

نشریه تابش و فناوری هسته‌ای، دوره ۲، شماره ۴، زمستان ۱۳۹۴

تعیین درجه خلوص آب سنگین با استفاده از روش PGNAA

رضا پور ایمانی^{۱*}، خاتون عباس نژاد^۲

^۱ استادیار، گروه فیزیک، دانشگاه اراک، اراک، مرکزی، ایران

^۲ کارشناس ارشد فیزیک هسته‌ای، دانشگاه اراک، اراک، مرکزی، ایران

(تاریخ دریافت مقاله: ۱۳۹۴/۰۸/۰۶ - تاریخ پذیرش مقاله: ۱۳۹۴/۱۲/۱۵)

چکیده

در این تحقیق با استفاده از واکنش ${}^1_0n({}^2_1H, \gamma){}^3_1H$ میزان درجه غنای آب سنگین تعیین گردید. از چشمه $Am-Be$ و کند کننده موجود در آزمایشگاه فیزیک هسته‌ای دانشگاه اراک به عنوان چشمه نوترون حرارتی استفاده شد. کند کننده از یک مکعب به ابعاد $50 \times 50 \times 50$ سانتی متر مکعب از پارافین و دولایه اسید بوریک و سرب به ضخامت های $2/5$ و 5 سانتی متر تشکیل شده است. ثبت بیناب گاما های آنی حاصل از جذب پرتوزایی نوترون توسط هسته های هیدروژن سبک با استفاده از آشکارساز $HPGe$ GCD30195 BSI و سیستم الکترونیک همراه (MCB) برای نمونه های آب سنگین با درجه غنا های 0.123% ، 0.13% ، 3.5% و 5.8% انجام گردید. نتایج حاصله برای رسم منحنی کالیبراسیون مورد استفاده قرار گرفت که در این تحقیق ضریب کالیبراسیون $R^2 = 0.99$ به دست آمد. با استفاده از منحنی کالیبراسیون میزان درجه غنای نمونه مجهول آب سنگین به مقدار $64 \pm 0.2\%$ تعیین گردید. مقدار درجه غنای همین نمونه با استفاده از روش $FT-TR$ مقدار $56.11 \pm 0.2\%$ به دست آمد که اختلاف 1.53% را نشان می دهد.

واژگان کلیدی: $HPGe$ ، آب سنگین، درجه غنا، کندکننده، PGNAA

* اراک، دانشگاه اراک، گروه فیزیک

پست الکترونیکی: r-pourimani@araku.ac.ir

۱. مقدمه

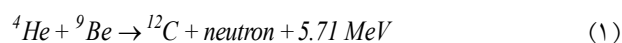
در این تحقیق برای تعیین درجه غنای آب سنگین از واکنش $H(n,\gamma)D$ استفاده گردید.

۲. روش کار و آزمایش

۱. چشمه نوترون Am-Be

برخی از رادیو ایزوتوپ های ^{241}Am ، ^{239}Pu ، ^{238}Pu و ^{244}Cm گسیل کننده ذره α هستند که با مخلوط کردن آن ها با بریلیم به عنوان تولید چشمه نوترون از دیر باز کاربرد دارند. به دلیل مزیت هایی از قبیل اندازه فیزیکی کوچک، ساختار محکم، شار نوترون پایدار و نیمه عمر بالای آنها، از این رادیو ایزوتوپ های منتشر کننده ذره α در تهیه چشمه های نوترون استفاده می گردد.

یکی از این رادیو ایزوتوپ ها آمرسیوم (^{241}Am) است. ذره α گسیل شده طبق واکنش زیر با بریلیم برهم کنش کرده و تولید نوترون می کند [۵].



در این تحقیق از چشمه Am-Be با فعالیت ۱۰ Ci استفاده گردید که برای مقایسه برخی از ویژگی های چشمه های رادیو ایزوتوپی نوترون در جدول (۱) آورده شده است.

۲.۲. واکنش $^1_0\text{H}(n,\gamma)^2_1\text{H}$

در این واکنش هسته هیدروژن در نمونه آب توسط نوترون های حرارتی بمباران می شود. هسته هیدروژن در اثر جذب نوترون تبدیل به هسته دوتریوم می گردد و با گسیل گامایی با انرژی

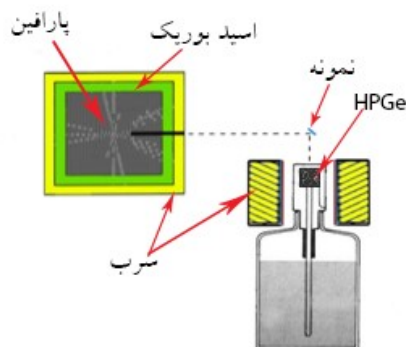
برهم کنش نوترون، ذره باردار و پرتو گاما با هسته های هدف باعث تغییر در انرژی و یا ساختار آنها می گردد. اندازه گیری انرژی و کمیت هایی که در پی این واکنش ها به وجود می آید پیامد های مهمی را در علم هسته ای در بر دارد. یکی از روش های مهم آنالیز مواد، استفاده از جذب پرتوزایی نوترون است که می توان به تکنیک های ^1NAA ، $^2\text{PGNAA}$ و $^3\text{DGNAA}$ اشاره کرد. به کمک این روش ها می توان مقادیر کم عناصر را در مواد جامد، مایع یا گاز تعیین کرد [۱].

کارایی این روش ها بیشتر در راکتورهای تحقیقاتی هسته ای است زیرا در این نوع راکتورها شار نوتون های حرارتی بالاست بنابراین آنالیز طیف های گامای حاصله آن از دقت بسیار بالایی برخوردار است. انرژی بستگی نوکلئون ها در هسته ها به استثنای ^4He (۱/۶۷ MeV) و ^2H (۲/۲۳ MeV) حدود ۸ MeV است. تجربه نشان داده است که احتمال جذب پرتوزایی نوترون برای نوترون های حرارتی بیشتر از سایر واکنش ها است. پرتو گامای آنی ساطع شده در روش PGNAA دارای انرژی بالاتری نسبت به روش DGNAA است و در مواردی که هسته نهایی حاصل شده از واکنش پایدار می باشد تنها از روش ثبت گاما های آنی استفاده می گردد.

تعیین درجه غنای آب سنگین به علت اثر آن در بحرانی شدن راکتور های آب سنگین بسیار حائز اهمیت است. روش های مختلف شیمیائی و فیزیکی جهت تعیین دقیق درجه غنای آب سنگین مورد استفاده قرار گرفته است [۴-۲].

^۱ Neutron Activation Analysis^۲ Prompt Gamma Neutron Activation Analysis^۳ Delayed Gamma Neutron Activation Analysis

کرد. در این کار برای تولید نوترون های حرارتی از سیستم کننده و هم خط ساز نوترون که در دانشگاه اراک طراحی و ساخته شده است استفاده گردید [۸]. این کندکننده و هم خط ساز نوترون، به شکل مکعب از جنس دیواره های جدا کننده پلگسی گلس با ابعاد $50 \times 50 \times 50$ متر مکعب از پارافین جامد به عنوان ماده کند کننده نوترون ساخته شده است. کند کننده توسط حفاظ اسید بوریک و سرب به ترتیب با ضخامت های $2/5$ و 5 سانتی متر برای ممانعت از خروج نوترون و گاما به بیرون از کند کننده احاطه شده است. چشمه نوترون در مرکز این کند کننده قرار گرفته است. در این مدراتور کانال هم خط ساز به شکل استوانه به قطر 5 cm و طول 22 cm تعبیه شده که فاصله ته این کانال تا چشمه نوترون 3 cm می باشد. شکل (۱) شماتیک کند کننده، محل قرارگرفتن نمونه و آشکار ساز را نشان می دهد.



شکل ۱. نحوه قرارگرفتن نمونه نسبت به مدراتور و

آشکار ساز HPGe

۲.۴. آزمایش

کند کننده حاوی چشمه نوترون $^{241}\text{Am-Be}$ به ابعاد $50 \times 50 \times 50$ متر مکعب بر روی یک پایه قرارداد که به منظور استفاده های متفاوت از آن به سهولت قابل جابه جایی و قابل تنظیم است. نمونه آب سنگین در فاصله 15 سانتی متری از کند کننده

$2/23\text{MeV}$ از حالت برانگیخته به حالت پایه نزول می کند. این گاما های گسیل شده توسط سیستم آشکار ساز ثبت و شمارش می شوند.

جدول ۱. ویژگی های چند رادیو ایزوتوپ تولید کننده نوترون [۵]

نوع چشمه	نیمه عمر (سال)	جرم چشمه α برای گسیل نوترون ($\sim \frac{6 \text{ neutron}}{\text{s}}$)	فعالیت (Ci)
$^{244}\text{Cm-Be}$	۱۸	0.02 gr	۱/۷
$^{238}\text{Pu-Be}$	۸۷	0.13 gr	۲/۲
$^{241}\text{Am-Be}$	۴۳۳	0.87 gr	۲/۹

گاما های شمرده شده مرتبط با میزان تراکم ^1H موجود در نمونه آب می باشد. هر چه شار نوترون حرارتی و میزان هیدروژن بیشتر باشد تعداد گاما های گسیل شده و شمارش آن ها بیشتر خواهد شد. انجام واکنش $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$ مستلزم وجود نوترون های حرارتی است. راکتور های هسته ای بزرگ ترین منبع تولید نوترون های حرارتی هستند اما همواره به دلیل محدودیت های متفاوت استفاده از آن ها امکان پذیر نمی باشد. در این تحقیق از نوترون های حرارتی حاصل از کند شدن نوترون های سریع چشمه $^{241}\text{Am-Be}$ در پارافین استفاده گردید.

۲.۳. کند کننده چشمه آمرسیوم-بریلیوم (Am-Be)

چشمه آمرسیوم-بریلیوم نوترون هایی با انرژی ($0-14\text{MeV}$) گسیل می کند که بیشتر این نوترون ها دارای انرژی بالا و از نوع سریع هستند [۶]. بنابراین برای انجام این واکنش می بایست این نوترون ها را توسط یک کند کننده، کند

در مقابل کانال نوترون های حرارتی در مقابل آشکارساز HPGe قرار گرفته است. یک نگهدارنده به صورت عمودی در مقابل کانال هم خط ساز تعبیه شده است. کانال هم خط ساز توسط یک لوله از جنس پلی اتیلن در مواقع عدم استفاده از آن به منظور جلوگیری از خروج نوترون ها به خارج از کند کننده مسدود می شود. هنگامی که نمونه آب توسط نوترون های خروجی از کانال هم خط ساز بمباران می شود گامای حاصل از گیراندازی نوترون توسط هسته های هیدروژن با انرژی 2.23 MeV توسط آشکارساز HPGe که نسبت به بیم نوترون تحت زاویه 90° درجه قرار گرفته است و سیستم الکترونیکی مربوط، آشکار سازی و ثبت می شود. برای کم کردن تابش های زمینه و جلوگیری از رسیدن فوتون های پراکنده شده به آشکارساز، آشکارساز در یک حفاظ استوانه ای سربی به ضخامت 10 cm که دولایه از جنس مس و کادمیوم به ترتیب به ضخامت های 2 و 1 میلی متر قرار دارد. این ضخامت از سرب تابش های نرم کیهانی و الکترون ها را به نحو موثری حذف می کند. در اثر برهم کنش فوتون ها با لایه سرب اشعه x با انرژی 511 keV گسیل می گردد که توسط لایه مسی حذف می شود. برای به حداقل رساندن فوتون های پراکنده شده از حفاظ سربی آشکار ساز در مرکز آن قرار گرفته است [۸]. لایه کادمیوم به منظور حذف نوترون های حرارتی و جلوگیری از ورود آن ها به کریستال HPGe بکار رفته است. مدار الکترونیکی همانطوری که در شکل ۲ دیده می شود شامل واحدهای الکترونیکی پیش تقویت کننده، تقویت کننده اصلی، ADC و MCB با 4096 کانال می باشد. آشکار ساز از نوع HPGe GCD30195 و ساخت شرکت BSI که FWHM آن برای پیک انرژی 1332 keV مربوط به ^{60}Co برابر با $1/95 \text{ keV}$ است و در ولتاژ 3000 V کار می کند. سیگنال آشکارساز توسط یک پیش تقویت کننده مدل charge sensitive به تقویت کننده اصلی مدل Ortec-572

ارسال می گردد و از آنجا طی عبور از سایر واحدهای الکترونیکی به کامپیوتر جهت ذخیره سازی منتقل می شود. طیف گاماها ثبت شده در سیستم فوق با استفاده از دو نرم افزار Lsrmbsi و Omnigam به ترتیب محصول شرکت های Instrument Baltic Science و EG&G Ortec ثبت و مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفته است. تعداد ۴ نمونه آب سنگین تولیدی مجتمع آب سنگین اراک در ویال های شیشه ای به حجم 50 cc با درجه غنا های 0.123% ، $13/5\%$ ، $35/2\%$ ، $58/2\%$ و یک نمونه مجهول به صورت آب بندی شده و تحت شرایط خاص تهیه شدند. از یک ویال خالی به منظور اندازه گیری تابش های زمینه در شرایط کاملاً مشابه و ثابت، طیف نگاری به عمل آمد. سطح خالص زیر پیک برای هر کدام طیف های ثبت شده با کسر کردن تابش های زمینه محاسبه گردید. نمونه طیف های ثبت شده برای آب سنگین با درجه غنا $35/2$ درصد که در بازه زمانی 251245 ثبت شده است در شکل (۳) دیده می شود.

محاسبات مربوط به هر نمونه از آب سنگین با درجه غنا متفاوت در جدول (۲) آمده است. بعد از این محاسبات سیستم توسط ۴ نمونه آب سنگین با درصدهای درجه غنا $58/2$ ، $35/13$ ، $2/0$ و $58/2$ کالیبره گردید. منحنی کالیبراسیون در شکل (۴) دیده می شود. با استفاده از نرم افزارهای کامپیوتری مقدار ضریب همبستگی R^2 طبق رابطه (۲) محاسبه گردید [۸].

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x}) (y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (2)$$

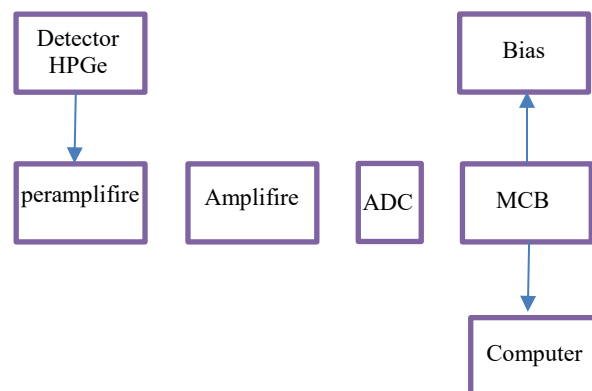
که در آن متغیر x درجه غنا آب سنگین بر حسب درصد و y نرخ شمارش خالص سطح پیک در واحد زمان می باشد.

سنگین با درجه غنای معلوم، نمونه آب سنگین به جرم 53 gr را با درجه غنای مجهول در معرض شار نوترون حرارتی قرار داده شد و طیف گامای ناشی از آن توسط آشکار ساز ثبت و به کمک نرم افزارهای مربوطه مورد تجزیه و تحلیل قرار گرفت و نرخ شمارش گامای با انرژی $2/23\text{ MeV}$ تعیین گردید. نرخ شمارش گاما برای نمونه مجهول برابر با $2/74 \pm 0/02$ به دست آمد. با استفاده از منحنی کالیبراسیون درجه غنای این نمونه $57/64 \pm 0/02\text{ mol}\%$ تعیین گردید. درجه غنای این نمونه مجدداً در مجتمع آب سنگین اراک به روش $FT-IR^1$ اندازه گیری و مقدار $56/11 \pm 0/02\text{ mol}\%$ تعیین درجه شد.

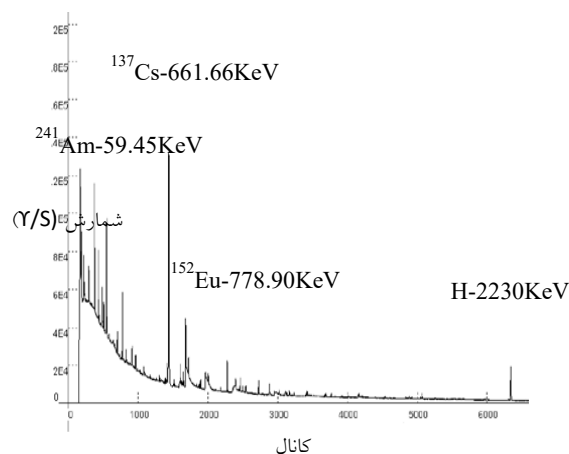
جدول ۲. محاسبات مربوط به گاماهاى شمرده شده از نمونه های آب سنگین با درجه غنای متفاوت

شماره نمونه	$D_2O(\%)$	زمان (t)	نرخ شمارش ($\frac{\text{count}}{s}$)
۱	$0/01223$	۲۵۱۸۱	$3/51 \pm 0/02$
۲	۱۳/۵	۲۵۰۴۲	$3/40 \pm 0/03$
۳	۳۵/۲	۲۵۱۲۴	$3/06 \pm 0/02$
۴	۵۸/۲	۲۵۰۸۵	$2/71 \pm 0/02$
X	۵۷/۶۴	۲۵۱۱۲	$2/74 \pm 0/02$

مقایسه این دو روش اختلاف $1/53\%$ را نشان می دهد که با توجه به تکمیل نبودن تجهیزات آزمایشگاه و کم بودن شار نوترون بسیار امید بخش می باشد. با بهینه کردن سیستم می توان دقت تعیین درجه غنا را افزایش داد.



شکل ۲. مدار الکترونیکی آشکارساز HPGe



شکل ۳. طیف گامای گرفته شده از نمونه آب با درجه غنای $35/2\%$

همان طوری که از منحنی کالیبراسون پیداست همبستگی معکوسی بین مقادیر ممکن زوج های مرتب (x,y) روی یک خط راست با ضریب زاویه ای منفی قرارداد. بنابراین هر چه میزان درجه غنای آب سنگین بالا می رود نرخ شمارش گاماهاى با انرژی $2/23\text{ MeV}$ کاهش پیدا می کند و بالعکس. میزان ضریب همبستگی بین درجه غنای آب سنگین و نرخ گاماهاى شمارش شده در واحد زمان در این تحقیق مقدار $R^2 = 0/990$ بدست آمد. بعد از بدست آوردن منحنی کالیبراسیون توسط نمونه های آب

¹ Fourier Transformation- Infrared method

۴. سپاسگزاری

این طرح توسط معاونت های پژوهشی دانشگاه اراک و شرکت مصباح انرژی وابسته به سازمان انرژی اتمی ایران تامین مالی گردیده است که نویسندگان کمال امتنان و سپاسگزاری را دارند.

مراجع:

[۱] الفاسی "روش های هسته ای در تجزیه شیمیائی"، ترجمه محمد قنادی مراغه، جلد اول، سازمان انرژی اتمی ایران

(۱۳۷۷).

- [2] M.F.Rahimi, H.Peyrovan and A.Izadpanah; Measurment of D₂O in water using ²H(γ,n)¹H reaction; *J.Sci.I.R.Iran* 13(1): 75-80 (2002)
- [3] O.Machi, I. Baraci-Ken; on-stream measurement of heavy water concentration by intermediate neutron moderation; *J. Radioanal. And Nucl. Chem., vol.129, No.1(1989)121-131*
- [4] S.YeolChoi, J.Choo, H. Chung; Feasibility of Fourier Transform (FT) Infrared spectroscopy for monitoring heavy water concentration in pressurized heavy water reactor, *Vibrational Spectroscopy*, 31 (2003) 251-25
- [5] G. F. Knoll, Radiation Detection and Measurements, John Wiley & Sons, New York, 1989.
- [6] R. Bedognia, C. Domingob, N. Robertsc, Investigation of the neutron spectrum of americium-beryllium sources by Bonner sphere spectrometry, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A: Vol. 763, 1 Nov. 2014, P. 547-552*

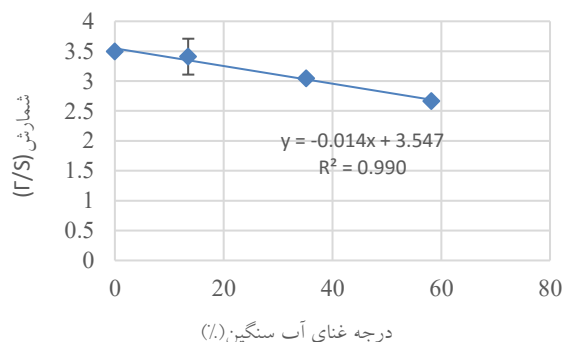
[۷] رضا پورایمانی، سعید حمیدی، خاتون عباس نژاد، محاسبه

و ساخت کند کننده چند منظوره با چشمه نوترون

Am-Be، *مجله تابش و فناوری هسته ای*، ۱ (۱)، ۲۴-۳۳

بهار ۱۳۹۳

- [8] A. Aziz, Symposium on Methods of Low Level Counting and Spectrometry, Berlin, Vol. 221(1981)
- [9] L. Bertrand, weighted linear least squares regression, University of Missouri-Rolla, (2007), <http://web.umar.edu/~gbert/wLS/wls>



شکل ۴. منحنی کالیبراسیون برای نمونه های آب سنگین

۳. بحث و نتیجه گیری

۱. استفاده از واکنش $^1_0n + ^2_1H \rightarrow ^3_1H + \gamma$ می تواند تکنیک مناسبی

برای مشخص کردن میزان درجه غنای آب سنگین باشد. در این مقاله اندازه گیری درجه غنای آب سنگین با استفاده از واکنش فوق ارائه گردیده است که میتواند در کنار روش FT-IR به عنوان یک روش تایید کننده نتایج مورد استفاده قرار گیرد.

۲. در صورتی که چشمه نوترون قوی تری در دسترس باشد به عنوان مثال چشمه ^{252}Cf و یا در آینده شار نوترون حرارتی حاصل از راکتور IR-40 مورد استفاده قرار گیرد اصولاً تعداد گاما های ثبت شده افزایش می یابد و در نتیجه دقت اندازه گیری افزایش پیدا می کند که می تواند به عنوان یک روش کنترلی کاربرد داشته باشد.

۳. پارامتر هایی نظیر حجم و نحوه ساخت نمونه، نوع حفاظ آشکارساز و نگهدارنده گرافیتی می تواند باعث بالا رفتن کیفیت نتایج گردد.

Determination of Heavy water enrichment using PGNA method

R.Pourimani^{1*}, Kh. Abbasnezhad²

¹ Assistant of professor, Department of Physics, Faculty of Science, Arak University

² M. Sc. Student, Department of Physics, Faculty of Science, Arak University

**Corresponding author's E-mail: r-pourimani@araku.ac.ir*

(Received: 2015/10/28- Accepted: 2016/03/05)

ABSTRACT

In this research by utilization the reaction ${}^1_0\text{n}({}^2_1\text{H})$ was determined the heavy water enrichment. For this mean used the thermal neutron source obtained from Am-Be and moderating system that there is in nuclear physics laboratory in the Arak University. Moderator included a cubic of paraffin with dimension $50\times 50\times 50\text{ cm}^3$ and two outside layer included Boric acid with 2.5 cm thickness and 5 cm lead. The HPGe GCD30195 BSI detectors with 30% relative efficiency and corresponding electronic system MCB were used for registration of prompt γ - ray spectra. Heavy water samples with known enrichment as 0.01233%, 13.5%, 35.2% and 58.2% were used to determine the linear calibration plot. In this research correlation coefficient obtained as $R^2= 0.99$. Using the corresponding linear plot, were determined unknown enrichment heavy water as $57.64 \pm 0.02\text{ mol\%}$. The enrichment of D_2O in this sample determined using FT-FR method that obtained $56.11\pm 0.02\%$ mol which shows 1.53% disagreement.

Keywords: *HPGe, heavy water, enrichment degree, moderator, PGNA*