

X-ISINI FLÜOBESANS METODU İLE FİLİZ NUMUNE İÇİNDE URANYUM TAYİNİ

J JUNA* — Cihan ÖZMUTLU** — Haldun ÖZYOL***

özet

Uranyum filiz numuneleri, 1 Curie'lik Cs-137 kaynağının 0.662 MeV'lik gammalarıyla ışınlanmalardır. Foto-elektrik olayı neticesi numunedeki uyartılmış atomların verdiği X-ışınlan bir NaI(Tl) sınıtılasyon kristali yardımı ile sayılmışlardır. Bu X-ışınlanın enerji değerleri, kendilerini meydana getiren atomu karakterize etmekte ve şiddetleri İae bu atomun numune içindeki bolluğu İle orantılı olmaktadır

Numunelerden birisi belli miktarda uranyum İle zenginleştirilmiş ve bu numunenin her İki hali için elde edilen X-ışını şiddetlerinin farkından, bu numunenin İhtiva ettig'i uranyum miktarı mutlak olarak bulunmuştur. Diğer numunelerin ihtiva ettikleri mutlak uranyum miktarları İse, bu numunelerin ölçülen İzafi aktivitelerinin uranyum miktarı elde edilmiş numunenin aktivitesi İle mukayesesi suretiyle tâyin edilmiştir.

Abstract

The samples of uranium ore have been irradiated using the 0.662 MeV gamma rays from the 1 Curie of a Cs-137 source. The atoms in the samples are excited due to photo-electric effect X-rays, originating- during the excitation of these atoms were detected using a NaI(Tl) scintillation crystal. The energy of these X-rays are characteristic for the atoms and their intensity is proportional to the amount of the element in the sample

Using artificial enrichment of one of these samples by a known amount of uranium and from the difference of the

(*) Dr. Fizikçi, Ankara Nükleer Araştırma Merkezi.

(**) Dr. Fizik Y. Müh., Ankara Nükleer Araştırma Merkezi

(•••) Fizik Y. Müh., Ankara Nükleer Araştırma Merkezi.

intensities of their X-rays, the absolute amount of uranium in a particular sample was determined. Absolute uranium content in the other samples was determined from their relative activity with respect to the activity of this particular sample.

1. Giriş

Uranyum bakımından analizleri istenen filiz numunelerin her şeyden önce gamma spektrumları elde edilmiş ve numunelerde uranyum ve seri elementlerinin denge halinde mevcut olduğuna ve başkaca radyoaktif element bulunmadığına, elde edilen gamma spektrumlarının literatür ile mukayesesi neticesi karar verilmiştir.

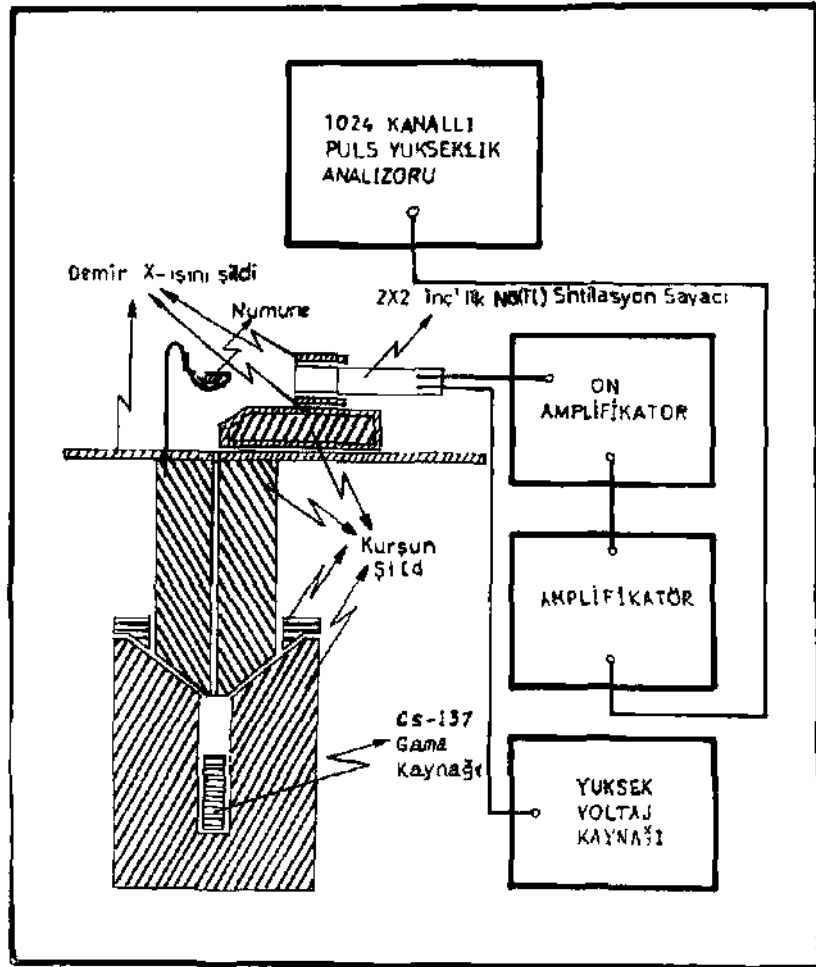
Aktif element veya aktif seri elementleri ihtiva eden bir numunenin aktifliğinden faydalanarak numunedeki aktif element veya elementlerin mutlak tâyini mümkündür. Böyle bir tâyinde elde edilecek izafi aktiviteden mutlak aktiviteye, dolayısıyla mutlak madde miktarına geçebilmek için, numunenin aynı aktif element veya elementlerle zenginleştirilmesi icabeder. Tâyin edilecek radyoaktif elementler denge haline gelmiş bir radyoaktif seri ise, zenginleştirmede kullanılacak standart numunenin de denge haline gelmiş olması istenir. Bu tür bir çalışma lâboratuvarımızda tamamlanmış olup filiz numune içinde toryum tâyin edilmiştir. Zenginleştirmede kullanılan toryum nitrat numunesi, 1906 yılında hazırlanmış ve radyoaktif denge hâsıl olmuş bir numune idi.

Uranyumun seri elementleriyle denge halinde bulunduğu veya bir diğer deyişle, tabiattaki uranyum dengesine ulaşmış bir standart numune elde edilemediğinden, bu metod uranyum tâyinde kullanılamamıştır. Bu bakımdan, numune içinde tâyin edilecek elementin aktifliğinden istifade etmeksizin tatbik edilebilecek bir metod aranmıştır. Foto-flüoresans X-ışını metodu bu amaca uygun bulunmuştur.

2. Deney ve Teori

Deneyde, numunelerdeki uranyum bolluğu çok düşük olduğundan (maksimum %0.6) yüksek şiddetli gamma kaynağı kul-

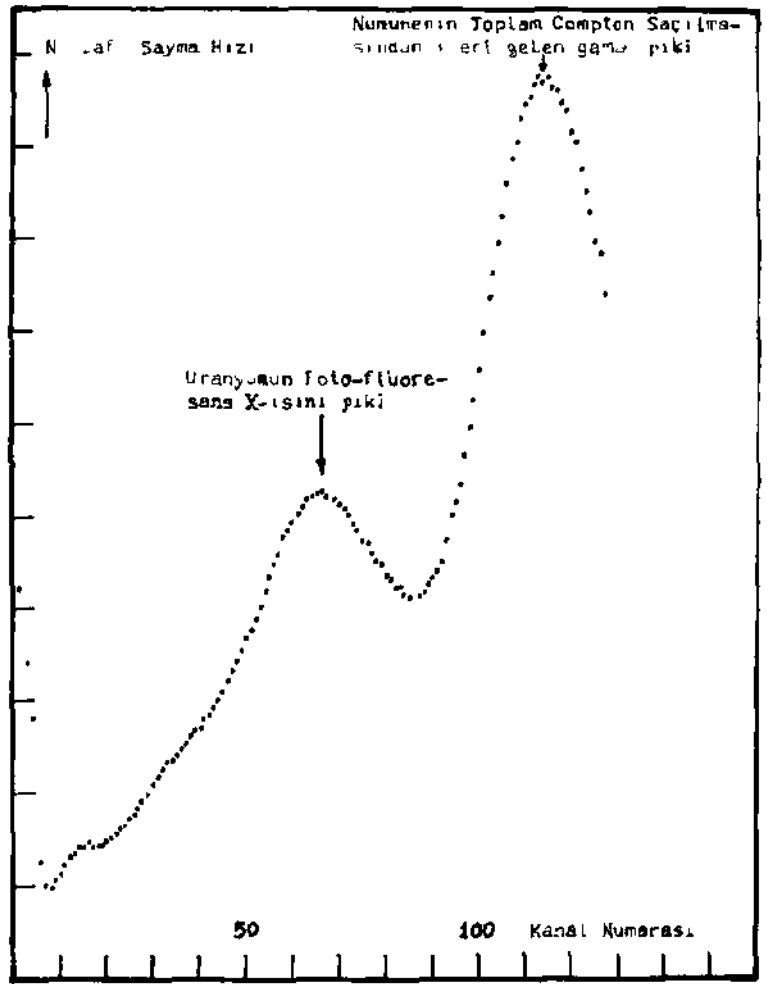
lanılmıştır (1 Curie'lik Cs-137 kaynağı). Tabii fonu mümkün olduğu kadar düşürebilmek için gerek kaynak gerekse dedektor sistemi kuvvetli bir şekilde kurşun ile zırhlanmıştır. Uranyumun X-ışınlarının sayım verimini arttırmak için dedektor, numune ve kaynak mesafeleri mümkün olduğu kadar kısa alınmıştır. Dedektor olarak da 2x2 inçlik Nal (TI) kristalli sintilâs-



Şekil - 1. Filiz numune içinde uranyum tayininde kullanılan düzeneğin şematik görünüşü.

yon sayacı, lüzumlu elektronik (ön-amplifikatör, amplifikatör, 1024-kanallı analizör) ile birlikte kullanılmıştır. Şekil 1'de deneyde kullanılan düzenek verilmektedir.

Kurşunda meydana gelebilecek flüoresans X-ışınlarından kurtulmak için kurşun zırh bir de demir X-ışını zırhı ile kaplanmış ve sayaç, kurşun zırhın gammalarla tesirleşen kısımla-

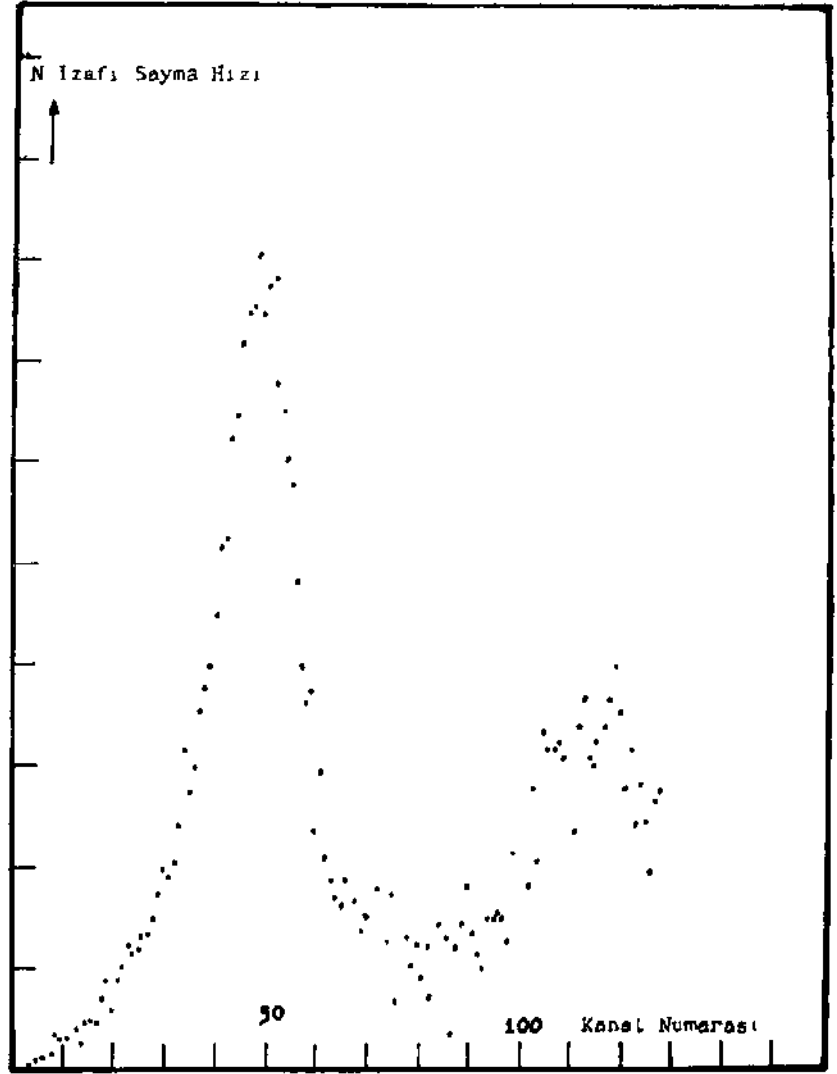


Şekil - 1. Filiz numunelerden gama bombardmanı esnasında alınan foto-flüoresans X-ışını spektrumu.

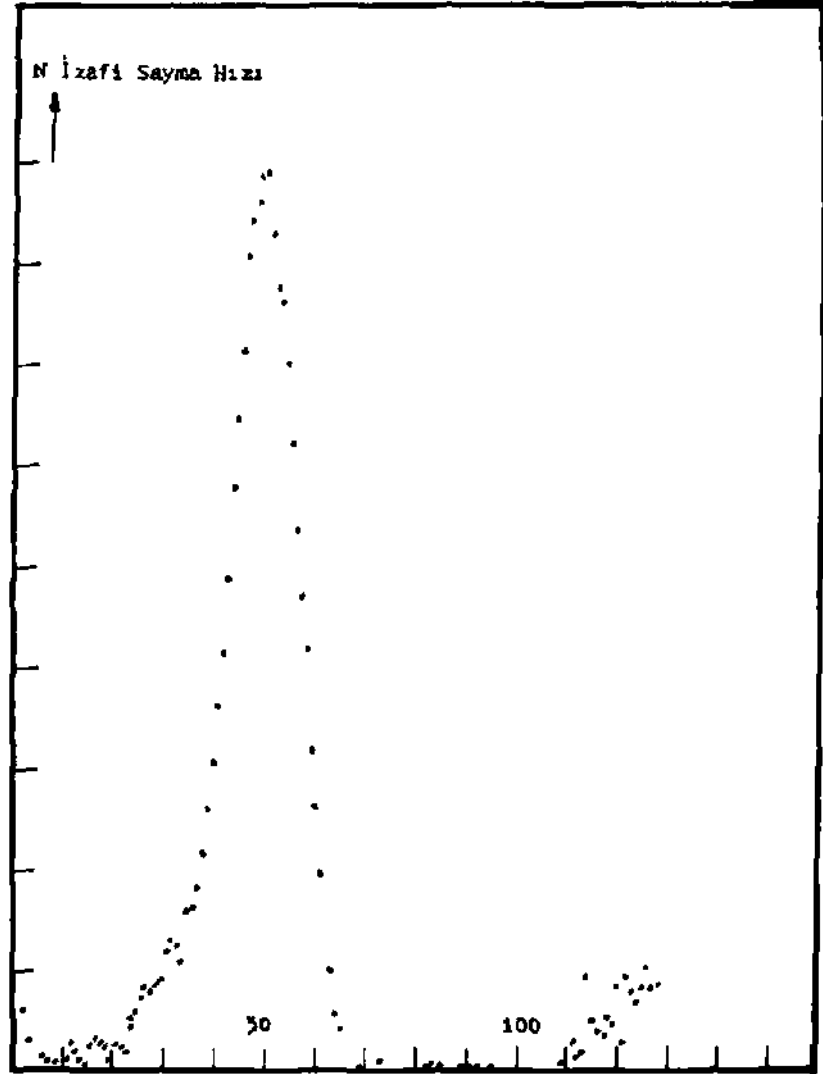
rını göremeyecek şekilde yerleştirilmiştir. Sayaç kristalinin numuneye bakan yüzü haricindeki kısmı yine demir ile kaplanmış ve bu suretle X-ışını tabii fonu düşürülmüştür.

Şekü 2'den de görüleceği gibi, numunelerden alınan X-ışını spektrumunda, numunede meydana gelen Compton olayı neticesi saçılan gamma-ışınların spektrum üzerindeki tesiri oldukça büyüktür. Bu bakımdan, uranyumun foto-flüoresans X-ışınlarının meydana getirdiği pik alanının bu durumda hesaplanması oldukça hatalıdır. Bu tesirden kurtulmak gayesiyle, en bol uranyum ihtiva eden numune üe en az uranyum ihtiva eden numunenin spektrum farkı teşkil edilmiştir. Bu farkın alınmasında gamma-ışınları bombardımanına tabi tutulan her iki numune de eşit miktarda alınmış ve sayma geometrisinin tamamen aynı kalmasına dikkat edilmiştir. Pek tabiidir ki, miktar bakımından aynı olan bu iki numunede meydana gelecek Compton saçılması şiddeti aynı olacaktır. Fakat, numuneler uranyum bolluğu bakımından farklı olduklarından —fark, miktarla orantılı olmak üzere— spektrum farkında uranyumun foto-flüoresans X-ışınlarına ait pik görülecektir. Bu durum Şekil 3'te açıkça görülmektedir. Ayrıca, Uranyum Nitrat numunesinin aynı şartlarda foto-flüoresans X-ışını spektrumu elde edilmiştir (Şekil 4). Şekil 3 üe Şekil 4'te verilen spektrumların mukayesesinden numunelerden alınan spektrum farkında ortaya çıkan pik, numunede bulunan uranyumun foto-flüoresans X-ışınından meydana geldiği anlaşılmıştır. Ayrıca, numunelerde başka bir ağır elementin bulunmadığı, her iki spektrumdaki X-ışını piklerinin rezolüsyon değerlerinin karşılaştırılmasıyla anlaşılmıştır. Numunelerde uranyum bulunduğu bir başka metodla da tahkik edilmiş; numunelerden alınan gamma-ışını spektrumları, literatürde verilen uranyum filiz spektrumları ile aynı bulunmuştur.

Numunelerden elde edilen sayımlarda, orantı katsayısını tâyin etmek için, en fakir numune belli miktarda uranyum ile zenginleştirilmiştir. Zenginleştirilmiş fakir numunenin spektrumu ile fakir numunenin spektrumunun farkı elde edilmiştir. Elde edilen bu fark spektrumunda, X-ışını pikinin alanının zenginleştirilme miktarı ile orantılı olacağı nazarı dikkate alınarak orantı katsayısı tâyin edilmiştir.



Sekil 3 Uranyum bakımından en zengin numunenin foto-flüoresans X ışını spektrumu ile fakir numune spektrumunun farkı.



Şekil - 4. Uranyum Nitrat (U₂N₂O₈)'den gama bombardmanı esnasında alınan foto-fluoresans X-ışını spektrumu.

Denel neticenin değeriendirilmesindeki düşüncenin matematik izahı aşağıdaki gibi yapılabilir:

Uranyum bakımından en zengin ve en fakir numunelerden elde edilen fark spektrumunda foto-flüoresans X-ışını pikinin meydana getirdiği alan,

$$N_{(M-m)} = K \cdot dt \cdot (M - m)$$

ile ifade edilebilir. Zenginleştirilmiş fakir numune ile fakir numunenin fark spektrumundaki X-ışını pik alanı ise,

$$N_{(m+A)-m} = K \cdot dt' \cdot (A + m - m) \quad (2)$$

şeklinde ifade edilebilir. Kolayca görüleceği üzere,

$$K = N_{(m+A)-m} / dt' \cdot A \quad (3)$$

olacaktır. Burada m ve M, sırasıyla, en fakir ve en zengin fizik numunelerin yüzde olarak uranyum bollukları; A, yine yüzde olarak, en fakir numunenin zenginleştirme miktarı; K, sayma sisteminin geometrisine, hassasiyetine, gammaların fotoelektrik tesir kesitine ve X-ışınlarının numune içinde soğurulma tesir kesitine bağlı orantı katsayısı; dt ve dt' ise deney süreleridir. Yukarıdaki denklemler yardımı ile,

$$N_{M-m} = N_{(m+A)-m} \cdot dt \cdot (M - m) / dt' \cdot A \quad (4)$$

yazılabilir.

Ayrı bir deney olarak, elde mevcut bütün numuneler bir GM sayaç sistemi yardımıyla sayılmış ve ihtiva ettikleri uranyumdan dolayı izafi aktiflikleri tesbit edilmiştir, (k) yine sisteme ve numuneye bağlı orantı katsayısı olmak üzere, i'ninci numunenin izafi aktivitesi aşağıdaki gibi yazılabilir:

$$N_i = k \cdot M_i \quad (5)$$

Bu denklem yardımıyla şu ifadeleri yazmak mümkündür:

Şayet en zengin M uranyum bolluğuna ve en fakir m uranyum bolluğuna sahip numuneler, sırasıyla, h ve j'ninci numuneler ise,

$$(M-m)k = N_h - N_l, \quad k = N_h / M$$

yeya,

$$(M-m) = M \cdot (1 - N_l / N_h) \quad (6)$$

(4) ve (6) denklemlerinin yardımı ile de,

$$N_{M-m} = N_{(A+m)-m} (dt / A dt') M (1 - N_l / N_h) \quad . . (7)$$

elde edilebilir ki buradan da, en zengin numunenin yüzde uranyum bolluğu. M, aşağıdaki şekilde yazılabilir:

$$M = (N_{M-m} / N_{(m+A)-m}) \cdot (A \cdot dt' / dt) \left[1 / (1 - N_l / N_h) \right] \quad (8)$$

Diğer herhangi bir i'ninci numunedeki uranyum bolluğu ise (6) ve (8) denklemlerinden faydalanılarak aşağıdaki gibi verilir:

$$M_i = M \cdot N_i / N_h \quad \dots \dots (9)$$

Herbir numune 5000 sn sayılmış ($dt = dt' = 5000$ sn) ve fark spektrumlar, çok-kanal analizörün "Subtraction" pozisyonunda otomatik olarak alınmıştır. Numunelerin izafi aktivite-ler birim zaman basma indirgenmek suretiyle (5) denkleminde kullanılmıştır.

Metodun kontrolü bakımından, bir de en zengin numuneyi daha da zenginleştirmek suretiyle sayma orantı katsayısı K'nın tayıni yapılarak deney tekrarlanmış ve hata sınırlarının çok altında aynı neticeler elde edilmiştir. Zenginleştirilmiş en zengin numune ile zengin numunenin fark spektrumundakî X-ışını pikinin alanı, yani $N_{(M+A')-M}$, aşağıdaki şekilde ifade edilebilir:

$$N_{(M+A')-M} = K \cdot dt'' \cdot (A' + M - M)$$

veya,

$$K = N_{(M+A')-M} / dt'' \cdot A' \quad <^{10}>$$

(1) ve (6) denklemlerinin kullanılması ile M için aşağıdaki ifadeyi yazmak mümkündür:

$$M = (N_{M-m} / N_{(M+A')-M}) (A' \cdot dt'' / dt) \cdot \left[1 / (1 - N_1 / N_h) \right] \quad (11)$$

Diğer nünunelerdeki M, uranyum bolluğu yine (9) denkleminin kullanılması ile elde edilebilir.

3. Netice ve Münakaşa

Yukarıda anlatıldığı şekilde tâyin edilen uranyum bollukları % olarak hata değerleri ile birlikte Tablo 1'de verilmiştir. Değerler üzerindeki hataların elde edilmesinde, sayma statistiği, numune tartı hataları nazarı itibara alınmıştır.

Şekil 3'ten de görüleceği gibi, farklı uranyum ihtiva eden iki numunenin Spektrum farkında Compton saçılmasından ileri gelen gamma piki az da olsa mevcuttur. İki numunenin miktar bakımından aym oluşu, aym geometride sayılması ve aynı zaman aralığında sayılmış olmasına rağmen bu kalıntı Compton gamma pikinin mevcudiyetine sebep, sayma geometrisinde numune değiştirilmesinden ileri gelen ço kaz miktarda geometri değişikliği ve numunelerin yoğunluk bakımından çok az farklı oluşundan ileri gelen, az da olsa, numune hacim farklılığından ileri gelmiştir. Compton piki kalıntısına sebep olan bu etkeler hiçbir şekilde X-ışını piki üzerinde bir değişikliği gerektirmez.

Numunelerin neşrettikleri gammaların enerjiye bağlı spektrumları incelenmiş ve elde edilen değişim, uranyum filizi için literatürde verilen spektrumla aym bulunmuştur (3). Numunelerden elde edilen foto-flüoresans X-ışını pikinin enerji değeri uranyumun K-elektron enerji seviyesine uygun bulunmuştur. Ayrıca bu X-ışını pikinin rezolüsyon değeri uranyum nitrat ile aym şartlarla elde edilen foto-flüoresans X-ışını pikinin rezolüsyon değeri ile uyuşma göstermiştir. Bu üç sebepten dolayı numunelerde aktif element olarak uranyum ve serisinin bulunduğu, aktif veya aktif olmayan ağır kütle numaralı başka bir elementin mevcut olmadığına karar verilmiştir.

Tablo 1 — M.T.A. Enstitüsü Tarafından Numaralanmış Filiz Numunelerin Uranyum Bakunından Zenginlikleri

| Numune No. | Uranyum aktifliđi (Sayma/dak. gr) | Mutlak uranyum bolluđu (<#) | Mutlak hata |
|------------|-----------------------------------|-----------------------------|-------------|
| 19384 | 173 | 0.090 | 0 005 |
| 19381 | 1100 | 0.590 | 0.030 |
| 19361 | 54 | 0.028 | 0.002 |
| 19386 | 591 | 0.306 | 0.016 |
| 19371 | 72 | 0.037 | 0.003 |
| 19398 | 357 | 0.185 | 0.011 |
| 19379 | 167 | 0.086 | 0.005 |
| 19375 | 96 | 0 050 | 0.003 |
| 19369 | 82 | 0.042 | 0.003 |
| 19368 | 69 | 0.036 | 0.002 |

Bibliyografik Tanıtım

1. K. Sieghban, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, North Holland Publishing Company, Amsterdam (1955).
2. R. p. Gardner, R. L. Ely, Jr., Radioisotope Measurement Applications in Engineering, Reinhold Publishing Corporation (1967).
3. R. L. Heath, Scintillation Spectrometry, Gamma-Ray Spectrum Catalogue, IDO-16880, vol. 2 (1964).

