

T. A. E. K.

ANKARA NÜKLEER ARAŞTIRMA VE
EĞİTİM MERKEZİ

İZOTOPIK NÖTRON KAYNAĞI KULLANARAK NAA İLE
ESKİŞEHİR BEYLİKAHİR YÖRESİNDEN ALINAN TORYUM
CEVHERLERİNDE BAZI ELEMENTLERİN TAYİNİ

İ. ÇELENK

1983

FİZİK BÖLÜMÜ-1-83

İZOTOPIK NÖTRON KAYNAĞI KULLANARAK NAA İLE
ESKİŞEHİR BEYLİKAHİR YÖRESİNDEN ALINAN TORYUM
CEVHERLERİNDE BAZI ELEMENTLERİN TAYİNİ

İ. ÇELENK

1983

FİZİK BÖLÜMÜ-1-83

ÖZET

Bu çalışmada, Ege Üniversitesi Yer Bilimleri Fakültesinden getirtilen numunelerde Al, Si, Mn, Fe, Ba, La, Sm, Eu, Th ve U tayini yapılmıştır. Çalışmada 5 Ci ²³⁸Pu-Be nötron kaynağı kullanılmış ve deney şartlarında nötron akısı $2.4 \times 10^4 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ dir.

GİRİŞ

Düşük şiddetli nötron kaynağı, laboratuvarımızda çok element ihtiva eden numunelere ilk defa bu çalışmada uygulanmış ve çok iyi neticeler elde edilmiştir. Daha önce aynı kaynak ve 3" x 3" NaI(TL) sintilasyon dedektörü kullanarak, laboratuvarımızda NAA ile hangi elementleri analizleyebileceğimizi araştırmak amacıyla analizleyebileceğimiz elementler ve bu elementlerin dedeksiyon limitlerini tayin etmiştik (1).

Bahsedilen çalışmada saf madde kullanıldığından NaI(TL) sintilasyon dedektörü yeterli olmuştur. Çoğu zaman NaI(TL) dedektörleri aynı elementin çeşitli enerjilerini bile çözemediğinden ve numunelerimizde birçok element ve bu elementlerin çok sayıda γ -enerjisi bulunduğundan, bu çalışmada adı geçen dedektörü kullanmak mümkün olmamıştır. Bu sebepten laboratuvarımızda mevcut olan, sertifika değeri 2.3 KeV, bizim çalışma şartlarımızda ise 4.8 KeV çözme güçlü 5l cc hacimli Ge(Li) dedektörü, 1024 kanallı Canberra MCA (Çok Kanallı Analizör) ve diğer elektronik üniteler kullanılmıştır. Sistemin blok şeması şekil 1'de gösterilmiştir.

Bu çalışmada analizlenen numunelerden YB-2, YB-3, γ -2, U-3 kod adlarıyla adlandırılan cevher örnekleri E.Ü.Yer Bilimleri Fakültesinden, KTS-1 ve KTS-2 kod adlarıyla adlandırılan örnekler ise MTA Enstitüsünden alınmıştır.

DENEY

Analizlere başlamadan önce elimizde bulunan numuneler, 1.4 cm çapında ve 1 cm yüksekliğinde silindirik iki polietilen tüpe doldurularak önce tabii spektrumları alınmış, daha sonra ise nötron kaynağı üzerinde uzun ve kısa süreli ışınlanarak hangi elementlerin gözleendiği ve kaba olarak miktarları hakkında bir fikir edinilmiştir. MTA Enstitüsünden alınan örneklerin analiz raporları da göz önünde bulundurularak, numunelerimizi en iyi yansıtacak şekilde 10 gr ANAEM-28-4-83 standartı hazırlanmıştır. Bu

standartın ihtiva ettiği elementler ve yüzde miktarları Tablo 1'de verilmiştir. Tabloda analizi yapılan elementlerin dışında görülen elementler, numuneler az miktarda bu elementleri de ihtiva ettiğinden, analizlerde matris etkisini gidermek için standarta karıştırılmıştır. Deneyler esnasında iki tüpteki toplam numune miktarı 2.3 gramla 3.9 gram arasında değişmektedir.

Numunelerin analizinde dört grup deney yapılmıştır. Birinci grupta 6000 saniye sayılarak, numunelerin tabii γ -spektrumları alınmış, bu spektrumlardan Th ve U elementleri tayin edilmiştir. Th analizinde ^{232}Th 'nin bozunma ürünlerinden ^{212}Pb 'ye ait 238.6 KeV'luk γ -enerji piki, U tayininde ise U'un bozunma ürünlerinden ^{214}Pb 'e ait 352.4 KeV'luk γ -enerji piki kullanılmıştır. Bulunan sonuçlar Tablo 3'de verilmiştir.

İkinci deney grubunda numuneler 96 saat ışınlanıp 6000 saniye sayılarak La, Sm ve Eu tayini yapılmıştır. Oluşan reaksiyonlar ve kullanılan γ -enerjileriyle diğer bazı parametreler Tablo 2'de, bulunan sonuçlar ise Tablo 3'de verilmiştir.

Üçüncü grupta numuneler 16 saat ışınlanıp 3000 saniye sayılarak Mn, Fe ve Ba tayini yapılmıştır. Oluşan reaksiyonlar ve kullanılan γ -enerjileri yine Tablo 2'de verilmiştir.

Mn'in termal, Fe'in ise hızlı nötronlarla reaksiyonu sonucu aynı ^{56}Mn izotopu olduğundan, bu iki elementin aynı numune içinde bulunmaları durumunda, düşük şiddetli nötron kaynağı kullanarak NAA ile analizleri yapılırken güçlükler vardır. Şüphesiz Cd termal nötronları tutar. Numune bir Cd kılıf içine alınarak, bir de Cd'suz ışınlanıp sayılırsa Cd düzeltilmesi de yapıldıktan sonra, Cd'suz pik alanı değerinden Cd ile alınan pik alanı değeri çıkarılırsa aradaki farkla termal nötron reaksiyonu yapan element, Cd kılıf içinde alınan pik alanı değerinden ise hızlı nötron reaksiyonu veren element tayin edilebilir. Bu söylediklerimizi,

$$\text{Fe alanı} = k \times A_{\text{Cd}}$$

$$\text{Mn alanı} = A_T - k \times A_{\text{Cd}}$$

şeklinde formüle edebiliriz. Burada,

A_T : Toplam pik alanı, numune Cd kılıf içine alınmamıştır. Dolayısı ile hem Mn, hem de Fe'den etki gelmektedir.

A_{Cd} : Cd kılıf içinde ışılandıktan sonra bulunan pik alanı, sadece hızlı nötron reaksiyonu veren Fe'den gelmektedir.

k : Cd'un hızlı nötronları tutma faktörü, Cd termal nötronlarla birlikte hızlı nötronların da bir kısmını tutar. Dolayısıyla bu faktörünü tayin etmek gerekir. Bu katsayı tesbit edilmiş, bizim kullandığımız 1.0 mm kalınlıklı Cd için 1.11 bulunmuştur.

Yapılan bu işlemler analiz için gerekli problemlerin çözümünde yeterli değildir. Çünkü Mn'in termal nötron tesir-kesitinin yanında epitermal nötron tesir-kesiti de çok yüksek ve 14 barndır (2). Dolayısıyla Cd kılıf Mn'dan gelen etkiyi giderememektedir. Bunun için Mn'dan gelen etki başka bir deneyle giderilmiştir:

Saf Mn (Mn_2O_3) aynı deney şartlarında, önce Cd kılıf içine almadan, daha sonra da Cd kılıf içinde aktiflenip sayılarak ayrı ayrı pik alanları bulunmuş, böylece Cd'un pik alanını ne ölçüde azalttığı tesbit edilerek bir orantı katsayısı bulunmuştur. Bunu,

$$A_T / (k \times A_{Cd}) = S$$

şeklinde ifade edebiliriz. Burada

A_T : Cd'suz saf Mn pik alanı,

A_{Cd} : Cd'lu saf Mn pik alanıdır.

Bu deneyde $S = 28.89$ bulunmuştur.

Daha sonra gerçek numunelerin spektrumlarından ^{56}Mn 'ya ait 846.9 KeV' luk γ -enerji pikinin Cd'suz pik alanı, Cd'lu pik alanına oranlanarak orantı katsayıları tesbit edilmiştir. Gayet açıktır ki, eğer bu katsayı 28.89' dan küçükse aradaki fark Fe'den gelmektedir. Bunu,

$$A_{Fe} = A_{Cd} - A_T/s$$

şeklinde ifade edebiliriz.

Bu şekilde, ^{56}Mn 'ya ait 846.9 KeV' luk γ -enerji pikine Fe'den gelen net etki bulunduktan sonra,

$$A_{Mn} = A_T - A_{Fe}$$

formülünden de Mn tayini yapılmıştır. Sonuçlar Tablo 3'de verilmiştir.

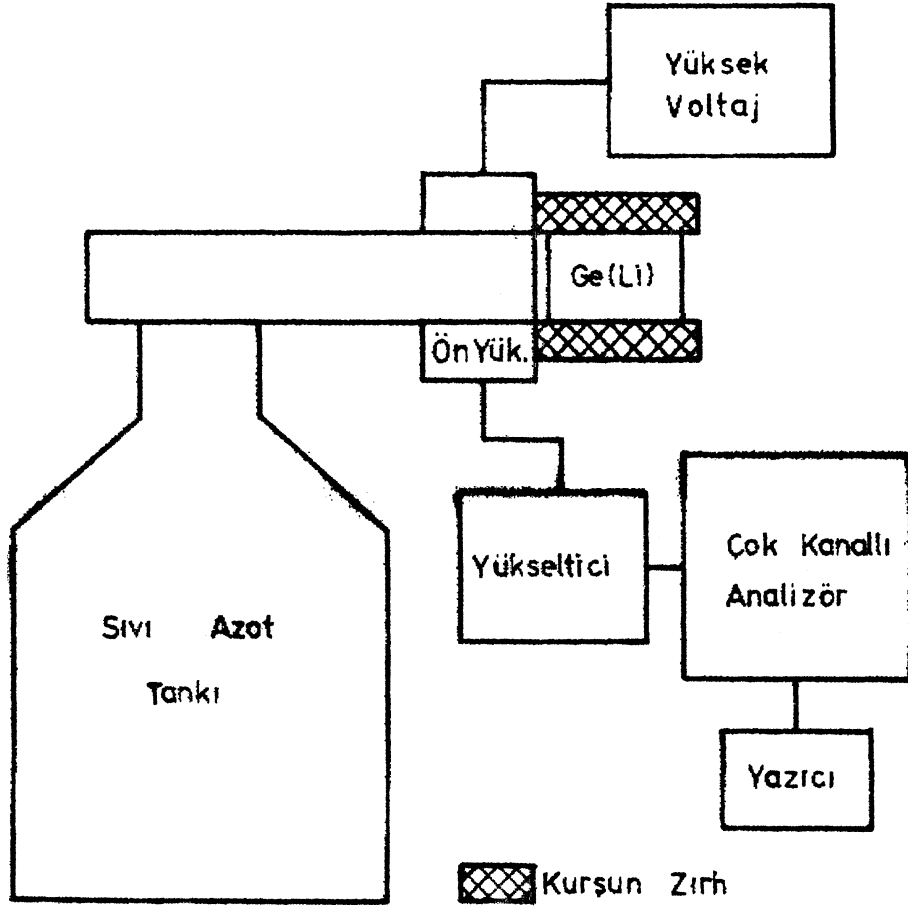
Dördüncü ve son deney grubunda Al ve Si tayini yapılmıştır. İlgili reaksiyonlar Tablo 2'de verilmiştir. Bu elementlerin tayininde tekrarlı nötron aktivasyon analizi uygulanmıştır. Numuneler 5 dakika ışınlanıp, ışınlamadan sonra 1 dakika beklenerek sayım başlatılmış, 5 dakika sayılarak tekrar 1 dakika beklendikten sonra ışınlama başlatılmıştır. Bu şekilde

5 tekrar yapılarak kümülatif sayım elde edilmiştir. Aslında bu elementlerin analizinde NaI(TL) sintilasyon dedektörleri ideal olmakla beraber, numunelerimiz bol miktarda Mn da ihtiva ettiğinden ^{56}Mn 'ya ait 1810.7 KeV' luk γ -enerjisiyle 1778.9 KeV' luk ^{28}Al 'in γ -enerjisini adı geçen dedektörler ayıramadığından, bizim numunelerimiz için bu dedektörler kullanılamaz. İster istemez Ge(Li) dedektörü kullanmaya zorlandık. Yine elimizde bulunan Ge(Li) dedektörü $^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$ reaksiyonundan oluşan 844.0 KeV' luk ^{27}Mg 'e ait γ -enerjisiyle ^{56}Mn 'a ait 846.8 KeV' luk γ -enerjisini ayıramadığından, Al tayini için yukarıdaki reaksiyonu kullanmak mümkün değildir. Bu sebepten her iki elementin analizi için de Si'un hızlı nötronlarla, Al'un ise termal nötronlarla reaksiyonu sonucu oluşan ^{28}Al 'e ait 1778.9 KeV' luk γ -enerjisi kullanılmıştır. Bu yüzden numuneler Cd'lu ve Cd'suz ışınlanmıştır. Cd düzeltmesi yapılan Cd'lu ışınlamadan Si, Cd'suz ışınlamadan Si farkı alındıktan sonra aradaki farktan ise Al tayini yapılmıştır. Sonuçlar yine Tablo 3'de verilmiştir.

SONUÇ

Böyle karmaşık numunelerin analizinin düşük şiddetli izotopik nötron kaynaklarıyla yapılabileceğini göstermesi bakımından çalışma oldukça önemlidir. Ayrıca bulunan sonuçların başka analiz raporlarıyla karşılaştırıldığında oldukça güvenilir olduğu ortaya çıkmaktadır. Tablo 4'de MTA Enstitüsü'nün KTS-1 ve KTS-2 numuneleri için verdiği analiz değerleriyle bu çalışmada bulunan değerler karşılaştırılmaktadır.

MTA Enstitüsü'nün bulduğu değerlerle bu çalışmada bulunan değerler, demirin dışında hata sınırları içerisinde uyum göstermektedir. Fakat bu çalışmada demir için bulunan değer, MTA'nın bulduğu değerden iki kat daha büyük olduğu gözlenmektedir. Bu fark göz önünde tutularak KTS-1 numunesi ve kullanılan standart için deney bir daha tekrarlanmış, sonuçta bir değişiklik olmadiğı görülmüştür. Bu da bulduğumuz değerlerin sıhhatini göstermesi bakımından yeterlidir.



Şekil: 1. Sayım sisteminin blok şeması

Tablo 1. ANAEM-28-4-83 Standartının ihtiva ettiği elementler ve % olarak miktarları

A N A E M - 28 - 4 - 83			
ELEMENT	%	ELEMENT	%
Si	14.15 ± 0.37	Y	0.080 ± 0.008
Mn	13.85 ± 0.37	La	0.37 ± 0.040
Ba	12.12 ± 0.35	Ce	1.04 ± 0.11
Ti	4.25 ± 0.20	Sm	0.86 ± 0.09
Fe	4.14 ± 0.20	Eu	0.34 ± 0.04
Al	2.63 ± 0.16	Zb	0.050 ± 0.005
Ca	1.85 ± 0.14	Th	0.58 ± 0.06
P	1.38 ± 0.12	U	49 ± 5 (ppm)
Na	0.46 ± 0.05	H, C, N, O	41.41
Sr	0.41 ± 0.04		

Tablo 2. Elementlerin tayininde kullanılan reaksiyonlar ve diğer bazı parametreler.

ELEMENT	REAKSIYON	σ (barn)	f (%)	T	E _Y (KeV)
Al	$^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$	0.235	100	2.91 dak.	1778.9
Si	$^{28}\text{Si}(n, p)^{28}\text{Al}$	0.05	92.18	2.31 dak.	1778.9
Mn	$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$	13.3	100	2.58 saat	846.9
Fe	$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	0.01	91.68	2.58 saat	846.9
Ba	$^{138}\text{Ba}(n, \gamma)^{139}\text{Ba}$	0.4	71.66	82.9 dak.	165.8
La	$^{139}\text{La}(n, \gamma)^{140}\text{La}$	8.9	99.91	40.22 saat	486.8
Sm	$^{152}\text{Sm}(n, \gamma)^{153}\text{Sm}$	210	26.63	46.8 saat	103.2
Eu	$^{151}\text{Eu}(n, \gamma)^{152m_1}\text{Eu}$	2800	47.77	9.3 saat	963.5

Tablo 3. Analiz sonuçları

ELEMENT	N U M U N E					
	KTS-1	KTS-2	YB-2	YB-3	U - 3	Y- 2
Al	2.47 ± 0.18(%)	x	x	x	x	x
Si	14.22 ± 2.17(%)	x	1.59 ± 0.46(%)	1.86 ± 0.47(%)	1.28 ± 0.37(%)	x
Mn	17.12 ± 2.80(%)	10.07 ± 1.65(%)	0.280 ± 0.046(%)	800 ± 80(ppm)	240 ± 40(ppm)	0.313 ± 0.052(%)
Fe	9.79 ± 2.19(%)	0.671 ± 0.141(%)	0.45 ± 0.11(%)	x	x	0.316 ± 0.079(%)
Ba	14.13 ± 0.68(%)	17.32 ± 0.89(%)	26.23 ± 1.40(%)	20.48 ± 1.04(%)	29.04 ± 1.44(%)	16.23 ± 0.87(%)
La	0.34 ± 0.09(%)	0.61 ± 0.20(%)	0.58 ± 0.19(%)	0.37 ± 0.12(%)	0.34 ± 0.11(%)	1.49 ± 0.25(%)
Sm	0.23 ± 0.03(%)	0.08 ± 0.01(%)	0.06 ± 0.01(%)	0.08 ± 0.01(%)	0.027 ± 0.005(%)	0.023 ± 0.004(%)
Eu	0.064 ± 0.008(%)	0.010 ± 0.003(%)	0.020 ± 0.004(%)	0.025 ± 0.004(%)	98 ± 21 (ppm)	0.020 ± 0.004(%)
Th	0.575 ± 0.060(%)	0.285 ± 0.029(%)	0.198 ± 0.021(%)	0.274 ± 0.029(%)	753 ± 80 (ppm)	0.385 ± 0.040(%)
U	49 ± 5 (ppm)	39 ± 4 (ppm)	37 ± 4 (ppm)	14 ± 2(ppm)	x	68 ± 7 (ppm)

(x) Gözlenemedi.

Tablo 4. MTA Enstitüsü'nün bulduğu değerlerle bu çalışmanın karşılaştırılması

ELEMENT	KTS-1		KTS-2	
	MTA (%)	Bu Çalışma (%)	MTA (%)	Bu Çalışma (%)
Al	2.83	2.47 ± 0.18	-	x
Si	14.69	14.22 ± 2.17	-	x
Mn	14.20	17.12 ± 2.80	-	10.07 ± 1.65
Fe	4.03	9.79 ± 2.19	-	0.671 ± 0.141
Ba	14.58	14.13 ± 0.68	-	17.32 ± 0.89
La	0.40	0.34 ± 0.09	0.90	0.61 ± 0.20
Sm	0.3	0.23 ± 0.03	0.07	0.08 ± 0.01
Eu	0.07	0.064 ± 0.008	0.007	0.010 ± 0.003
Th	0.57	0.575 ± 0.060	0.29	0.285 ± 0.029
U	-	49 ± 5 (ppm)	-	39 ± 4 (ppm)

REFERANSLAR

- (1) İ. ÇELENK, F. ÖZEK, 5 Ci ^{238}Pu -Be izotopik Nötron Kaynağı kullanarak Bazı Elementlerin Dedeksiyon Limitlerinin Tayini, ANAEM 1982 Yılı Faaliyet Raporu (Baskıda)
- (2) Handbook on Nuclear Activation Cross-Sections, IAEA Vienna, 1974.