



Kiterjedt közegek analitikai vizsgálata neutronokkal

Doktori (PhD) értekezés tézisei

Király Beáta

**Debreceni Egyetem
Természettudományi Kar
Debrecen, 2003**

Bevezetés

Az értekezés azon munka összefoglalása, melyet 1999 februárjában még egyetemi hallgatóként kezdtem, 1999 szeptembere és 2002 augusztusa között mint PhD ösztöndíjas, 2002 szeptembere és 2003 júniusa között mint predoktor végeztem a Debreceni Egyetem Kísérleti Fizikai Tanszékén prof. dr. Csikai Gyula irányítása alatt.

Az értekezés témája a kiterjedt közegek neutronokkal történő analitikai vizsgálata. Tartalmazza a neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet és a fluxusperturbációs tényező mérésében elért eredményeket, valamint a grafit és a hidrogénes moderátorok aktivációs analízisben való felhasználásának összehasonlítását. (Kiterjedt közegek hidrogéntartalmának meghatározására – annak tudományos és gyakorlati jelentősége miatt – a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség egy nemzetközileg koordinált programot indított 1997-ben. *)

A méréseket a Debreceni Egyetem Kísérleti Fizikai Tanszékén végeztük, kivéve a grafitmáglyában történt besugárzásokat és az abszolút aktivitás mérését, melyeket japán együttműködésben a High Energy Accelerator Organization (KEK), Radiation Science Center intézetében Tsukubában (Japán) végeztünk T. Sanamival és T. Michikawával közösen.

Kutatásainkat az Országos Tudományos Kutatási Alapprogramok (OTKA T037190) és a Nemzetközi Atomenergia Ügynökség (International Atomic Energy Agency, Vienna, 10886/R0 és 9645/R0) támogatták.

1. A neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet

Előzmények

A neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet (σ_β) fogalmát Csikai és Buczkó vezették be 1999-ben [1] minták visszaszórási tulajdonságának mikroszkopikus jellemzésére. Előzménye az Amaldi és Fermi által 1936-ban bevezetett albedó (β) fogalma [2], mely a neutronvisszaszórást makroszkopikus értelemben jellemzi.

A neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet nem független a geometriától, a szóróközeg elemi összetételén kívül függ a mérés elrendezésétől is (1. ábra). Jelölje I az időegységenkénti beütésszámot minta jelenlétében, I_0 pedig üres mintatartóval. Ekkor az $R = (I - I_0)/I_0$ mennyiségre a következőt írhatjuk:

$$R = C \frac{n\sigma_\beta}{S} = CNd\sigma_\beta, \quad (1)$$

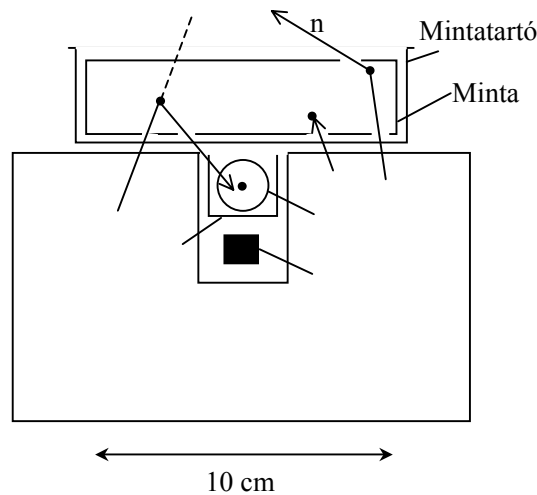
* Bulk hydrogen analysis, using neutrons, IAEA/PS/RCM97-1, Vienna, 1997

ahol $C = 10^{-24}$ cm²/barn arányossági tényező, n a minta összes atomjainak száma, σ_β (barn) a neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet, S (cm²) a minta detektor felé néző felülete, N (atom/cm³) a minta egységnyi térfogatában levő atomok száma, d (cm) a minta vastagsága. A σ_β mérésekor ügyelni kell a minta vastagságának megválasztásánál, különösen nagy abszorpciós hatáskeresztmetszetű elemek (Cl, Co, Ag, Hg) továbbá néhány fém (Zn, Fe, Cu) és vegyületeik esetén, mert σ_β csak bizonyos mintavastagságig (~1 cm) állandó. A molekulára vonatkozó reflexiós hatáskeresztmetszet:

$$\sigma_{\beta mol} = \sum_i n_i \sigma_{\beta i} \quad (2)$$

ahol n_i és $\sigma_{\beta i}$ a molekula i típusú atomjainak száma és reflexiós hatáskeresztmetszete.

A különböző elemek neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszete állandó arányú része a megfelelő (Maxwell-eloszlású neutronokra átlagolt) rugalmas szórási hatáskeresztmetszetnek. A mérések szerint [6] az 1. ábrán látható elrendezésben ez az arány: $\sigma_\beta / \sigma_{EL} = 0,59$.



A Buczkó és mások által 1975-ben [7] kifejlesztett módszer szerint az

$$\eta = \frac{R}{\rho} = \frac{I - I_0}{\rho I_0} \quad (3)$$

mennyiségeket (ahol ρ a minta sűrűsége) a minták H hidrogéntartalmának ($m\%$) függvényében ábrázolva egyenest kapunk.

Eredmények

A neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet mérése
aktivációs fóliával

- BF_3 számláló helyett Cu aktivációs fólia felhasználásával határoztuk meg néhány elem és vegyület reflexiós hatáskeresztmetszetét, mivel így a mérés geometriája egyértelműbb. Jelölje A a fólia aktivitását a minta jelenlétében, A_0 pedig üres mintatartóval. Ekkor az $R = (A - A_0)/A_0$ mennyiségre igaz az (1) összefüggés.

- Ellenőriztük szénhidrogének (CH), CHO vegyületek és víz felhasználásával, hogy az $\eta - H(m\%)$ függvény valóban egyenes. Ennek és a (2)-nek felhasználásával hidrogénre: $\sigma_{\beta,H} = 34,4 \pm 1,2$ barn.

- Meghatároztuk szén, oxigén, alumínium és cink esetén a neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszeteket. Azt találtuk, hogy ezek (az eltérő geometria és detektoranyag miatt) kb. kétszer akkora, mint a BF_3 számlálóval kaptak.

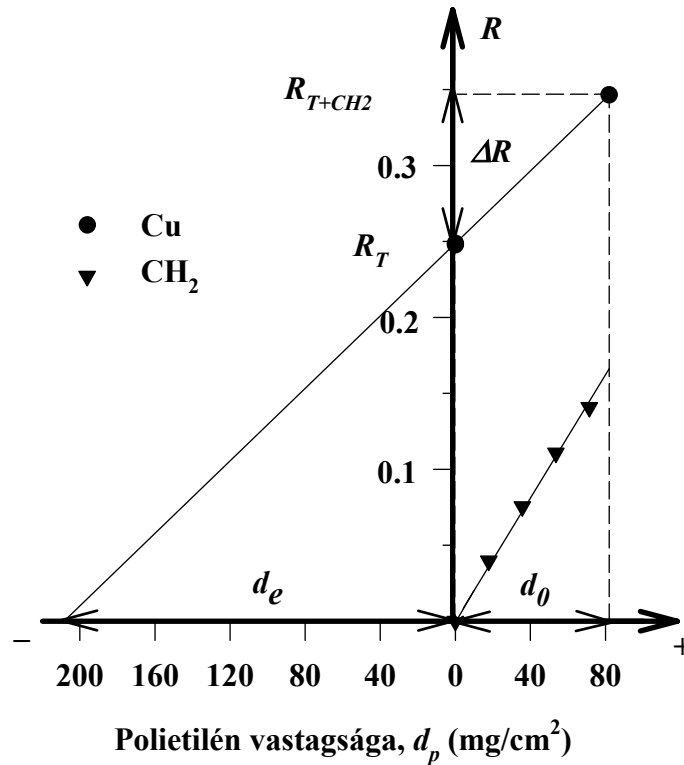
A neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszet mérése
 BF_3 számlálóval, relatív módszerrel

- Módszert dolgoztunk ki, mellyel lehetővé válik a reflexiós hatáskeresztmetszet relatív mérése. Referenciának tekintettük a CH_2 molekula neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszetét. A módszer alapja az a tapasztalatunk, hogy a mintában $\frac{1}{2} d$ pozícióban elhelyezett polietilén fóliaréteg (mely jól szimulálja az egyenletesen elosztott fóliát) vastagságának az R többlet beütés a vizsgált tartományban lineáris függvénye:

$$R = s d_p + R_T, \quad (4)$$

ahol s a meredekség, d_p a polietilén vastagsága, R_T a δ vastagságú tiszta mintától származó többlet beütés (2. ábra).

- Nevezzük a $d_e = |R_T/s|$ polietilénvastagságot ekvivalens vastagságnak. Az ekvivalens vastagság a polietilén fólia azon vastagsága, melynél a polietiléntől a minta jelenlétében származó többlet beütés ugyanannyi, mint az adott vastagságú tiszta mintától származó. Ez – az eltérő meredekség miatt – nem egyenlő a polietilén azon vastagságával, melyet tiszta polietilén méréssel kapnánk.



2. ábra Az ekvivalens vastagság fogalmához

- Az ekvivalens vastagság fogalmából levezethető a következő:

$$\sigma_{\beta,T} = \frac{\rho_{CH_2} d_e}{\rho_T \delta} \frac{M_T}{M_{CH_2}} \sigma_{\beta,CH_2}, \quad (5)$$

ahol $\sigma_{\beta,T}$ a minta anyagára vonatkozó reflexiós hatáskeresztmetszet, ρ_T a minta sűrűsége, M_T a moláris tömege, σ_{β,CH_2} , ρ_{CH_2} , M_{CH_2} a megfelelő mennyiségek polietilénre, δ a minta vastagsága, d_e az ekvivalens vastagság.

- Az ekvivalens vastagság meghatározásával és az (5) felhasználásával az adott mintát alkotó atomok vagy molekulák neutronvisszaszórási hatáskeresztmetszetét relatív módon határozhatjuk meg, a polietilénre kapott $\sigma_{\beta,CH_2} = 37,6 \pm 1,0$ barn értéket használva referenciaként.

- Meghatároztuk különböző elemek reflexiós hatáskeresztmetszetét a fent leírt relatív, néhány esetben pedig az abszolút [1] módszert alkalmazva. A σ_{β} -k és a Maxwell-eloszlású termikus neutronokra átlagolt σ_{EL} rugalmas szórési hatáskeresztmetszetek hányadosára a következőt kaptuk: $\sigma_{\beta}/\sigma_{EL} = 0,6 \pm 0,02$. Ezen arány és a σ_{β} ismeretében az adatkönyvtárakból hiányzó σ_{EL} megadható.

- A reflexiós hatáskeresztmetszetek ismeretében bármely X elemre vagy vegyületre mint referenciára vonatkozó $d_{e,X}$ ekvivalens vastagság kiszámítható a következő egyenlőség felhasználásával:

$$\rho_X d_{e,X} = \frac{M_X}{M_{CH_2}} \frac{\sigma_{\beta,CH_2}}{\sigma_{\beta,X}} \rho_{CH_2} d_{e,CH_2}, \quad (6)$$

melyből vízre $\rho_{H_2O} d_{e,H_2O} = 1,30 \cdot \rho_{CH_2} d_{e,CH_2}$,

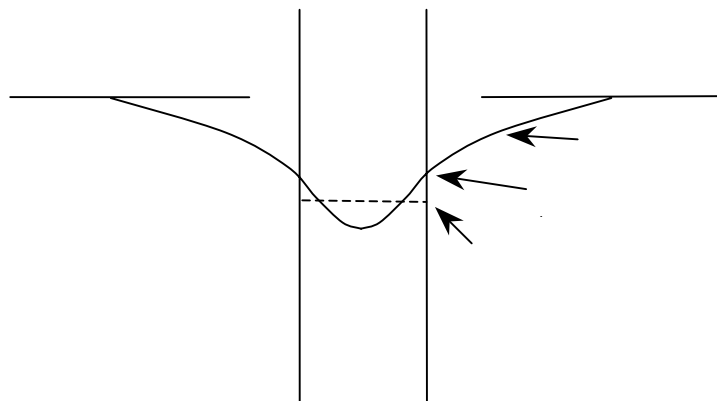
hidrogénre $\rho_H d_{e,H} = 0,16 \cdot \rho_{CH_2} d_{e,CH_2}$ következik.

- Ha például a δ vastagságú mintába vizet teszünk referencia anyagként ($X = H_2O$), akkor a (6) egyenlőség megadja a vízre és a már ismert, polietilénre vonatkozó ekvivalens vastagság közötti összefüggést. Ez főként akkor lehet hasznos, ha nem akarjuk, hogy a mintánk vízzel érintkezzen, mégis szükségünk lenne víztartalom meghatározásához a kalibrációs egyenes felvételére. A tiszta mintára vonatkozó többlet beütés (R_T) és a víznek mint referenciának ekvivalens vastagsága elegendő az egyenes meghatározásához (2. ábra).

2. Fluxuselozslás

Előzmények

A neutronok analitikai és egyéb célokra történő alkalmazásában gyakran elengedhetetlen, hogy egy moderátorban vagy kiterjedt mintában minél pontosabban ismerjük a neutronfluxus eloszlását. Ezt legegyszerűbben detektorfóliák alkalmazásával érhetjük el. Azonban a mérőeszköz megváltoztatja a mérendő mennyiséget, módosítja a mérés eredményét (3. ábra). Ezért szükséges bizonyos korrekciós faktorok bevezetése.



A fólia a környező anyagnál nagyobb befogási hatáskeresztmetszetének köszönhetően mintegy kiüríti közvetlen környezetét. A jelenség neve fluxusdepresszió, mennyiségileg a H fluxusdepressziós faktoriall jellemezhető:

$$H = \phi_s / \phi_0 , \quad (7)$$

ahol ϕ_s a neutronfluxus a fólia felületén, ϕ_0 a háborítatlan fluxus, mely a fólia távollétében jellemzi az adott helyet.

A fólián belül a külső rétegek kevesebb neutront engednek a belsőbb rétegekbe, a fólia mintegy árnyékot vet önmagára. A jelenség neve önárnyékolás, mennyiségileg a G önárnyékolási faktoriall jellemezhető:

$$G = \langle \phi \rangle / \phi_s , \quad (8)$$

ahol $\langle \phi \rangle$ a fólián belüli átlagos fluxus:

$$\langle \phi \rangle = \frac{1}{d} \int_0^d \phi(x) dx , \quad (9)$$

d a fólia vastagsága, $\phi(x)$ a fluxuselozlás a fólián belül.

A teljes fluxusváltozást az F fluxusperturbációs faktor jellemzi:

$$F = \langle \phi \rangle / \phi_0 , \quad (10)$$

mely előáll a G önárnyékolási és a H fluxusdepressziós tényező szorzataként:

$$F = G \cdot H . \quad (11)$$

Mivel kiterjedt minták esetén a minta helyén a zavartalan fluxus hely szerint nem állandó, ezeknél (7) és (10) kifejezésében $\langle \phi_0 \rangle$ értendő ϕ_0 helyett.

Judd [12] szerint a rezonancia neutronok tartományában $H = 1$, amennyiben a rezonanciák keskenyek és elegendően távol vannak egymástól.

Az önárnyékolás és a fluxusdepresszió tényezőinek számításal történő meghatározása nem egyszerű feladat, de nem lehetetlen, ha a formulákban szereplő paraméterek ismertek. Olykor viszont (főként aktivációs analízisnél) a minta összetétele ismeretlen (hiszen éppen ezt akarjuk meghatározni).

Buczko és Borbély 1978-ban módszert dolgoztak ki az átlagos termikus neutronfluxus meghatározására abszorbeáló mintákban [18] vékony mérőfóliák segítségével. Eredményük szerint a termikus neutronfluxus elozlását a

$$\phi(x) = (ax^2 + bx + c)^{-1} \quad (12)$$

görbével írhatjuk le, ahol x a minta felületétől mért távolság, a , b , c illesztési paraméterek.

Khalil [20] szerint az epitermikus neutronfluxus eloszlását a

$$\phi(x) = (a_4x^4 + a_3x^3 + a_2x^2 + a_1x + a_0)^{-1} \quad (13)$$

függvény írja le, ahol a_i ($i = 0, 1, 2, 3, 4$) illesztési paraméter.

Eredmények

- Meghatároztuk az általunk használt, henger alakú Pu-Be forrás aktív közepének helyét. Méréseink szerint ez 1,5 mm-rel van a geometriai közepe alatt.

Az F , G és H tényezők vékony mintákban

- Meghatároztuk a neutronfluxus eloszlását és az F , G , H tényezőket vékony indium és arany fóliakötegekre termikus és epitermikus neutronok esetén, bonamid és grafit moderátorban.

- Méréseinkben $H \neq 1$ az epitermikus neutronokra. Ennek oka, hogy az indium és arany abszorpciós gerjesztési függvényeire az epitermikus tartományban nem teljesülnek a Judd cikkéből [12] idézett feltételek.

- Méréseink szerint az F , G , H tényezők a kötegvastagság függvényében termikus neutronok esetén a következőképpen adhatók meg:

$$F(d) = F_0 e^{-fd}, \quad (14)$$

$$G(d) = G_0 e^{-gd}, \quad (15)$$

$$H(d) = H_0 e^{-hd}, \quad (16)$$

ahol F_0 , G_0 , H_0 ($=1$) a $d = 0$ vastagsághoz tartozó értékek, f , g , h illesztési paraméterek.

- Epitermikus neutronokra csak a H fluxusdepresszió esetén érvényes az exponenciális összefüggés (16).

Az F , G és H tényezők kiterjedt mintákban

- Meghatároztuk a neutronfluxus eloszlását és az F , G , H tényezőket kiterjedt grafit, bonamid $[(\text{CH}_2)_5\text{CONH}]$, PVC ($\text{C}_2\text{H}_3\text{Cl}$), plexiüveg ($\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_2$), vas és alumínium mintákban, bonamid és grafit moderátorban In, Au és Dy mérőfóliák segítségével.

- A mérési pontok illesztésekor számos esetben a (12) függvény nem írta le jól a fluxuseloszlást. Ez csak a hidrogént tartalmazó minták (bonamid, PVC, plexiüveg) esetén fordult elő, amikor a szélektől a minta közepe felé haladva a változás jelentős volt (1,3 – 4,4-szeres). Ekkor egyszerű másodfokú függvénnyel illesztettünk.

A termikus és epitermikus neutronok aránya

- Meghatároztuk bonamid, PVC és plexiüveg minták esetén a termikus és epitermikus neutronfluxusok arányát In mérőfóliák segítségével.

- Az átlagos termikus és epitermikus fluxusok aránya bonamid mintában 6,5, plexiüvegben 7,0, PVC-ben csak 2,7, mert a PVC-ben lévő Cl elnyeli a termikus neutronokat.

A moderátorok összehasonlítása

- A grafitmáglya ($250 \times 190 \times 190 \text{ cm}^3$) és a henger alakú bonamid tömb (átmérője 30 cm, magassága 30 cm) moderátorként való felhasználásának előnyeit és hátrányait tekintjük át.

- Grafit moderátorban a termikus neutronfluxus kevésbé változik a forrástól mért távolság függvényében, mint hidrogéntartalmú moderátorban. Ezek alapján kiterjedt minták elemzésére célszerűbb grafit moderátort alkalmazni, ahol a forrástól 10 cm távolságban mért termikus neutronfluxus csak 6%-kal tér el a 20 cm távolságban mért értéktől, míg víz moderátorban ugyanezen a távolságon a fluxus 1/13 részére csökken.

- Ugyanakkor grafit moderátorban az F fluxusperturbáció értékei PVC, vas és alumínium mintában mind Al, mind Cd mintatartóban közelebb vannak az 1-hez, mint bonamid moderátorban.

- Vékony minták esetén a termikus neutronokra vonatkozó F fluxusperturbáció a kötegvastagság függvényében sokkal kevésbé változik bonamid moderátorban, mint grafit moderátorban.

- A termikus és epitermikus neutronok aránya bonamid moderátorban nagy, azaz az epitermikus neutronok száma a termikusakéhoz képest kicsi, így aktivációs analízis céljára epitermikus neutronokat használni nem célszerű.

- Mindezek alapján azt a következtetést vonhatjuk le, hogy aktivációs analízist termikus neutronokkal célszerű végezni, vékony mintákat hidrogénes, kiterjedt mintákat grafit moderátorban besugározva.

Irodalomjegyzék / References

- [1] J. Csikai, Cs. M. Buczkó: The concept of the reflection cross section of thermal neutrons, *Applied Radiation and Isotopes*, 50, 1999, pp. 487-490
- [2] E. Amaldi, E. Fermi: On the absorption and the diffusion of slow neutrons, *Physical Review*, 50, 1936, pp. 899-928
- [3] Csikai Gyula, Daróczy Sándor: Termikus neutronok albedójának vizsgálata, *Magyar Fizikai Folyóirat*, VII. kötet, 1959, 507-516. oldal
- [4] Julius Csikai: Handbook of fast neutron generators, Volume 1, CRC Press Inc, Boca Raton, Florida, 1987, pp. 173-174
- [5] JEF Report 14, Table of simple integral neutron cross section data from JEF-2.2, ENDF/B-VI, JENDL-3.2, BROND-2 and CENDL-2, NEA OECD, France, 1994
- [6] J. Csikai: Bulk media assay using backscattered neutron spectrometry, *Proceedings of the 14th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses*, S. Sasaki and T. Shibata editors, Tsukuba, Japan, 1-3 February, 2000, pp. 236-246
- [7] M. Buczkó, Z. Dezső, J. Csikai: Determination of the bitumen content in asphalt concrete using a neutron reflection method, *Journal of Radioanalytical Chemistry*, 25, 1975, pp. 179-183
- [8] S. M. Al-Jobori, S. Szegedi, Cs. M. Buczkó: Determination of hydrogen content in crude oil by the neutron reflection method, *Radiochemical and Radioanalytical Letters* 33 (3), 1978, pp. 133-138
- [9] A. Sola: Flux perturbation by detector foils, *Nucleonics* 18 (3), 1960, pp. 78-81, 141
- [10] Neutron fluence measurements, Technical reports series No. 107, J. Motteff editor, IAEA, Vienna, 1970, pp. 54-58, 106-111, 126-132
- [11] M. W. Thompson: Some effects of the self-absorption of β -rays and neutrons in neutron detecting foils, AERE-RP/R 1549
- [12] A. M. Judd: Neutron flux measurements by resonance activation of foils, *Nuclear Instruments and Methods*, 23, 1963, pp. 29-35

- [13] W. Bothe: Zur Methodik der Neutronensonden, Zeitschrift für Physik, 120, 1943, pp. 437-449
- [14] C. W. Tittle: Slow-neutron detection by foils I-II, Nucleonics, 8 (6), 1951, pp 5-9 and 9 (1), 1951, pp. 61-67
- [15] K. M. Case, F. de Hoffmann, G. Placzek: Introduction to the theory of neutron diffusion, Los Alamos Scientific Laboratory, U. S. Government Printing Office, Washington, D. C. 1953, p. 153
- [16] E. Martinho, I. F. Gonçalves, J. Salgado: Universal curve of epithermal neutron resonance self-shielding factors in foils, wires and spheres, Applied Radiation and Isotopes, 58, 2003, pp. 371-375
- [17] Szabó E., Simonits A.: Aktivációs analízis, Műszaki Könyvkiadó, Budapest, 1973, 114-117. oldal
- [18] Cs. M. Buczkó, A. Borbély: A simple method for the determination of the average neutron flux for absorbing samples, Journal of Radioanalytical Chemistry, 42, 1978, pp. 393-398
- [19] Julius Csikai: Handbook of fast neutron generators, Volume 1, CRC Press Inc, Boca Raton, Florida, 1987, pp. 137-142
- [20] G. I. Khalil: Determination of U, Th, Au, Mn and Na in geological samples by nuclear methods, Thesis for candidate degree, Debrecen, 1985, pp. 69-72
- [21] Cs. M. Buczkó, M. H. Al-Mundheri, J. Csikai, Z. Dezső: ^{252}Cf neutron irradiation facilities, Nuclear Instruments and Methods, 134, 1976, pp. 101-105
- [22] J. Csikai, B. Király, T. Sanami, T. Michikawa: Studies on thermal neutron perturbation factor needed for bulk sample activation analysis, Nuclear Instruments and Methods A, 488, 2002, pp. 634-641
- [23] E. Browne, R. B. Firestone: Table of Radioactive Isotopes, V. S. Shirley editor, John Wiley and Sons Inc., New York, 1986

Függelék / Appendix

Az értekezés témakörében megjelent publikációk / Publications concerning the dissertation

1. **B. Király**, J. Csikai: Investigations on thermal neutron reflection by activation method, *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 2000, pp. 93-96
2. J. Csikai, **B. Király**, Cs. M. Buczkó: Targets for bulk hydrogen analysis using thermal neutrons, 20th World Conference of the INTDS, Targets for Particle Beams: Preparation and Use, October 2-6, 2000, Antwerp, Belgium, Lecture, Abstracts: paper 33, *Nuclear Instruments and Methods A*, 480, 2002, pp. 166-170
3. **B. Király**, J. Csikai, R. Dóczi: Validation of neutron data libraries by differential and integral cross sections, 2000 Symposium on Nuclear Data, November 16-17, 2000, JAERI Tokai, Japan, Abstracts: Poster session P31, Proceedings (JAERI-Conf 2001-006, INDC(JPN)-188/4) pp. 283-288
4. J. Csikai, **B. Király**, T. Sanami, T. Michikawa: Studies on thermal neutron perturbation factor needed for bulk sample activation analysis, *Nuclear Instruments and Methods A*, 488, 2002, pp. 634-641
5. **B. Király**, T. Sanami, R. Dóczi, J. Csikai: Detection of explosives and illicit drugs using neutrons, 5th International Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurement Applications (IRRMA-V), 9-14 June 2002, Bologna, Italy, Lecture, Abstract Book p. 24, accepted for publication in the proceedings (NIM B)
6. **B. Király**, T. Sanami, J. Csikai: Advantages and limitations of thermal and epithermal neutron activation analysis of bulk samples, *Applied Radiation and Isotopes*, 58, 2003, pp. 691-695

Hivatkozások / Citations

- H. R. Vega-Carrillo, C. Torres-Muhech: Low energy neutrons from a (PuBE)-Pu-239 isotopic neutron source inserted in moderating media, *Revista Mexicana de Fisica*, 48, 2002, pp. 405-412
- D. K. Mohapatra, C. P. Reddy: Use of neutron reflection method to assay nuclear materials in solutions, *Applied Radiation and Isotopes*, 55, 2001, pp. 693-696