

Zárójelentés

a

Új adatkönyvtár készítése hideg neutronos prompt gamma aktivációs analízishez
c., 49253 sz. OTKA pályázathoz

Témavezető: Révay Zsolt (MTA Izotópkutató Intézet, Nukleáris Kutatások Osztálya)

Résztvevők: Belgya Tamás, Szentmiklósi László (MTA IKI, NKO)

Futam: 2005–2007.

Támogatási összeg: 5,8 MFt

A kutatás célja. A kutatás célja egy az eddiginél részletesebb és pontosabb PGAA adatbázis létrehozása volt. A prompt gamma aktivációs analízis sokoldalúan alkalmazható nukleáris analitikai technika, amelynek elterjedését elsősorban a megfelelő adatkönyvtár hiánya akadályozta. Az adatbázis előző verzióját ugyancsak mi állítottunk össze a Csillebérci Kutatóreaktor termikus neutronnyalábjában végzett méréseink alapján. Eredményeinket többek között a 2004. decemberében megjelent Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis with Neutron Beams (Ed. G.L. Molnár, Kluwer, 2004) c. kézikönyvben jelentettük meg. Az iránta mutatkozó érdeklődést jól jellemzi, hogy tavalyig több mint 500 példányt adtak el ebből az egyébként szűk szakmát érintő kézikönyvből. Hasonló, egységes szempontok alapján mért és összeállított adatkönyvtár máig sincs az irodalomban.

Ezek az adatok nemcsak analitikai, hanem sugárbiztonsági, dozimetriai, valamint magfizikai szempontból is fontosak. Ezzel a projekttel párhuzamosan más pályázatok segítségével felújítottuk a berendezésünk számos részét, jelenleg a termikus nyalábjához képest 50-szeres fluxussal dolgozunk, új detektort vásárolhattunk. Ezeknek, s nem utolsósorban az előző könyvtár összeállítása során szerzett tapasztalatainknak köszönhetően az eddigieknél jobb minőségű méréseket tudunk végezni ennek a pályázatnak a keretében, így az előzőnél pontosabb és teljesebb adatkönyvtárat tudunk előállítani.

A projekt megvalósítása.

Munkafeltételek. Felszereltük az előkészítő laboratóriumunkat részben ezen OTKA támogatás segítségével. A laboratórium immár alkalmas mindenfajta minta preparálására, így a szilárd, kristályos vagy porminták előkészítésére, de savas oldatok kezelésére is. Gázminták tárolására és mérésére alkalmas, szelepes teflon gázmintavevőket vásároltunk, amelyek anyaguknál fogva alkalmasak neutronnyalábjában történő mérésekre.

Bevezettük az elektronikus naplózást, és a mérőgép távoli elérését lehetővé tevő szoftverek segítségével immár bárhonnán vezérelhetjük az adatgyűjtést. Ezt részben az ezen OTKA keretéből vásárolt számítástechnikai berendezések tették lehetővé. Ez az adatgyűjtés az eddigieknél optimálisabb méréstervezést és -ütemezést tesz lehetővé. Az elektronikus naplózás ugyanakkor jó alapot jelent az intézetünkben a 2008. tavaszán bevezetésre kerülő ISO-9001:2000 szabvány szerinti működtetéshez is.

Jelentősen átalakítottuk a berendezésünket. (A felújítás alatt a kísérleti munka állt ugyan, de a kiértékelést, a könyvtár tökéletesítését épp ebben az időszakban tudtuk a leghatékonyabban végezni.) A neutronvezetők cseréjét követően jelentősen

megnövekedett a termikus ekvivalens fluxus, így a korábbiaknál jobb statisztikájú méréseket tudunk végezni. Az új detektor nagy energián nagyobb hatásokkal rendelkezik, s ez lehetővé tette a nagy energiájú csúcsok még jobb statisztikával történő mérését.

Kísérleti munka. Az első időszakban a rendelkezésünkre álló szilárd standardok és elemek újramérése történt meg a felmerült igényeknek megfelelően (Tl, Li, Sc, La, Th, Si, Na, B). Méréseket végeztünk továbbá a nemesgázokon (Ne, Ar, Kr, Xe).

Nyalábszaggató méréseket végeztünk a rövid felezési idejű izotópokat tartalmazó elemek bomlási gamma-vonalainak standardizálására (F, Al, Na, Sc, Mn, W, Ag, Br, I, Hf, Rb). Eredményeink leközltek.

Részben folyékony halmazállapotú mintákat használva tovább folytattuk az elemek mérését a következőkkel: B, Be, C, N, O, Na, Mg, Sr, Al, Ne, F, P, Se, Bi, U. Savas oldatokat készítettünk a ritkaföldfémekből (La–Lu).

A nem $1/v$ -s nuklidok (Rh, Cd, In, Te, Sm, Gd, Dy, Er, Lu, Re) különböző nyalábokban mérhető hatáskeresztmetszetének összehasonlítására méréseket végeztünk a mi berendezésünkön termikus és hideg üzemmódban, továbbá más reaktoroknál is, eredményeinket leközltek. Ez a mérési sorozat rávilágított a termikus neutronok befogási hatáskeresztmetszetének különbözőségére a különböző nyalábokban. Néhány nuklid esetében ez különösen nagy mértékű lehet, és jelentősen befolyásolhatja az analízis eredményét. Ezért egy másik mérési sorozatban a kritikus nuklidok esetében olyan méréseket végeztünk, ahol a mintabeli termalizáció hatását igyekeztünk kiküszöbölni. A legfontosabb (nagy Westcott g -faktorú) nem $1/v$ -s nuklidok savas oldatát (Sm, Gd, Eu, Lu) nehésvízben oldottuk majd a nyalábra helyzetük. Ezzel a hidegneutronnyaláb eredeti energetikai viszonyaihoz közeli állapotban, azaz az $1/v$ -törvényt követő energiatartományban határoztuk meg az említett nuklidok parciális gamma-keltési hatáskeresztmetszetét.

Az elmúlt években változások következtek be a finomvegyszer piacon. A korábbinál olcsóbb és nagyobb tisztaságú vegyületek jelentek meg a legnagyobb vegyszerforgalmazók kínálatában. A „négy-öt kilences” tisztaságú vegyszerek korábban csak az oxidok és az elemi fémek között voltak jellemzőek. E változások némileg átalakították mérési stratégiánkat is. Alapkonceptciónk lényege az volt, hogy ennek a kutatási programnak a keretében közvetlenül hidrogén-alapra helyezzük a standardizálást. Ezt eredetileg vizes (főleg ásványi savas) oldatok besugárzásával kívántuk elérni. A piacon azonban megjelentek nagy tisztaságú hidrogén tartalmú vegyületek (pl. acetátok), ahol nem a bemérés pontossága, hanem a sztöchiometria garantálja a mólarányt. Hasonlóképpen a korábban szinte elérhetetlen nemesfém vegyületek (ebben az esetben főleg oxidok) beszerzése is megoldható volt. A hidrogéntartalmú vegyületek, valamint a megelőző időszakban nem vizsgált elemek mérésére a projekt utolsó szakaszában került sor. Az 50-szeres fluxusú nyalábban a nagyobb hatásfokú detektorral történt mérések lehetővé tették jóval kisebb tömegű minták alkalmazását. Az ideálshoz közel állóan vékony minták alkalmazása kiküszöbölhetővé tette az önabszorpciók korrekció alkalmazását.

Ezen, a pályázatban is vállalt mérések mellett egy kis térfogatú, egyszersmind jobb felbontású germánium detektorral is mértük az elemek spektrumát. Ez a korábbiaknál nemcsak pontosabb energiaértékeket szolgáltat, hanem olyan átfedő csúcsokat is

felbonthatóvá tesz, amelyek a PGAA rendszer részét képező nagy tisztaságú germánium detektorral nem voltak felbonthatók. A mérések kiértékelése zajlik, az adatbázisba történő bevezetésük a többi spektrumból származó adattal együtt folyamatban van.

Kiértékelés. Új módszert dolgoztunk ki részben ennek az OTKÁ-nak a keretében a nitrogén kalibrációs standard gamma-vonalai relatív intenzitásainak meghatározására, amely így nagy energián az eddigiektől kissé eltérő energia-kalibrációt eredményez. Új adataink előállításánál az új N adatokat a régiakkal párhuzamosan használtuk és használjuk. Mindkét kalibrációs adatsorhoz képest kiszámítottuk, illetve egy átmeneti ideig a jövőben is kiszámítjuk a hatáskeresztmetszet adatokat. Erre azért van szükség, mert a régi és új adatok között nagy energián több százalékos eltérés van, így egyáltalán nem mindegy, melyiket használjuk. Amíg bevált gyakorlattá nem válik az új nitrogén adatok elterjedése, addig az adatbázis konzisztenciája miatt fenntartjuk a két kalibráción alapuló standardizálás gyakorlatát. Eredményeinket ugyancsak lepublikáltuk. Az új hatásfokfüggvény ellenőrzése is megtörtént az alumínium segítségével, amelynek nívósémája alapján a relatív intenzitások rekonstruálhatók voltak, és megerősítették a nitrogén adatokat. (Szintén lepublikáltuk.)

Új módszert dolgoztunk ki a mért hatáskeresztmetszetek és az analitikai eredmények hibáinak számítására és azok csökkentésére a szisztematikus és a statisztikus hibák megfelelő kezelésével. A belőle készült cikk megjelent.

Módszert dolgoztunk ki a bór csúcs jellegzetes alakjának leírására és a bórral történő spektrális interferenciák korrekciójára. (Szentmiklósi László sikeresen védte meg Ph.D. értekezését részben e témában végzett munkájáról 2006-ban.)

A bomlási vonalak hatáskeresztmetszetének a számolásához a bomlás típusát figyelembevevő bomlási korrekciós faktort vezettünk le, amely a radioaktív nuklidok tágabb körének pontos elemzését teszi lehetővé. Eredményeinket ugyancsak lepublikáltuk.

Átalakítottuk a kiértékelő szoftvert, amely a csúcsintenzitásokból és a pontosított spektroszkópiai adatokból kiszámolja a minta összetételét. (A módszert, és az új szoftvert két amerikai laboratóriumban, egyrészt a National Institute of Standards and Technology reaktora mellett üzemelő hidegneutronos PGAA rendszerénél, valamint a University of Texas at Austin, Nuclear Engineering Teaching Laboratoryban bevezették. Jelenleg a München melletti Garching FRM-II kutatóreaktorának PGAA berendezésén készülnek módszereinket, köztük e szoftvert is bevezetni.)

Az adatkönyvtár revíziója folyamatban van. A könyvtár az új kiértékelési szempontoknak is megfelel, így most már külön szerepel benne az adatok szisztematikus és statisztikus hibája, amely az új kiértékelő algoritmushoz elengedhetetlenül fontos az összetétel hibájának az eddiginél megbízhatóbb becslése végett. Az új könyvtárat fokozatosan vezetjük be felújított berendezésünkön.

Eredményesség. Munkánkról nemzetközi és hazai konferenciákon, tanácskozásokon, tanulmányutakon tartott előadásainkon és folyóiratcikkekben számoltunk be. Az analízisbe történő bevezetés folyamatosan történik, így a PGAA alkalmazások egyre pontosabb eredményei idővel ugyancsak hasznosítják az új adatkönyvtárat.

Összefoglalás

A kutatás célja a prompt gamma aktivációs analízis korábban kifejlesztett adatkönyvtárának pontosítása volt. Ehhez felújítottuk a mintaelőkészítő laboratóriumunkat, nagy tisztaságú új vegyszereket vásároltuk (egy másik pályázat keretében) felújítottuk a mérőrendszerünket. Az új berendezésen nagyobb neutron-fluxus mellett nagyobb hatásfokkal, ugyanakkor kisebb mintatömegeket alkalmazva újramértük az egyes elemek parciális gammakeltési hatáskeresztmetszeteit és meghatároztuk a karakterisztikus vonalak energiáit. A legfontosabb (elsősorban a könnyű elemek) esetében nagy felbontású detektorral is végeztünk méréseket a korábban feloldhatatlan spektrális átfedések felbontása céljából. E mérésekkel párhuzamosan bomlási gamma-csúcsok hatáskeresztmetszetét is meghatároztuk. A spektrumokat kiértékeljük. Az új adatokat folyamatosan visszük be az adatbázisokba. Az adatkönyvtár revízióját számos módszertani fejlesztésünk is segíti. Új kalibráló standard adatokat határoztunk meg, kidolgoztuk a hibaszámítás módszereit a standardizáláshoz és az összetétel meghatározásához, továbbfejlesztettük az összetétel számító programot. Mindezek egyre pontosabb és megbízhatóbb kémiai analízist tesznek lehetővé ezzel is segítve a berendezésünkönél folyó kutatómunkát.