

ARTYKUŁY

ANALIZA IZOTOPÓW URANU I PLUTONU PRZY UŻYCIU DETEKTORA PÓŁPRZEWODNIKOWEGO LE_{Ge} ORAZ KODÓW MGAU, MGA

Marian Fajak, Paweł Lipiński,
Krzysztof Isajenko, Barbara Piotrowska

Streszczenie

Nieniszczące pomiary promieniowania gamma oraz X są często wykorzystywane do identyfikacji specjalnych materiałów jądrowych (Special Nuclear Materials-SNM). Istnieje wiele dostępnych komputerowych kodów służących do obliczania składu izotopowego plutonu oraz uranu w oparciu o widmo pomiaru promieniowania gamma oraz X danego materiału. Prawidłowa analiza wymaga często dokładnego określenia niskoenergetycznej części widma pomiaru oraz wykorzystania detektora o wysokiej energetycznej zdolności rozdzielczej (FWHM).

Celem pracy jest przedstawienie wyników pomiarów kilku próbek wzorcowych uranu oraz próbek plutonu o różnym składzie izotopowym przy użyciu detektora półprzewodnikowego LE_{Ge} oraz analiza składu izotopowego z wykorzystaniem kodów MGA oraz MGAU.

W próbkach wzorcowych określono stopień wzbogacenia uranu natomiast w niereferencyjnych próbkach zawierających izotopy Pu określono skład izotopowy.

Wprowadzenie

Szybkie i dokładne określenie wzbogacenia uranu oraz składu izotopowego plutonu jest istotne nie tylko w cyklu paliwowym, lecz także w walce ze zwalczaniem przemytu specjalnych materiałów jądrowych (SNM). SNM podlegają ścisłej kontroli i są weryfikowane przez Euratom, IAEA oraz w oparciu o Program Ochrony Materiałów, Kontroli i Odpowiedzialności (Material Protection, Control and Accounting – MPC&A) przy zastosowaniu SNM w instalacjach jądrowych danego operatora [1].

Materiały jądrowe dzieli się na:

- specjalne materiały rozszczepialne, którymi są pluton (Pu-239, z wyłączeniem plutonu o zawartości Pu-238 powyżej 80%), uran-233 (U-233), uran wzbogacony w izotopy uranu-233 lub uranu-235 (U-235), dowolny materiał zawierający jeden lub więcej z wymienionych;
- materiały wyjściowe, którymi są: uran naturalny (występuje w środowisku naturalnym i zawiera około 99,28% uranu-238, 0,72% uranu-235 oraz śladową ilość uranu-234), uran zubożony (zawartość uranu-235 jest niższa niż w uranie naturalnym, czyli wynosi mniej niż 0,72%) oraz tor;
- uran wzbogacony w izotopy 235 lub 233 oznacza uran zawierający izotop U-235 lub U-233

albo obydwa w ilości większej niż w uranie występującym w naturze.

Materiały jądrowe możemy scharakteryzować jako:

- paliwo jądrowe (np. nisko- (<20% – LEU) lub wysoko- (20% – HEU) wzbogacony uran, pluton, a także mieszanina tlenków plutonu i uranu – MOX,
- materiał nadający się do produkcji broni jądrowej po przetworzeniu,
- materiał bezpośrednio gotowy do produkcji bomb nuklearnych (o postaci metalicznej i zawartości U-235 lub Pu-239 ok. 93%).

Proces charakteryzacji ma na celu tylko odpowiedzieć na pytanie, z jakim konkretnie materiałem mamy do czynienia (bez wnikania w jego historię). Identyfikacja materiału jądrowego ma odpowiedzieć na następujące pytania [2]:

- jakie było pierwotne przeznaczenie materiału (intencja producenta)?
- jakie jest pochodzenie materiału (kto, jaką technologią i kiedy go wyprodukował)?
- kto był jego ostatnim prawnym właścicielem?
- jaką trasą nastąpił przemyt?

Pomiary z wykorzystaniem spektrometrii promieniowania gamma oraz promieniowania X są często wykorzystywane do charakteryzacji specjal-

nych materiałów jądrowych. Spektrometrię gamma można podzielić na pomiary wykonywane za pomocą detektorów o niskiej oraz wysokiej energetycznej zdolności rozdzielczej (FWHM). Do detektorów pierwszej kategorii należą NaI oraz CdTe, które służą głównie do określania wzbogacenia uranu U-235 podczas analizy specjalnych materiałów jądrowych. Detektory wysokiej rozdzielczości służą do określenia wzbogacenia uranu oraz rutynowych pomiarów izotopów plutonu. Pełna analiza widma pomiarowego NSM jest wykonywana przez wyspecjalistyczne oprogramowanie, do najbardziej popularnych należy MGA (analiza radionuklidów plutonu), MGAU (analiza radionuklidów uranu), które opierają się na analizie widma w zakresie niskich energii oraz TRIFID (analiza izotopów plutonu), a także FRAM w oparciu o analizę widma w zakresie wyższych energii (w sytuacji dużej samoabsorpcji promieniowania w matrycy) [1].

Spektrometria gamma przy użyciu detektorów o wysokiej FWHM zapewnia:

- pomiary izotopów plutonu, ameryku, uranu oraz stopnia wzbogacenia U-235,
- ilościowe pomiary izotopów plutonu oraz uranu przy niskiej gęstości matrycy,
- pomiary pośrednie innych emiterów promieniowania gamma, które nie są zidentyfikowane w badanym materiale (np. Cm-244) [3].

Analiza próbek SNM przy użyciu kodu komputerowego MGAU oraz MGA

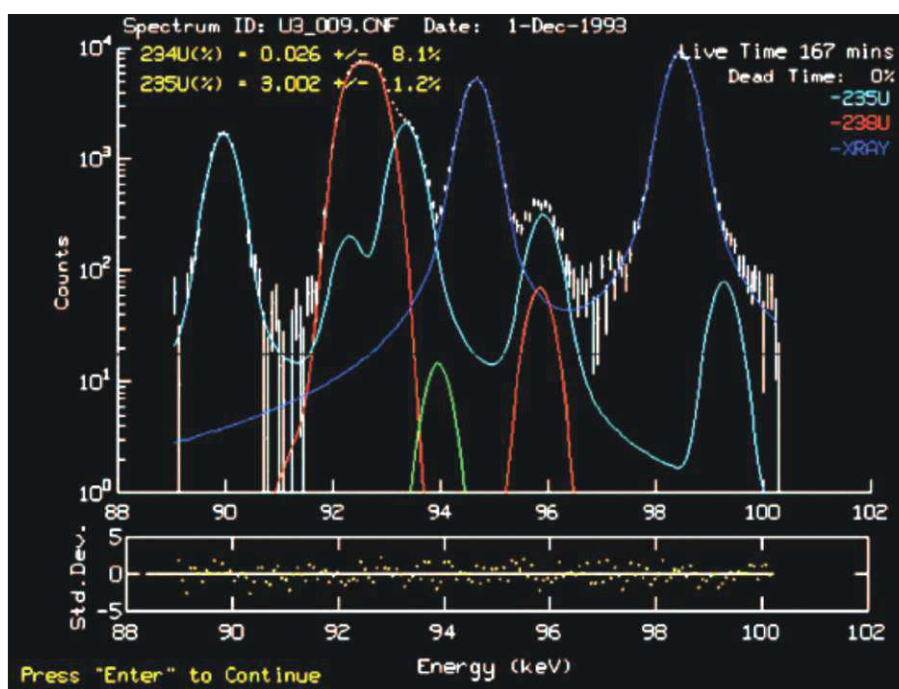
Typowe pomiary izotopów uranu są stosunkowo trudne, gdyż jest to związane z geometrią pomiaru, grubością ścianek naczynia pomiarowego, składem

chemicznym matrycy (duży wpływ samoabsorpcji). Program Multi- Group- Analysis for Uranium (MGAU) został zaprojektowany w celu poprawy dokładności analizy pomiarów oraz uniknięcia kalibracji, która jest istotna w innych metodach pomiarowych. MGAU jest tak skonstruowany, aby zminimalizować całą procedurę związaną z użytkowaniem programu i analizą widma promieniowania gamma.

MGAU wykorzystuje część niskoenergetycznego widma gamma oraz X w zakresie 84–205 keV. Podstawowe informacje dotyczące wzbogacenia U-235 oraz U-238 zawarte są w zakresie 90–94 keV widma. Biorąc pod uwagę samoabsorpcję matrycy oraz próbki, kilka pików w zmierzonym widmie może być wykorzystane do sporządzenia względnej krzywej wydajności detektora w funkcji energii [4].

Jako miernik wzbogacenia używa się także linii 185,7 keV (U-235), jednak jest to inna metoda i wymaga użycia minimum jednej próbki wzorcowej (o znanym wzbogaceniu U-235) przy zbliżonej geometrii pomiarowej. Problem można rozwiązać stosując metodę pomiaru próbki o nieskończonej grubości przez zastosowanie kolimatora (który zapewnia, że detektor „widzi” próbkę w tym samym kącie bryłowym). Na fot. 1 przedstawiono część widma promieniowania gamma wykorzystywanego w obliczeniach MGAU.

W Tabeli 1 przedstawiono wyniki analizy 5 próbek wzorcowych o znanym wzbogaceniu U-235 w oparciu o kod MGAU. Próbki wzorcowe posiadały taką samą masę i geometrię. Pomiary wykonywane były przy pomocy detektora półprzewodnikowego LEGe1015 (FWHM – 530 eV przy 122 keV), czas pomiaru poszczególnych próbek wynosił 3000 s.



Fot. 1. Część widma promieniowania gamma analizowanego przez program MGAU [4]

Tabela 1. Obliczone wartości wzbogacenia % U-235 przy wykorzystaniu MGAU

Nr próbki	% U-235 w próbce (wzorzec)	% U-235 w próbce MGAU
1.	0,710	0,700 ± 0,040
2.	0,310	0,312 ± 0,008
3.	1,950	1,892 ± 0,013
4.	2,900	2,878 ± 0,018
5.	4,500	4,244 ± 0,026

Analiza izotopów plutonu przy użyciu programu MGA

Program Multi-Group-Analysis (MGA) był stworzony w celu udoskonalenia tradycyjnych metod pomiarów izotopów plutonu. Standardowa analiza MGA bazuje na informacji zawartej w widmie gamma w zakresie 0-300 keV. Podstawowa analiza opiera się na badaniu multipletu rejonu 94-104 keV (linii gamma i X), a także linii 59 keV, 129 keV oraz 208 keV.

W sytuacji braku możliwości pomiaru niskich energii (np. w przypadku dużej samoabsorpcji) istnieje możliwość analizy widma w zakresie powyżej 600 keV. MGA bazuje na kilku liniach gamma oraz X emitowanych przez trzy izotopy plutonu. Intensywność oraz dokładność kształtu pików w przedziale 94-104 keV widma pozwala obliczyć skład izotopowy Pu z wyjątkiem Pu-242, który jest obliczany z innego radionuklidu [5].

W Tabeli 2 przedstawiono wyniki analizy składu izotopowego Pu (trzech próbek) wykonaną za pomocą programu komputerowego MGA (wersja 9.7 1996) na licencji firmy Canberra z widma promieniowania gamma otrzymanego przy użyciu detektora LEGe1015.

Wnioski

Obydwie wykorzystywane metody (MGA i MGAU) pozwalają na szybkie, nieniszczące określenie składu izotopowego próbek zawierających izotopy uranu oraz plutonu bez względu na geometrię pomiarową z wykorzystaniem detektorów o bardzo dobrej zdolności rozdzielczej w niskich energiach promieniowania gamma. Metoda MGAU ma zastosowanie do „czystych” próbek uranu, które nie zawierają naturalnych izotopów z szeregu uranowo-radowego (np. ruda uranowa).

Zawartość uranu U-235 w mierzonych materiałach wzorcowych zawierała się w zakresie (0,31-4,50)%. Taka zawartość uranu najczęściej ma zastosowanie w przemyśle energetyki jądrowej. W reaktorach

Tabela 2. Analiza składu izotopowego Pu w trzech próbkach

Radionuklid	Próbka 1		Próbka 2		Próbka 3	
	Skład %	err. %	Skład %	err. %	Skład %	err. %
Pu-238	0,23	1,9	0,01	20,0	0,19	3,6
Pu-239	80,50	0,4	92,10	0,2	86,68	0,5
Pu-240	17,60	1,6	7,76	2,2	12,01	3,4
Pu-241	0,92	1,3	0,09	3,2	0,78	2,3
Pu-242	0,78	10,0	0,04	10,0	0,35	15
Am-241	3,67	1,1	0,61	1,3	3,26	1,9
Np-237	0,11	8,4	0,02	27,0	0,14	16,7

lekkowodnych stosuje się wzbogacenie U-235 w zakresie 3-5% (najczęściej występujące w Europie to BWR, PWR).

Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej prowadzi także nieniszczące badania różnych próbek w ramach programu zwalczania przemytu materiałów jądrowych i materiałów specjalnego znaczenia oznaczając różnego rodzaju próbki (w tym próbki pastylek paliwa jądrowego). Wyniki pomiarów były precyzyjne, co zostało zweryfikowane przez wykonanie analizy niszczącej wykonanej w ITU (Institute for Transuranium Elements) w Karlsruhe.

*mgr inż. Marian Fajak,
mgr Paweł Lipiński,
mgr inż. Krzysztof Isajenko,
mgr Barbara Piotrowska,
Centralne Laboratorium Ochrony Radiologicznej,
Warszawa*

Literatura

- [1] M.J. Koskelo, C.G. Wilkins, J.G. Fleissner: Comparison of the Performance of Different Plutonium Isotopic Codes Using a Range of Detector Types, Canberra Industries, 800 Research Parkway, Meriden, CT 06450, USA
- [2] Strona internetowa Centralnego Laboratorium Ochrony Radiologicznej: http://www.clor.waw.pl/bezpieczenstwo/mat_jadrowe.htm
- [3] Robert D. McElroy, Jr., Stephen Croft, Brian M. Young: Non Destructive Assay Box Counter, Canberra Industries, 800 Research Parkway, Meriden CT 06450, USA
- [4] Instruction MGAU-SS-C39051 Multi-Group Analysis software for Uranium – Canberra, USA
- [5] Instruction MGA-SS-C38690 Multi-Group Analysis software for Plutonium Canberra, USA