



TH0300088

พปส.
OAEP -1-178

การพัฒนาวิธีวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม
ด้วยการนับดีเลย์นิวตรอน

โดย

จัมภ์บงกช ศรีบุญญาวังษ์
เชาวน์ รอดทองคำ

กองเคมี

มิถุนายน 2536

สำนักงานพลังงานปรมาณูเพื่อสันติ
กระทรวงวิทยาศาสตร์ เทคโนโลยีและสิ่งแวดล้อม

การพัฒนาวิธีวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมด้วยการนับดีเลย์นิวตรอน
Development of the Delayed Fission Neutron Counting Method
for Uranium and Thorium Analysis

ชัยบงกช ศรีญญาวัฒน์
เชาวน์ รอดทองคำ

กองเคมี

CHASTBONGKOCH SRINYAWACH
CHOUVANA RODTHONGKOM

CHEMINSTRY DIVISION

มิถุนายน 2536

June 1993

สำนักงานพลังงานปรมาณูเพื่อสันติ

OFFICE OF ATOMIC ENERGY FOR PEACE

กระทรวงวิทยาศาสตร์ เทคโนโลยีและสิ่งแวดล้อม

MINISTRY OF SCIENCE, TECHNOLOGY AND ENVIRONMENT

“This report was prepared as an account of work sponsored by the Office of Atomic Energy for Peace (OAEP). Neither the OAEP, nor any of their employees, or any of their contractors, subcontractors, or their employees, makes any warranty, expressed or implied, or assumes any legal liability or responsibility for the accuracy, completeness or usefulness of any information, apparatus, product or process disclosed, or represents that its use would infringe privately owned rights.

เอกสารฉบับนี้ จัดทำขึ้นโดย สำนักงานพลังงานปรมาณูเพื่อสันติ (พปส.) สำนักงานฯ ไม่ประกันความรับผิดชอบทางกฎหมายในเรื่องความแน่นอน ความสมบูรณ์ หรือประโยชน์ของ ข้อมูล เครื่องมือ ผลิตผล หรือกระบวนการใด ๆ ที่เปิดเผยในเอกสารนี้”

ISBN 974-7400-29-4

พิมพ์เมื่อ พฤศจิกายน 2542

Printed November 1999

บทคัดย่อ

ได้ศึกษาพัฒนาการวิเคราะห์ยูเรเนียม ทอเรียมในตัวอย่างชนิดต่างๆ ทั้งในแร่โมนาไซต์ ในยูเรเนียมทอเรียมเค้ก ในสารละลายอินทรีย์ และสารละลายอนินทรีย์ นอกจากนี้ ยังได้ศึกษาการรบกวนของทอเรียมต่อการวิเคราะห์ยูเรเนียม ศึกษาปริมาณที่เหมาะสมของตัวอย่างที่ใช้วิเคราะห์ศึกษาหาค่าความถูกต้องและแม่นยำของการวิเคราะห์ ในตัวอย่างชนิดต่าง ๆ ตลอดจนได้ศึกษาเปรียบเทียบการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม โดยวิธีนับดีเลย์นิวตรอนกับวิธีอานรังสีนิวตรอนด้วย

ABSTRACT

The development of the delayed fission neutron counting method for uranium and thorium analysis in many kind of sampas such as monazite mineral, uranium -thorium cake and both organic and inorganic solutions were studied. The interference of thorium to the determination of uranium included the sensitivity, precision and accuracy were evaluated. The suitable quantity of the samples and the comparison between the delayed fission neutron counting method and the neutron activation method for uranium and thorium determination were also reported.

การคำนวณเพื่อหาปริมาณยูเรเนียม และทอเรียม โดยวิธีนับดีเลย์นิวตรอน ทำได้ดังนี้

$$N_{dn} = N_1 \sigma_f \phi \frac{\lambda_1 t_b \lambda_1 t_d \lambda_1 t_c}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t_b}) e^{-\lambda_1 t_d} (1 - e^{-\lambda_1 t_c})$$

N_{dn} = จำนวนอะตอมที่สลายโดยการปล่อยดีเลย์นิวตรอน
 N_f = จำนวนอะตอมของธาตุในสารตัวอย่างซึ่งแตกตัวเมื่ออาบรังสีนิวตรอน
 σ_f = โอกาสที่จะเกิดการแตกตัว (fission cross-section)
 ϕ = ความเข้มข้นของนิวตรอน (n/cm^2 -sec)
 a_1 = abundance ของดีเลย์นิวตรอนกลุ่ม 1
 λ_1 = decay constant ของดีเลย์นิวตรอนกลุ่ม 1
 t_b = ระยะเวลาในการอาบรังสี
 t_d = ระยะเวลาในการวัด
 t_c = เวลาระหว่างการสิ้นสุดการอาบรังสีและก่อนเริ่มต้นนับดีเลย์นิวตรอน

เมื่อมีการวัดระดับปริมาณยูเรเนียมและทอเรียมพร้อมกันในตัวอย่างเดียวกันจะต้องทำการอาบรังสีสองครั้ง โดยอาบรังสีนิวตรอนเร็ว (fast neutron) และอาบรังสีนิวตรอนช้า (thermal neutron) อีกครั้งหนึ่ง ทั้งนี้ เนื่องจากคุณสมบัติทางนิวเคลียร์ของยูเรเนียมและทอเรียม ซึ่งแตกต่างกัน พบว่า U-235 และ U-233 จะทำปฏิกิริยาได้ดีกับนิวตรอนช้า ส่วน U-238 และ Th-232 จะทำปฏิกิริยาได้ดีกับนิวตรอนเร็ว (3)

ดังนั้นเมื่อกำหนดให้

C = Activity ที่เกิดจากการไม่หุ้มแคดเมียม (unshielded count)
 S = Activity ที่เกิดจากการหุ้มแคดเมียม (shielded count)
 R = Cadmium ratio สำหรับยูเรเนียม
 r = Cadmium ratio สำหรับทอเรียม
 K = Calibration constant สำหรับยูเรเนียม
 k = Calibration constant สำหรับทอเรียม

1. คำนำ

การวิเคราะห์หาปริมาณของธาตุโดยวิธีนับคีเลต์นิวตรอนนี้ เป็นวิธีที่นิยมใช้มากวิธีหนึ่ง เพราะเป็นวิธีที่ทำได้รวดเร็ว ไม่ต้องทำลายตัวอย่างและมีความถูกต้องแม่นยำดี นิยมใช้วิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในแร่ต่าง ๆ ที่มีปริมาณยูเรเนียมและทอเรียมมากพอควร (1) ผู้ที่ได้ทำการศึกษาหาปริมาณยูเรเนียมและทอเรียม โดยวิธีนี้เป็นครั้งแรกในปี 1962 คือ Amiel Peisach และ Dyer (2) ต่อมาในปี 1967 Gale(1, 2) ได้ทำการศึกษาปริมาณยูเรเนียมและทอเรียมด้วยวิธีนี้ พบว่าสามารถวิเคราะห์ยูเรเนียมได้ต่ำถึง 0.5 ส่วนในล้านส่วน (ppm) และวิเคราะห์ทอเรียมได้ต่ำถึง 2 ส่วนในล้านส่วน (ppm) ส่วนในประเทศไทยได้มีการนำเอาวิธีวิเคราะห์โดยการนับคีเลต์นิวตรอนมาใช้ครั้งแรก ในปี 1973 โดย ม.ล.อนงค์ นิลอุบล (4) พบว่า สามารถวิเคราะห์ทอเรียมได้ต่ำสุด 1%

งานวิจัยนี้มีวัตถุประสงค์เพื่อหาวิธีที่เหมาะสมในการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในตัวอย่างชนิดต่าง ๆ เพื่อรองรับโครงการพัฒนาวัสดุนิวเคลียร์ ซึ่งในแต่ละขั้นตอนของกระบวนการแปรสภาพแร่โมนาไซต์นั้นจะมียูเรเนียมและทอเรียมปริมาณต่าง ๆ กันอยู่ในตัวอย่างทั้งที่เป็นของแข็งและของเหลว ดังนั้น จึงได้ศึกษาและพัฒนาวิธีการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม โดยวิธีนับคีเลต์นิวตรอนนี้ขึ้นเพื่ออุทิศทางความเหมาะสมที่จะนำไปประยุกต์ใช้สนับสนุนโครงการนี้ต่อไป

2. ทฤษฎี

ธาตุที่มีหมายเลขอะตอมตั้งแต่ 90 ขึ้นไป จะสามารถแตกตัวได้เมื่อทำปฏิกิริยากับนิวตรอน การแตกตัว (fission) นี้ จะทำให้เกิดธาตุใหม่ขึ้น เรียกว่า fission product nuclei ซึ่งจะสลายให้รังสีเบต้า และให้ลูกธาตุ (daughter nuclei) ที่มีครึ่งชีวิต ในช่วง 1-60 นาที และลูกธาตุเหล่านี้มีระดับพลังงานสูงกว่าปกติมาก ซึ่งจะปลดปล่อยออกมาให้รูปนิวตรอนช่วงขณะหนึ่งในเวลาอันรวดเร็ว พร้อมกับการปล่อยรังสีเบต้าออกมาด้วย นิวตรอนเหล่านี้เรียกว่า คีเลต์ นิวตรอน (delayed neutrons) และคีเลต์ นิวตรอนเหล่านี้มีพลังงานระดับต่าง ๆ และมีครึ่งชีวิตต่าง ๆ กัน อาจแบ่งเป็นกลุ่ม ๆ ได้ดังแสดงในรูปที่ 1, 2 และในตารางที่ 1 การวัดนิวตรอนดังกล่าวกระทำได้โดยใช้หัววัดชนิด proportional counter คือ Bf_3 counter ซึ่งห่อหุ้มด้วย พาราฟฟิน (paraffin) ขนาดหัววัดมีเส้นผ่าศูนย์กลางประมาณ 2 นิ้ว ยาวประมาณ 21 ซม. ภายในบรรจุด้วยก๊าซโบรอน-10 ประมาณ 96% ส่วนบริเวณล้อมรอบที่ใส่สารตัวอย่างที่จะวิเคราะห์นั้น ทำด้วยตะกั่ว (Lead shield) เพื่อลดปริมาณแกมมาจากตัวอย่างที่จะเข้าไปรบกวนหัววัด จากหัววัดนั้นต่อกับ Junction box, preamplifier, High Voltage supply, amplifier และเครื่องจับเวลา (scaler timer) ดังแสดงในรูปที่ 3

การคำนวณหาอุณหภูมิและทอเรียม จะคำนวณได้ ดังสมการต่อไปนี้

$$C = K.U + kTh$$

$$S = \frac{K.U + kTh}{R \quad r}$$

จาก (2) และ (3) จะได้

$$U = \frac{(C/r) - S}{K \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ - & R \end{bmatrix}}$$

$$Th = \frac{S - (C/R)}{K \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ - & R \end{bmatrix}}$$

3. อุปกรณ์การทดลอง

1. BF₃ proportional counter ขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 2.5 ซม. ยาว 21 ซม. จำนวน 6 หัววัด
2. 264 Keithley Height voltage supply
3. ORTEC Preamplifier Model 109 PC.
4. ORTEC Amplifier Pulse Height Analyzer Model 486
5. ORTEC Scalar Model 484
6. ORTEC Timer Model 8112

4. วิธีการทดลอง

4.1 ปรับเครื่องมือให้อยู่ในสภาวะต่อไปนี้

| | | |
|-----------------------------|-------|-------|
| Height voltage Supply | 1250 | Volts |
| Coarse gain | 4 | |
| Fine gain | 3 | |
| Low gam | 3.67 | |
| Window width | 10.02 | |
| Threshold | 3.2 | |
| Discriminator at difference | | |
| Reference at internal | | |

4.2 การวิเคราะห์ดำเนินการตามเงื่อนไขต่อไปนี้

| | | |
|----------------------------|----|--------|
| เวลาในการอบรังสี | 60 | วินาที |
| เวลาที่ทิ้งให้สลายตัว | 20 | วินาที |
| เวลาที่ใช้นับดีเลย์นิวตรอน | 60 | วินาที |

4.3 การวัดแบคกราวด์

ก่อนดำเนินการทดลองและเมื่อสิ้นสุดการทดลองทุกครั้ง จะต้องวัดแบคกราวด์ โดยการอบรังสีแบบบิเพลาตามเงื่อนไข ในข้อ 2 จะได้ค่าจำนวนนับประมาณ 5-10 cpm. เมื่อเครื่องปฏิกรณ์ทำงานที่ 1000 KW.

4.4 การทำกราฟมาตรฐาน

4.4.1 การทำกราฟมาตรฐานสำหรับวิเคราะห์ยูเรเนียม

ซึ่งยูเรเนียมออกไซด์ (U_3O_8 99.9%) น้ำหนักต่าง ๆ กันตามตารางที่ 2 ผสมด้วยทรายบริสุทธิ์ (purified sand) ให้ได้น้ำหนักประมาณ 0.5 กรัม ใส่ในภาชนะ (vial) ขนาด 3 ซม³ ปิดฝา แล้วเชื่อมติดกัน บรรจุลงในแบบบิเพลา แล้วนำไปอบรังสีในบ่อปฏิกรณ์ทางท่อลม (Pneumatic tube) ซึ่งมีความเข้มข้นของนิวตรอนเป็น 10^{11} นิวตรอน/ซม² - วินาที ตามเงื่อนไขข้อ 2 แบบหุ้มแคดเมียม 1 ครั้ง และแบบไม่หุ้มแคดเมียม 1 ครั้ง ผลการทดลองแสดงไว้ในตารางที่ 2 และรูปที่ 4

4.4.2 การทำกราฟมาตรฐานสำหรับวิเคราะห์ทอเรียม

ซึ่งทอเรียมออกไซด์ (ThO_2 99.9%) น้ำหนักต่าง ๆ ดังตารางที่ 5 1 แล้วดำเนินการทดลองเช่นเดียวกับการทำกราฟมาตรฐานของยูเรเนียม ผลการทดลองแสดงไว้ในตารางที่ 2 และรูปที่ 5

4.5 วิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในแร่โมนาไซต์มาตรฐาน

(standard monazite, NBL-7A)

ซึ่งแร่โมนาไซต์มาตรฐาน NBL-7A ซึ่งมี U_3O_8 0.4% และมี ThO_2 9.7% มาประมาณ 0.5 กรัม ใส่ vial ขนาด 3 ซม³ 9 อัน ปิดฝาแล้วเชื่อมติดกัน บรรจุใส่แบบบิเพลา ดำเนินการทดลอง เช่น 4.1 ผลการทดลองอยู่ในตารางที่ 3

4.6 วิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในแร่โมนาไซต์ของไทย

ขังแร่โมนาไซต์ซึ่งอบแห้งที่อุณหภูมิประมาณ 105° ซ. น้ำหนักประมาณ 0.5 กรัม ใส่ภาชนะ (vial) ขนาด 3 ซม³ ปิดฝาเชื่อมสนิทดำเนินการทดลองเช่น 4.1 ผลการทดลองใน 4

4.7 วิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในยูเรเนียม-ทอเรียมเค็ก

4.7.1 ศึกษาการวิเคราะห์ยูเรเนียมที่มีทอเรียมปริมาณต่างๆ เจือปน

ขังยูเรเนียมออกไซด์บริสุทธิ์ (U_3O_8 99.9%) มา 0.0074998 กรัม ใส่ภาชนะพลาสติก (vial) ขนาด 3 ซม³ 8 อัน เติมทอเรียมออกไซด์ (ThO_2 99.9%) ลงไปปริมาณต่างๆ ตามลำดับดังต่อไปนี้

| Vial No. | ThO_2 added (times) |
|----------|-----------------------|
| 1 | 0 |
| 2 | 0 |
| 3 | 1 |
| 4 | 1.58 |
| 5 | 5.14 |
| 6 | 10.28 |
| 7 | 21.94 |
| 8 | 31.21 |

ดำเนินการทดลอง เช่น 4.1 ผลการทดลองแสดงในตาราง 5

4.7.2 ศึกษาการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในยูเรเนียม-ทอเรียมเค็ก ปริมาณต่างๆ

นำยูเรเนียม-ทอเรียมเค็กไปอบให้แห้ง แล้วชั่งน้ำหนักต่างๆ กัน ดังแสดงในตารางที่ 6 เติมทราบายริลูทซีให้ได้น้ำหนักสุทธิ 0.5 กรัม นำไปดำเนินการทดลองเช่น 4.1 ผลการทดลองแสดงในตารางที่ 6

4.7.3 ศึกษาการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม ในยูเรเนียม-ทอเรียมเด็ก

ที่มีทรายบริสุทธิ์ผสมปริมาณต่าง ๆ

ซึ่งยูเรเนียม-ทอเรียมเด็กมา 0.5 กรัม ใส่ในภาชนะพลาสติก ขนาด 3 ซม³

6 อัน เติมทรายบริสุทธิ์ปริมาณต่าง ๆ ตามลำดับดังต่อไปนี้

| Vial No. | sand added (times) |
|----------|--------------------|
| 1 | 10.75 |
| 2 | 19.75 |
| 3 | 31.93 |
| 4 | 39.75 |
| 5 | 50.88 |
| 6 | 58.54 |

ดำเนินการทดลอง ดัง 4.1 ผลการทดลองแสดงในตารางที่ 7

4.7.4 ศึกษาเปรียบเทียบระหว่างวิธีวิเคราะห์ยูเรเนียม-ทอเรียม โดยวิธีนับ

ดีเลย์นิวตรอนและวิธีนิวตรอนแอกติวชัน

ดำเนินการทดลองเช่น 4.1 โดยใช้ตัวอย่างเป็นยูเรเนียม-ทอเรียมเด็กและแกงก์ (gange) ซึ่งเป็นส่วนของโมนาไซต์ที่ได้จากการย่อยด้วยต่างแล้วแต่ไม่ละลายน้ำ ผลการทดลองได้แสดงไว้ในตารางที่ 8, 9

4.8 วิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมในสารละลายมาตรฐาน

ผสมของยูเรเนียมและทอเรียม

ได้ศึกษาการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียมทั้งในสารละลายมาตรฐานและสารละลายหลังการสกัดด้วยสารละลายอินทรีย์ โดยการนำสารละลายของยูเรเนียมและทอเรียมมา 0.5 ซม³ และ 1 ซม³ ใส่ในภาชนะพลาสติกขนาด 3 ซม³ แล้วดำเนินการทดลองเช่น 4.1 ผลการทดลองแสดงในตารางที่ 10-13

5. ผลการทดลองและสรุปผลการทดลอง

ผลการทดลองที่ได้แสดงไว้ในตารางและรูปต่าง ๆ นั้น พอจะสรุปได้ว่าจากการวิเคราะห์ยูเรเนียมในแร่โมนาไซต์มาตรฐาน โดยวิธีนับดีเลย์ มีความผิดพลาด $\pm 5\%$ และสำหรับทอเรียมมีความผิดพลาด $\pm 4\%$ ความเบี่ยงเบนในการวิเคราะห์สำหรับยูเรเนียม $\pm 10\%$ และสำหรับทอเรียม $\pm 8\%$ ส่วนการศึกษาผลกระทบต่อกรวิเคราะห์ยูเรเนียม หากมีทอเรียมเจือปนปริมาณมาก ๆ นั้น พบว่า แม้มีทอเรียมเจือปนมากถึง 31 เท่าของปริมาณยูเรเนียม ไม่มีผลต่อการวิเคราะห์ยูเรเนียม ผลการปรับแปรปริมาณตัวอย่างยูเรเนียม-ทอเรียมเล็กเพื่อศึกษาผลกระทบต่อกรวิเคราะห์ยูเรเนียม-ทอเรียม พบว่า แม้ปริมาณยูเรเนียม-ทอเรียมเล็กจะต่างกันถึง 10 เท่า ไม่มีผลต่อการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม และพบว่า แม้ปริมาณยูเรเนียม-ทอเรียมเล็กจะน้อยเพียง 0.05 กรัม และมีทรายปนอยู่ 10-60 เท่าก็ตาม ไม่มีผลต่อการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม นอกจากนี้ ยังได้ศึกษาเปรียบเทียบการวิเคราะห์ยูเรเนียมและทอเรียม ในยูเรเนียม-ทอเรียมเล็กโดยวิธีการนับดีเลย์นิวตรอนกับวิธีอานรังสีนิวตรอนด้วย ส่วนการวิเคราะห์ยูเรเนียม-ทอเรียมในสารละลาย มีความผิดพลาดมากกว่าในตัวอย่างที่เป็นของแข็ง ทั้งนี้ เพราะโมเลกุลของน้ำในสารละลายจะทำให้ปริมาณเอพิเทอร์มัลนิวตรอนเปลี่ยนเป็นเทอร์มัลนิวตรอน จึงทำให้ค่าจำนวนนับที่เกิดจากการหุ้มแคดเมียมสูงกว่าที่ควรจะเป็น และทำให้ปริมาณของยูเรเนียมและทอเรียมที่วิเคราะห์ได้โดยวิธีนี้ค่อนข้างจะสูงกว่าความเป็นจริง โดยเฉพาะทอเรียมดังแสดงในตารางที่ 12 นอกจากนี้ ความผิดพลาด ที่อาจจะเกิดขึ้นได้ของการวิเคราะห์ โดยวิธีนี้ยังมีสาเหตุมาจากปัจจัยต่าง ๆ ดังนี้

1. การรบกวนที่เกิดจากการแตกตัวของ nuclei อื่น ๆ ซึ่งจะทำให้จำนวนดีเลย์นิวตรอนมากกว่าความเป็นจริง
2. ต้นกำเนิดดีเลย์นิวตรอนที่เกิดจากปฏิกิริยาปฐมภูมิ หรือทุติยภูมิ (n, P) หรือ (n, α)
3. นิวตรอนที่มาจากปฏิกิริยา (γ, n) ถ้ามีรังสีแกมมา (γ -ray) ที่มีพลังงานสูง ๆ ถูกปล่อยออกมาจาก radioactive isotope ซึ่งได้จากการอานรังสีนิวตรอนของสารตัวอย่าง
4. การบังตัวเอง (self-shielding effects) ในตัวอย่างที่มี nuclide ที่ทำปฏิกิริยากับนิวตรอนได้ดี จะทำให้เกิดการบังกันขึ้นภายในตัวอย่าง ทำให้โอกาสที่ nuclide จะทำปฏิกิริยากับนิวตรอนได้น้อยลง

นอกจากนี้ ปริมาณในโตรเจน ออกซิเจน ในสารตัวอย่างนั้นมีผลต่อการวิเคราะห์ยูเรเนียม ทอเรียม โดยวิธีนี้ด้วย ดังนั้น การวิเคราะห์ยูเรเนียม ทอเรียม โดยวิธีการนับดีเลย์นิวตรอนนี้จะดีสำหรับตัวอย่างที่เป็นของแข็ง โดยเฉพาะตัวอย่างจำพวกแร่ที่มีปริมาณยูเรเนียม ทอเรียมค่อนข้างมาก และในยูเรเนียม ทอเรียมเล็ก ดังนั้น งาน ศึกษาวิจัยนี้จึงเป็นประโยชน์

ในเชิงศึกษาหาข้อมูลเพื่อหาวิธีวิเคราะห์ที่เหมาะสมในการรองรับงานพัฒนาวัสดุนิวเคลียร์ใน
ขั้นตอนต่าง ๆ ของการกระบวนการพัฒนานั้น

เอกสารอ้างอิง

1. N.H. Gale, Development of delayed Neutron Technique as Rapid and precise method for determination of uranium and thorium at trace level in rocks and minerals with application to isotope geochronology, SM-87/38, pp. 431-499.
2. S. Ameil, (1962) Analytical application of Delayed neutron emission in fissionable elements, Anal Chem., 34(13): 1963-1962.
3. A. Nilubol (1975) Determination of Thorium in ores by delayed neutron counting A preliminary investigation at TRR-1, OAEP-78.
4. จินดารมย์ ชาวเจริญพันธ์ และกาญจนา ศิริอุปถัมภ์ (2525) การวิเคราะห์ปริมาณทอเรียมและยูเรเนียมด้วยวิธีนับดีเลย์นิวตรอน หน้า 1-7.

Table 1 Fission produced neutron emitting isotopes

| Isotope | Hal-life (second) | delayed neutron per 100 fission |
|---------|----------------------|------------------------------------|
| Br-87 | 57.5 | 0.063 |
| I-137 | 24.4 | 0.251 |
| Br-88 | 16.3 | |
| I-138 | 6.3 | |
| Br-89 | 4.4 | 0.672 |
| I-139 | 2.0 | |
| Br-90 | 1.0 | |
| As-85 | 0.43 | |
| Total | | 1.65 |

Table 2 The relation of weight, count without and with Cd, Cadmium ratio and count
(without Cd)/weight

| Sample | Weight (gm.) | Count (without Cd) | Count (with Cd) | Cadmium ratio | Count (without Cd) weight |
|--------|---------------------------|-----------------------|--------------------|------------------|---------------------------------|
| U-a | 7.123×10^{-3} | 4555 | 236 | 19.3008 | 639478 |
| U-b | 7.3776×10^{-3} | 4547 | 240 | 18.9458 | 616325 |
| U-c | 11.236×10^{-3} | 6994 | 355 | 19.7014 | 622464 |
| U-d | 16.2816×10^{-3} | 10445 | 547 | 19.0951 | 641322 |
| U-e | 36.337×10^{-3} | 22760 | 1196 | 19.0463 | 626359 |
| Th-a | 36.0085×10^{-3} | 343 | 333 | 1.03003 | 8761 |
| Th-b | 106.1162×10^{-3} | 899 | 992 | 0.90625 | 9348 |
| Th-c | 125.846×10^{-3} | 1059 | 1113 | 0.95148 | 8844 |
| Th-d | 139.1155×10^{-3} | 1193 | 1240 | 0.96210 | 8913 |
| Th-e | 196.589×10^{-3} | 1643 | 1737 | 0.94588 | 8836 |

Table 3 The results of the determination of uranium and thorium in standard monazite sand NGL-7A by delayed neutron counting method.

| No. | % U ₃ O ₈ | % ThO ₂ |
|---------|---------------------------------|--------------------|
| 1 | 0.44±0.03 | 9.70±0.76 |
| 2 | 0.41±0.03 | 9.52±0.75 |
| 3 | 0.40±0.02 | 10.28±0.177 |
| 4 | 0.38±0.03 | 10.68±0.199 |
| 5 | 0.38±0.03 | 9.91±0.93 |
| 6 | 0.40±0.03 | 9.66±0.89 |
| 7 | 0.43±0.03 | 10.87±0.80 |
| 8 | 0.46±0.03 | 9.96±0.76 |
| 9 | 0.44±0.03 | 9.89±0.73 |
| average | 0.42±0.03 | 10.03±0.82 |

Table 4 The results of the determination of uranium and thorium in Thai monazite and by delayed neutron counting method

| sample | % U ₃ O ₈ | % ThO ₂ |
|--------------|---------------------------------|--------------------|
| PG-2 | 0.64±0.04 | 8.06±0.56 |
| PC-3 | 0.41±0.02 | 8.27±0.57 |
| PG-4 | 0.46±0.02 | 7.11±0.51 |
| PK-19 | 0.41±0.02 | 6.91±0.50 |
| RN-1 | 0.46±0.02 | 7.44±0.53 |
| RN-2 | 0.35±0.02 | 8.11±0.56 |
| RN-3 | 0.31±0.02 | 7.08±0.55 |
| RN-4 | 0.31±0.02 | 6.26±0.47 |
| RN-6 | 0.38±0.02 | 7.34±0.52 |
| RN-8 | 0.35±0.02 | 7.72±0.53 |
| RN-9 | 0.40±0.02 | 7.83±0.55 |
| RN-11 | 0.70±0.05 | 8.61±0.60 |
| TK-1,2 | 0.47±0.02 | 8.78±0.60 |
| TK-1 | 0.54±0.04 | 5.97±0.46 |
| TK-2 | 0.35±0.02 | 9.90±0.66 |
| TK-3 | 0.31±0.02 | 9.43±0.63 |
| TK-4.5 | 0.53±0.04 | 8.31±0.58 |
| TK-5 | 0.34±0.02 | 7.95±0.58 |
| TK-7 | 0.44±0.02 | 8.89±0.60 |
| TK-8 | 1.05±0.06 | 4.32±0.41 |
| 90% monazite | 0.31±0.025 | 7.79±0.33 |

Table 5 The effect of thorium oxide to the determination of uranium and thorium by delayed neutron counting method

| Sample | ThO ₅ added (time) | uranium | | thorium | |
|--------|----------------------------------|-----------------|------------------|-----------------|------------------|
| | | content (gm) | analysed (gm) | content (gm) | analysed (gm) |
| 1 | 0 | 0.0075 | 0.0068 | 0.0000 | 0.0000 |
| 2 | 0 | 0.0075 | 0.0065 | 0.0000 | 0.0000 |
| 3 | 1 | 0.0075 | 0.0065 | 0.0076 | 0.0061 |
| 4 | 1.58 | 0.0075 | 0.0062 | 0.0119 | 0.0166 |
| 5 | 5.14 | 0.0075 | 0.0065 | 0.0386 | 0.0408 |
| 6 | 10.28 | 0.0075 | 0.0063 | 0.0771 | 0.0831 |
| 7 | 21.94 | 0.0075 | 0.0063 | 0.1645 | 0.1705 |
| 8 | 31.21 | 0.0075 | 0.0065 | 0.2341 | 0.2480 |

Table 6 The uranium and thorium contents in uranium-thorium cake determined by delayed neutron counting method

| Sample | weight (gm) | % U | % Th |
|--------|-------------|------|-------|
| 1 | 0.0486 | 3.57 | 33.22 |
| 2 | 0.0977 | 3.53 | 40.59 |
| 3 | 0.1545 | 3.52 | 37.02 |
| 4 | 0.2003 | 3.30 | 41.18 |
| 5 | 0.2504 | 3.39 | 37.00 |
| 6 | 0.3002 | 3.27 | 36.65 |
| 7 | 0.3994 | 3.41 | 37.25 |
| 8 | 0.5002 | 3.30 | 39.07 |

Table 7 Variation of sand added in uranium-thorium cake

| Sample | sand added (times) | % U | % th |
|--------|-----------------------|------|-------|
| 1 | 10.75 | 3.63 | 38.41 |
| 2 | 19.57 | 3.36 | 41.56 |
| 3 | 21.93 | 3.78 | 31.71 |
| 4 | 39.75 | 3.33 | 49.26 |
| 5 | 50.88 | 3.68 | 37.42 |
| 6 | 58.54 | 3.63 | 39.53 |

Table 8 Comparison between delayed neutron counting method and NAA for the determination of uranium and thorium in uranium-thorium cake.

| Sample | % U | | % Th | |
|--------|--------------------|------|--------------------|-------|
| | delayed neutron | NAA | delayed neutron | NAA |
| D-29-1 | 0.85 ± 0.051 | 3.93 | 12.93 ± 1.06 | 14.38 |
| D-29-2 | 0.73 ± 0.039 | 0.65 | 11.66 ± 0.91 | 10.85 |
| D-30-2 | 1.19 ± 0.101 | 0.81 | 15.10 ± 1.42 | 16.35 |
| D-31-2 | 1.49 ± 0.085 | 1.04 | 19.40 ± 1.41 | 19.24 |
| D-32-1 | 0.87 ± 0.050 | 0.62 | 12.89 ± 1.11 | 12.72 |
| D-32-2 | 0.80 ± 0.049 | 0.60 | 10.82 ± 0.98 | 11.95 |
| D-33-1 | 0.99 ± 0.059 | - | 13.95 | - |
| D-34-1 | 0.95 ± 0.060 | 0.93 | 11.33 ± 0.90 | 13.18 |
| D-34-2 | 1.19 ± 0.07 | 1.12 | 16.23 ± 1.16 | 16.16 |
| D-40-1 | 1.01 ± 0.06 | 0.74 | 14.33 ± 1.07 | 14.72 |
| D-40-2 | 0.87 ± 0.05 | 0.66 | 11.58 ± 0.87 | 14.06 |

Table 9 Comparison between delayed neutron counting method and NAA
for the determination of uranium and thorium in gangue

| Sample | % U | | % Th | |
|--------|--------------------|-------|--------------------|------|
| | delayed neutron | NAA | delayed neutron | NAA |
| C-24 | 0.493±0.049 | 0.497 | 6.81±0.57 | 6.39 |
| C-29 | 0.644±0.040 | 0.546 | 6.44±0.73 | 6.13 |
| C-30 | 0.609±0.041 | 0.552 | 5.52±0.79 | 5.76 |
| C-31 | 0.489±0.032 | 0.476 | 6.20±0.67 | 5.87 |
| C-32 | 0.582±0.038 | 0.427 | 5.29±0.70 | 5.75 |
| C-33 | 0.467±0.030 | - | 6.64±0.67 | - |
| C-35 | 0.585±0.032 | 0.447 | 5.71±0.62 | 5.72 |

Table 10 Accuracy of uranium in standard uranium solution

| Sample | uranium (ppm) | | % Error |
|--------|---------------|----------|---------|
| | content | analysis | |
| 1 | 10,000 | 12,240 | + 22 |
| 2 | 8,000 | 9,686 | + 21 |
| 3 | 6,000 | 7,313 | +22 |
| 4 | 4,000 | 3,158 | + 21 |
| 5 | 2,000 | 2,292 | + 15 |
| 6 | 1,000 | 1,174 | + 17 |

Table 11 Accuracy of thorium in standard thorium solution

| Sample | thorium (ppm) | | % Errer |
|--------|---------------|----------|---------|
| | content | analysed | |
| 1 | 8,000 | 9,286 | + 16 |
| 2 | 6,000 | 5,501 | - 8 |
| 3 | 4,000 | 4,118 | + 3 |
| 4 | 2,000 | 2,472 | + 24 |
| 5 | 1,000 | 1,081 | + 8 |

Table 12 Effect of volume of standard uranium-thorium solution to the determination of uranium and thorium by delayed neutron counting method

| Sample | Content | | Solution 0.5 cm ³ | | Solution 1 cm ³ | |
|--------|------------|-------------|------------------------------|-------------|----------------------------|-------------|
| | U (ppm) | Th (ppm) | U (ppm) | Th (ppm) | U (ppm) | Th (ppm) |
| 1 | 1,000 | 6,000 | 1,302 | 6,291 | 1,200 | 7,086 |
| 2 | 2,000 | 4,000 | 2,518 | 3,932 | 2,413 | 4,592 |
| 3 | 1,000 | 4,000 | 1,590 | 3,534 | 1,334 | 4,711 |
| 4 | 1,000 | 2,000 | 1,244 | 1,864 | 1,250 | 2,065 |
| 5 | 500 | 2,000 | 541 | 2,051 | 573 | 2,550 |
| 6 | 250 | 2,000 | 307 | 2,479 | 279 | 2,458 |

Table 13 Comparison of delayed neutron counting method for the determination of uranium and thorium in aqueous and organic phase.

| Sample | uranium (ppm) | | thorium (ppm) | |
|-------------------|---------------|-----|---------------|------|
| | delayed | NAA | delayed | NAA |
| AX ₀ | 535 | 173 | 3.01 | 3.13 |
| AX _{0.0} | 388 | 181 | 3.59 | 5.32 |
| AX ₁ | 34 | 6 | 0.73 | 0.95 |
| AX ₂₋₂ | - | 8 | 1.29 | 0.97 |
| OX ₁ | 445 | 196 | 1.86 | 2.12 |
| OX ₂₋₂ | 19.8 | 17 | 0.51 | 0.51 |
| OX ₂₋₄ | 25.1 | 14 | 0.83 | 0.86 |
| OX ₂₋₆ | 38.9 | 13 | 0.90 | 0.95 |

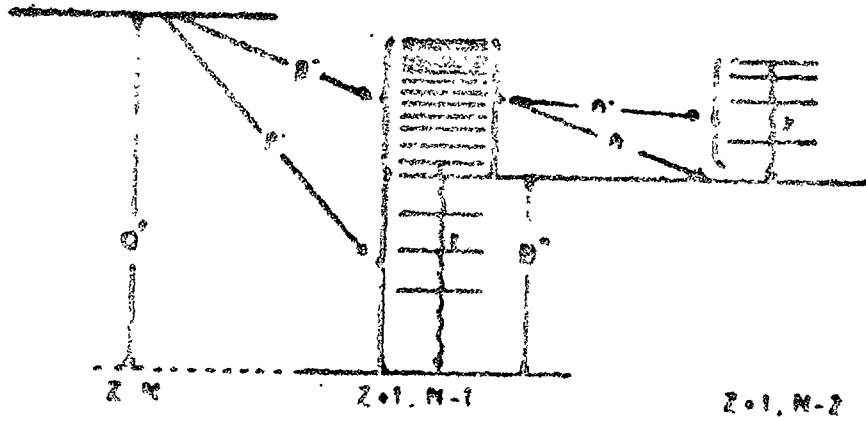


Fig.1 Schematic representation of delayed neutron emission

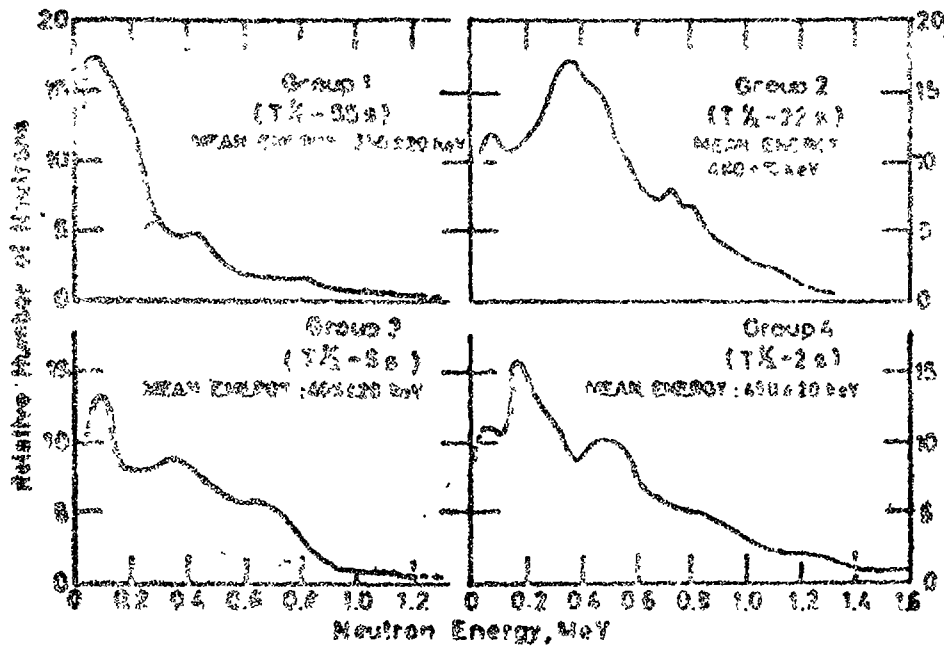


Fig.2 Delayed neutron spectra from fission products ;

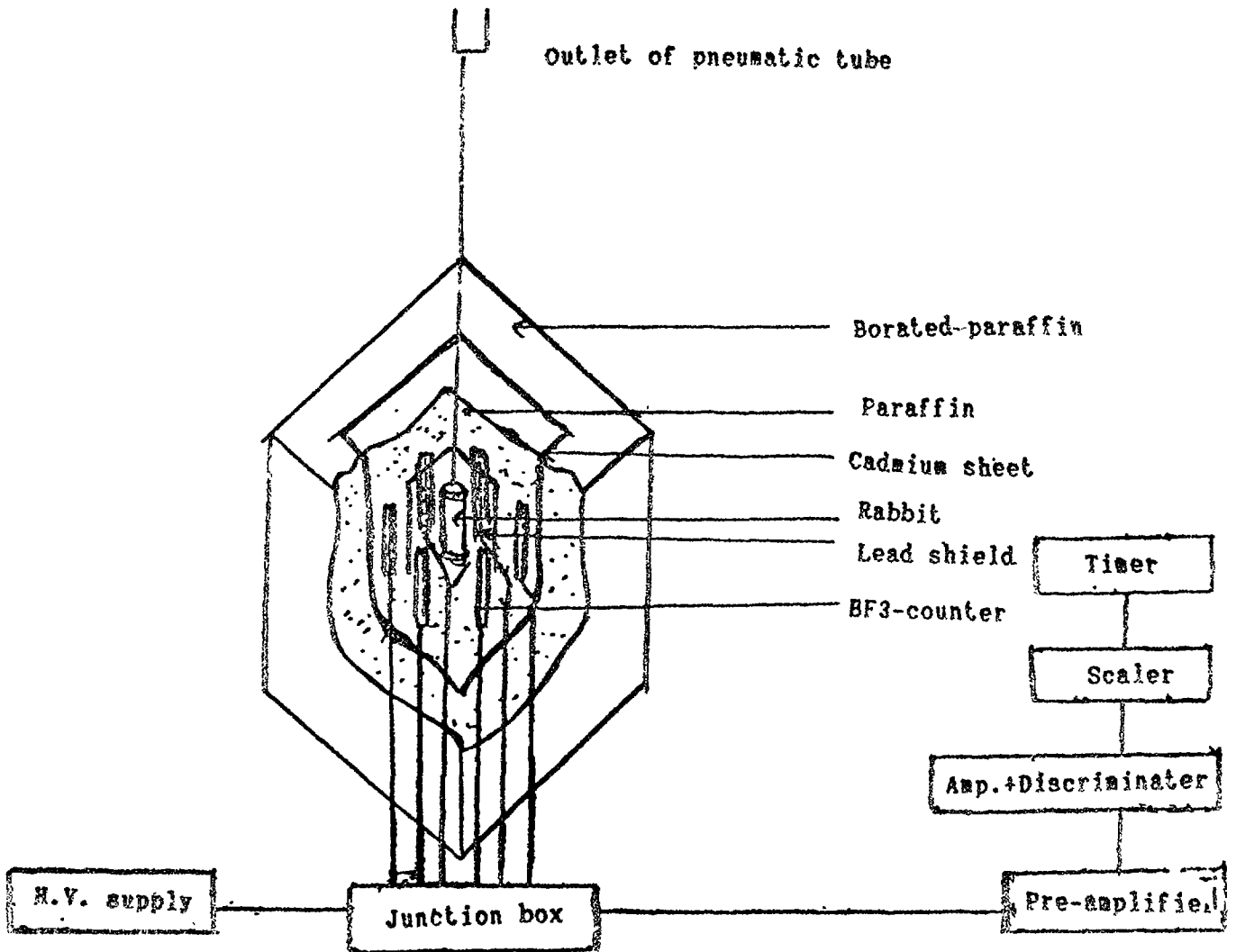


Fig.3 Delayed neutron detector and associated electronics

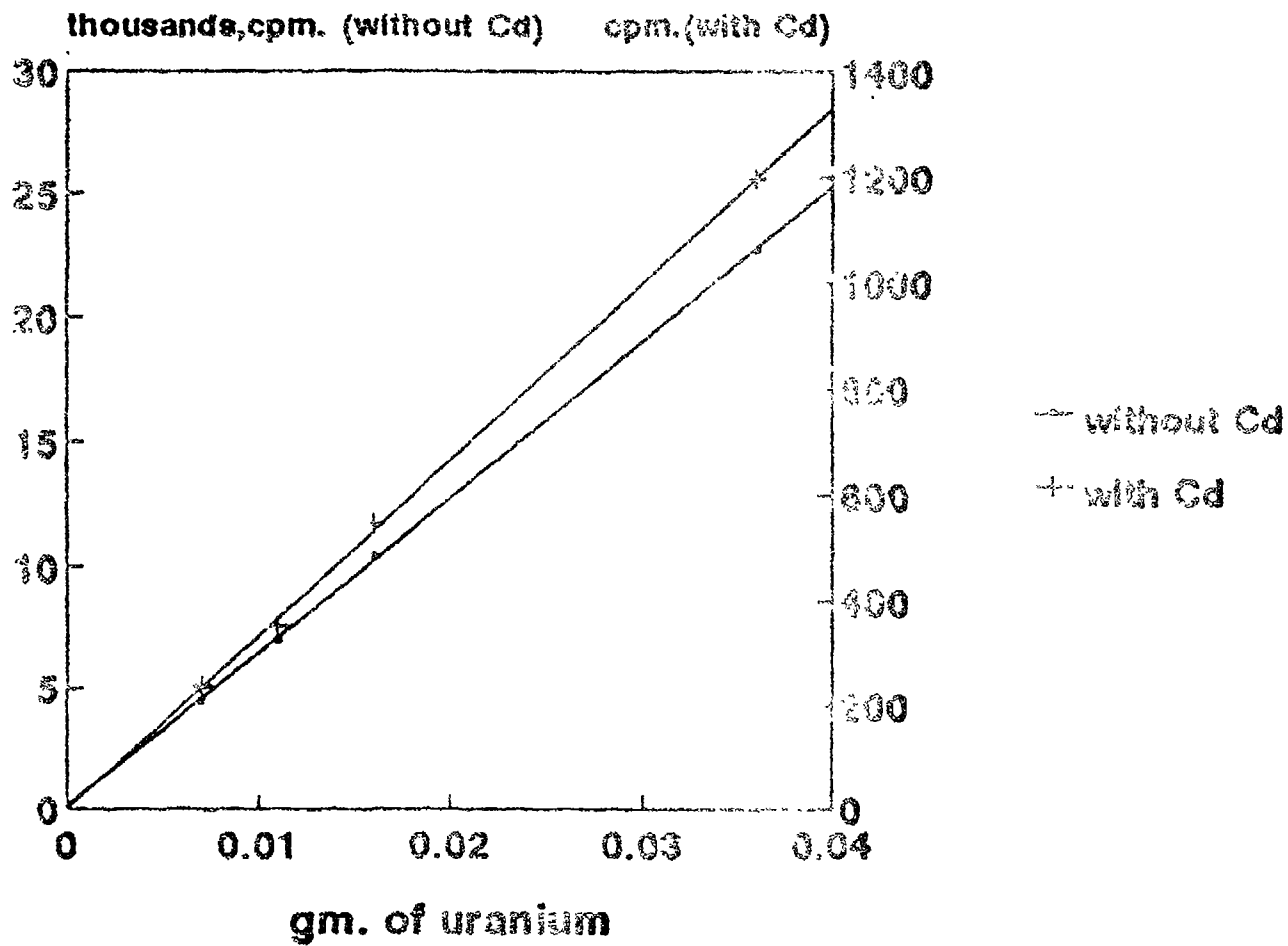
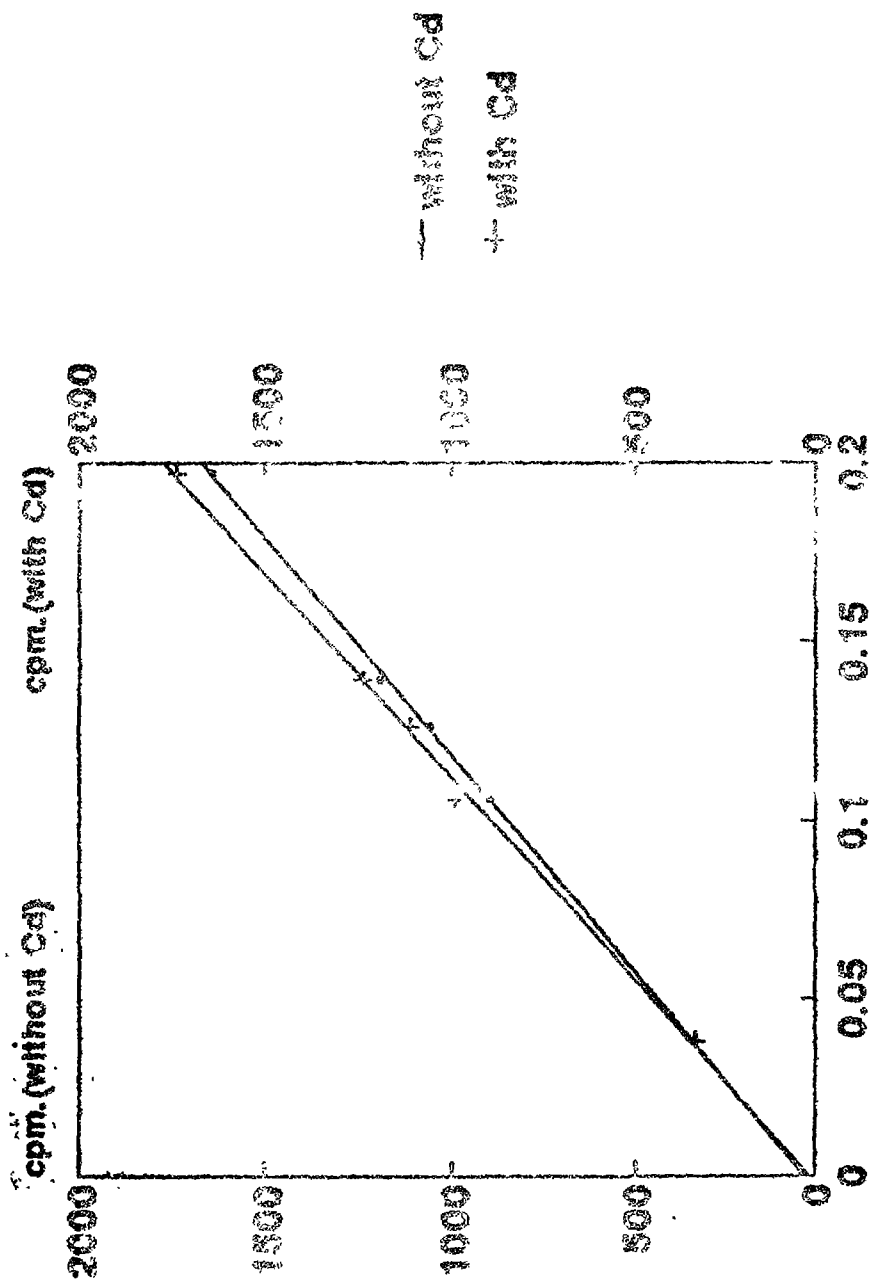


Fig.4 Calibration curve of uranium



gm. of thallium
Fig.5 Calibration curve of thallium