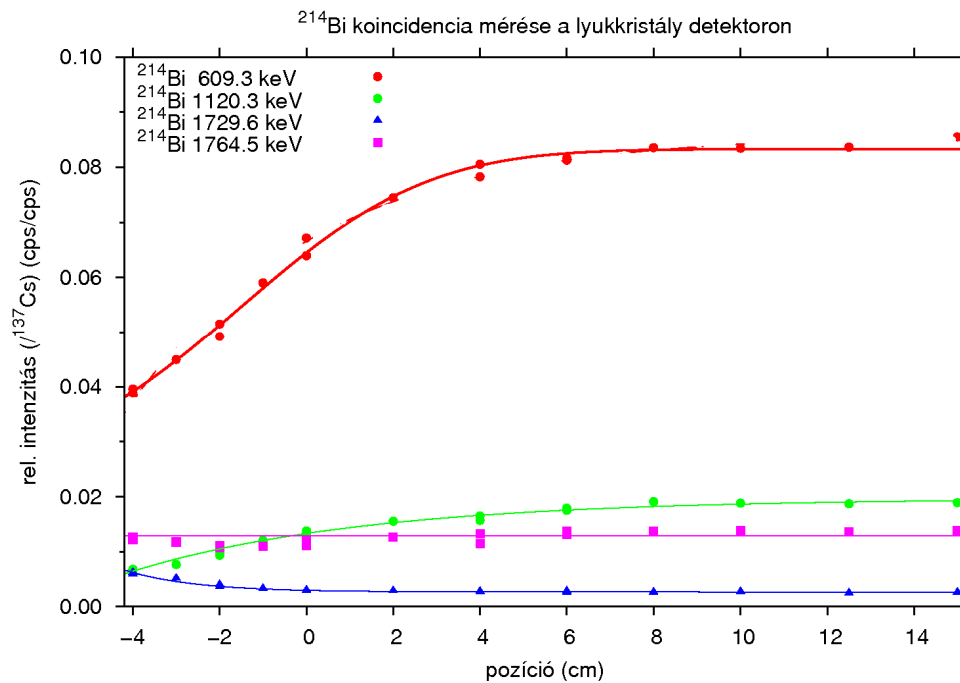
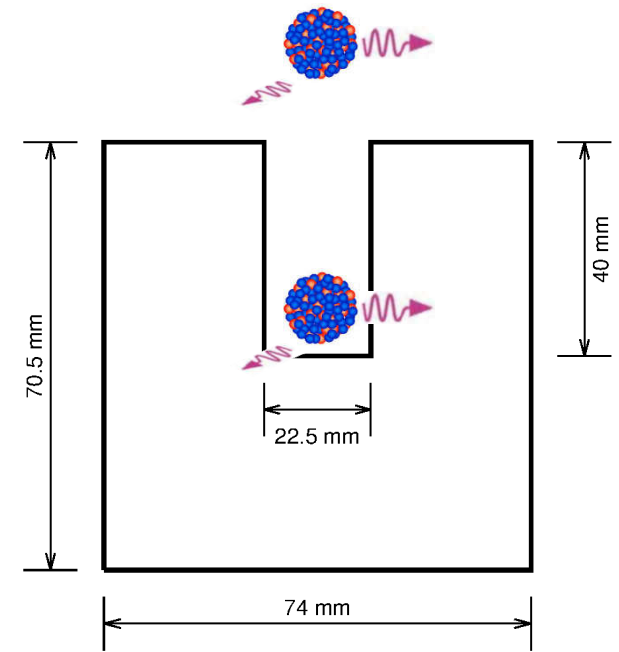
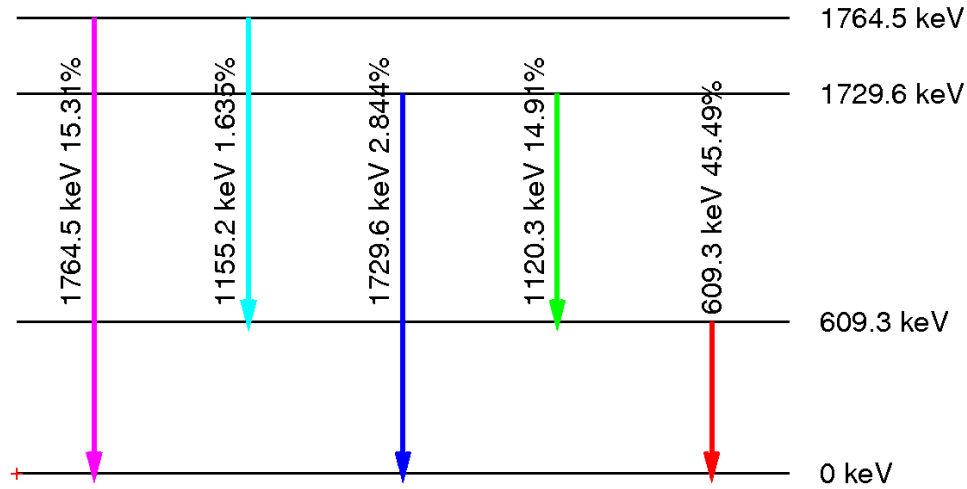
Az üreges HPGe detektor hatásfokkalibrációja

nuklid	energia (keV)	gyakoriság (%)	nuklid	energia (keV)	gyakoriság (%)
^{234}Th	63.3	4.80	^{214}Bi	609.3	46.1
	92.4	2.81		1764.5	15.4
	92.8	2.77		1120.3	15.1
^{234m}Pa	766.4	0.294		1238.1	5.79
	1001.0	0.837		2204.2	5.08
^{234}U	53.2	0.123		768.4	4.94
	120.9	0.0342		1377.7	4.00
^{230}Th	67.67	0.377		934.1	3.03
^{226}Ra	186.2	3.59		1729.6	2.92
^{214}Pb	242.0	7.43		1408.0	2.15
	295.2	19.3	1847.4	2.11	
	351.9	37.6	1509.2	2.11	
	53.2	1.2	1155.2	1.63	
	787.0	1.07	2447.9	1.57	





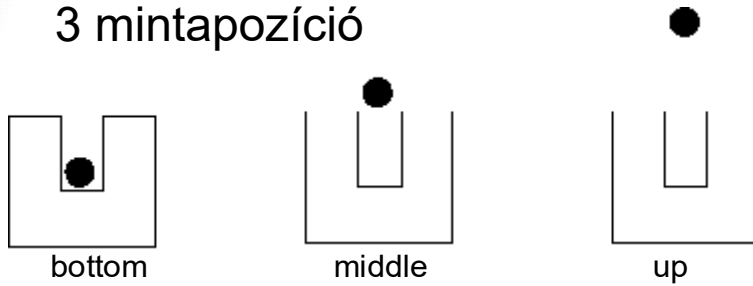
A valódi gamma-gamma koincidencia-hatás korrigálása





Mintapozicionálás a lyukkristály-detektoron

3 mintapozíció

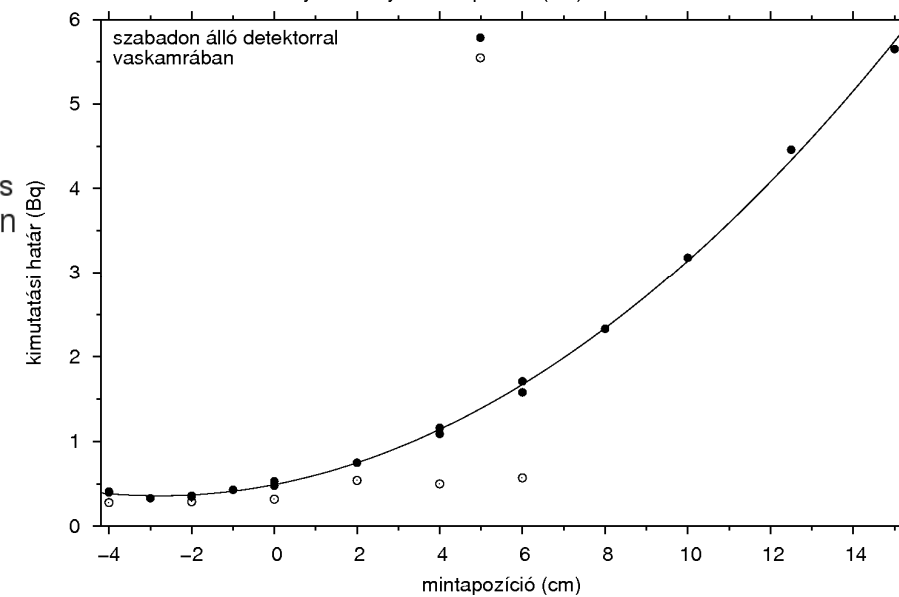
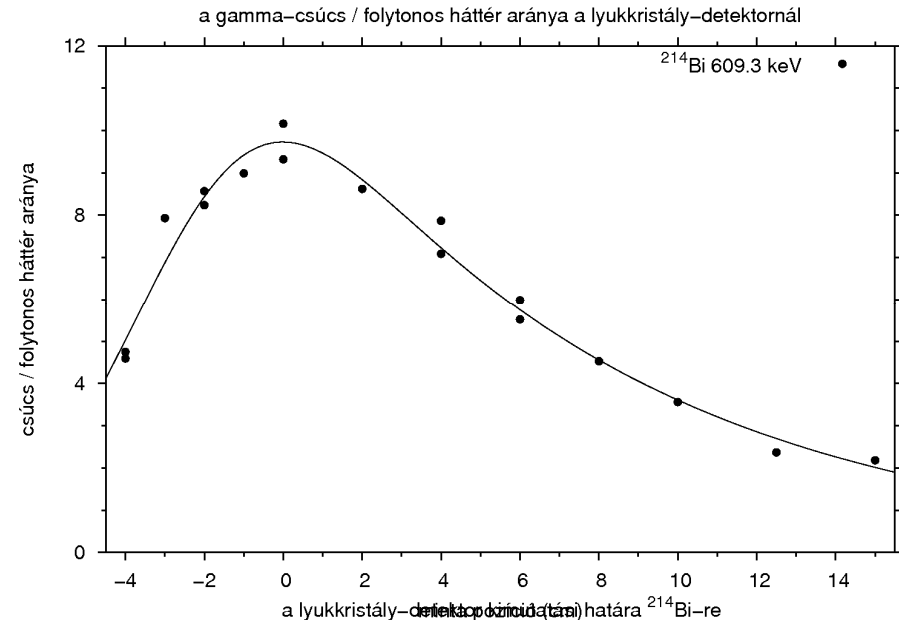


a minta pozíciójával változó tényezők

- detektálási hatások
- Compton-háttér
- holtidő
- jelalak-torzulás / pile-up
- valódi koincidencia-hatás

Determined age of the EK-10 fuel rod measured at 3 sample positions

Sample position	Calculated age (year)	Limit of detection (year)
bottom	56 ± 5	24
middle	59 ± 7	22
up	62 ± 35	33





A ^{214}Bi detektálás nehézségei: háttérlevonás

^{214}Bi (^{238}U bomlási sor): természetes radionuklid

→ jelen van a környezetben → háttérben megtalálható

^{214}Bi : ^{222}Rn leányelem → a levegőben megtalálható

alacsony háttér szükséges

- az árnyékolás kevés természetes radionuklidot tartalmazzon → vaskamra

Radonszint-csökkentés

- friss levegős szellőztetés
- N_2 öblítés
- A detektor körüli térfogat kitöltése radont nem tartalmazó anyaggal



a radon kiszorítása detektorból elpárolgó nitrogénnel



A detektor háttérének csökkentése

A radonszintet N_2 áramoltatással csökkentettük
($\sim 1m^3/nap$)

^{214}Bi 609.3 keV intenzitás:

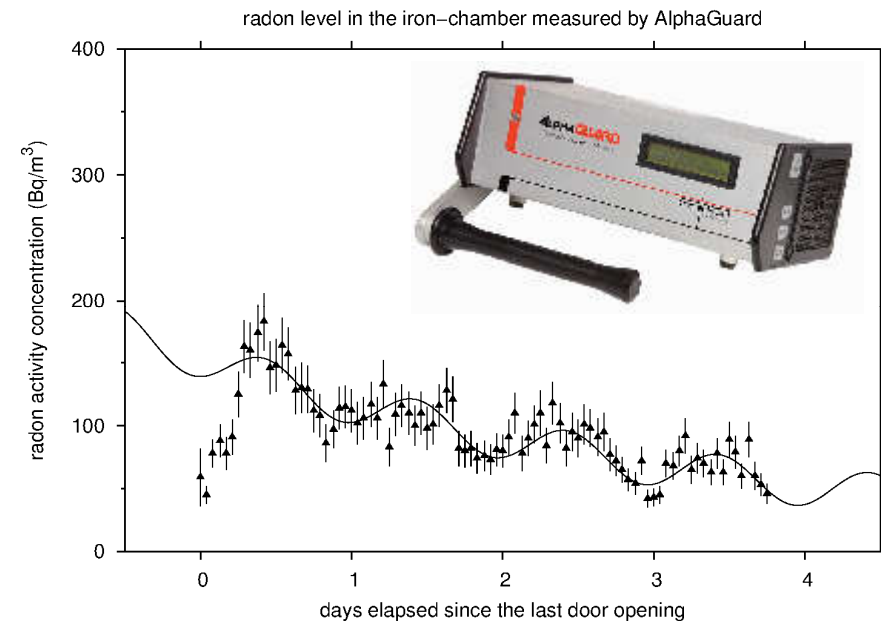
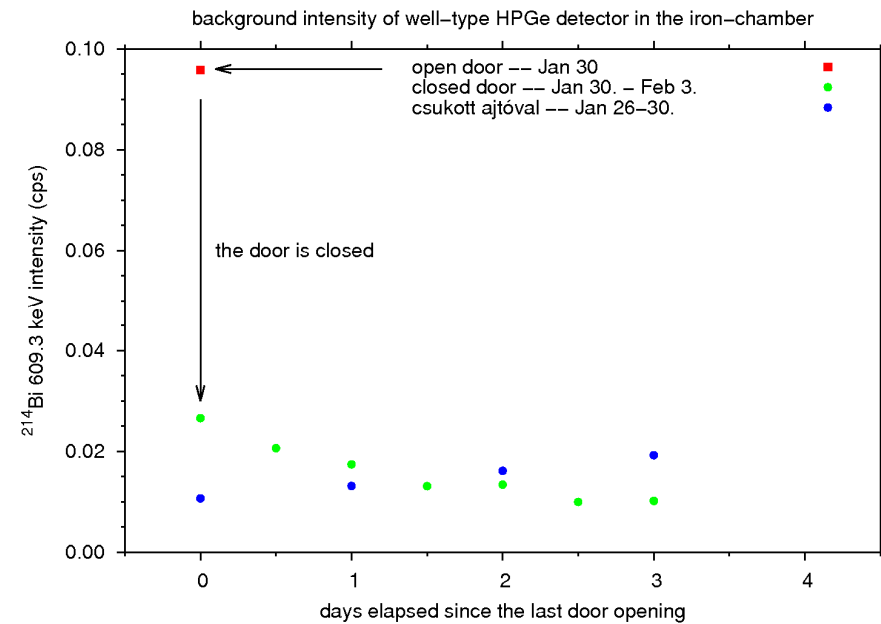
$1.0 - 1.5 \times 10^{-2}$ cps \rightarrow $0.5 - 0.8 \times 10^{-2}$ cps

Ingadozás: 30% \rightarrow $<10\%$

Hátrány: $\sim 15\,000$ Ft/hét



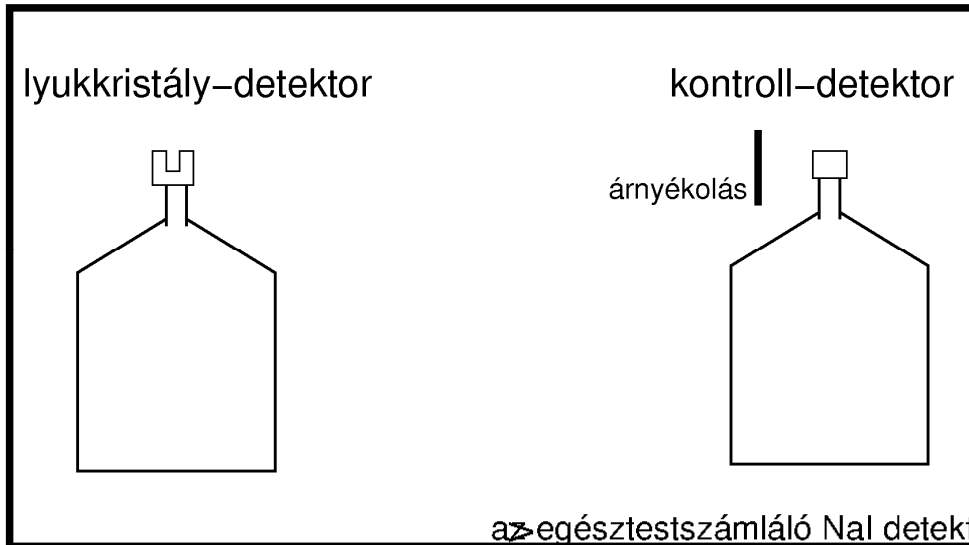
Radonszint monitorozás AphaGuard-dal
radonszint monitorozás és gamma-mérés
párhuzamosan, több napon át
Világos korreláció látható



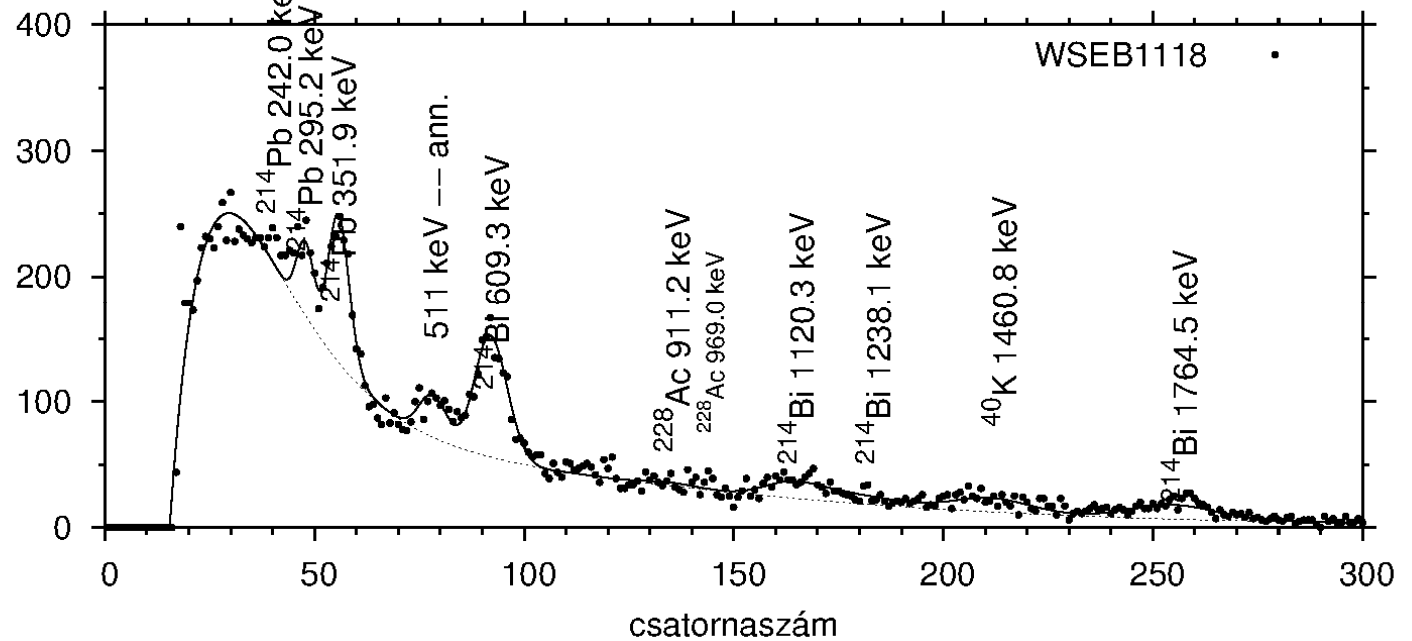


A radonból eredő háttér monitorozásának lehetőségei

vaskamra



az egésztestszámoló NaI detektorával felvett spektrum illesztése

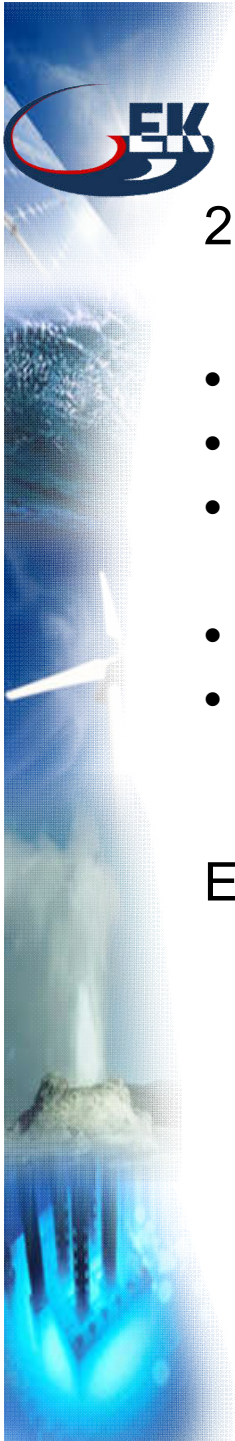




A laboratóriumban tárolt uránminták kormeghatározása

Név / adagszám	dúsítás (U-235 m/m%)	kategória	kor (év) 2015-ben			
			gamma-spektr.		tömegspektr.	
590	0,72 +/-	0,02 U-nat	–			
595	0,74 +/-	0,02 U-nat	–			
597	4,40 +/-	0,03 LEU	23 +/-	7	22.7 +/- 1.0	
598	2,03 +/-	0,02 LEU	–			
642	2,55 +/-	0,02 LEU	24 +/-	5	24.0 +/- 1.0	
643	0,28 +/-	0,03 DU	–			
644	2,01 +/-	0,01 LEU	< 22		22.6 +/- 1.2	
AEKI_1,6%			–			
AEKI_2,0%	2,00 +/-	0,02 LEU	31 +/-	13		
AEKI_2,4%			–			
AEKI_3,4%	3,52 +/-	0,03 LEU	34 +/-	6		
AEKI_4,4%	4,31 +/-	0,03 LEU	43 +/-	5		
BME NTI EK-10	9,88 +/-	0,07 LEU	56 +/-	3		
NAL NBS 10%	10,02 +/-	0,07 LEU	51 +/-	4		
NAL NBS 5%	5,00 +/-	0,04 LEU	51 +/-	4		
NAL NBS 2,0%	2,01 +/-	0,02 LEU				
NAL NBS 0,5%	0,50 +/-	0,01 DU	–			

Jó egyezés az ITU Karsruhe gamma-spektrometriai eredményekkel is.



Összefoglalás

2015-ben továbbfejlesztettük az uránminták gamma-spektrometrián alapuló roncsolásmentes kormeghatározására kidolgozott módszert.

- a radontól származó háttér csökkentése, figyelembe vétele
- mérési eljárás a valódi gamma-gamma koincidencia hatásra
- az üreges HPGe detektor kalibrációja

- 17 kis dúsítású (2-3%) minta mérése → 8 sikeres kormeghatározás
- jó egyezés a tömegspektrometriás eredményekkel és más laboratóriumok gamma-spektrometriai méréseivel

Előadás / cikk: 2015 évi ESARDA szimpózium

Novel Approaches/Novel Technologies szekció



További tervek, lehetőségek

- a radontól származó háttér csökkentése
- kiegészítő árnyékolás alkalmazása
- folyamatos radonszint monitorozás
- Új, a detektorhoz illesztett adatgyűjtő elektronika (Canberra DSA-LX)



Köszönöm a figyelmet!

