Egyetemi doktori (PhD) értekezés tézisei Abstract of PhD Thesis

A NEUTRONREFLEXIÓ FELHASZNÁLÁSA TILTOTT ANYAGOK KIMUTATÁSÁRA

NEUTRON REFLECTION METHODS IN THE DETERMINATION OF ILLICIT MATERIALS

Papp Attila

Témavezető/Supervisor: Dr. Csikai Gyula



DEBRECENI EGYETEM Fizikai Tudományok Doktori Iskolája

UNIVERSITY OF DEBRECEN PhD School in Physics

Debrecen, 2016.

1. Bevezetés

A neutronok felfedezése óta a neutronfizika fontos szerepet játszik a magfizikai kutatásokban és a nukleáris technológiában. Ennek oka az, hogy a neutronok tulajdonságai a többi részecske jellemzőitől igen eltérőek, ill. az, hogy neutronsugárzást viszonylag könnyen elő tudunk állítani, majd vizsgálatokhoz felhasználni. Ezen két ok miatt a neutronfizika módszereit és eredményeit hatásosan fel tudjuk használni a kémiai analitikában.

A dolgozatban bemutattam a neutronok jellemzőit, a velük kapcsolatos magreakciókat, detektálási- és vizsgálati módszereket, különös tekintettel az általunk is használt neutronreflexiós, ill. aktivációs eljárásra. Bemutattam az ETNA, ill. a BITATRON mérési elrendezéseket, amelyek használatával, ill. a két geometria kombinálásával végeztük a kísérleteket.

A méréseink célja az volt, hogy nagy térfogatú mintában elrejtett szerves anyagot (pl. robbanóanyagokat és kábítószereket) ki tudjunk mutatni neutronfizikai módszerek segítségével. Ez különösen fontos, mivel még ma is problémákat okoznak a talajban maradt taposóaknák és az egész világot behálózó kábítószer-kereskedelem. Ráadásul a kimutatandó illegális anyagok igen kis mennyiségben tartalmaznak fémeket, ezért a hagyományosan használt detektorok egyre kevésbé használhatók. A szerves anyagok hidrogén tartalma azonban könnyen vizsgálható neutronok segítségével. A nagy térfogatú és tömegű minták hidrogén tartalmának meghatározására az ENSZ Nemzetközi Atomenergia Ügynökség (NAŬ) koordinálásával és támogatásával már két évtizede folynak kísérletek nemzetközi együttműködésekben, amelyekben debreceni kutatók is részt vettek.

2. Módszerek és eredmények

A kísérleteink során feladatom volt a DE Kísérleti Fizika Tanszékén található BITATRON és ETNA mérési elrendezésekkel történő vizsgálat, ill. továbbfejlesztésük, azaz a neutronreflexiós módszer kiegészítése az aktivációssal. A neutronok alkalmazását az indokolta, hogy kedvezőbben használhatók a fémdetektorokkal szemben szerves anyagok kimutatására, azok nagy hidrogéntartama miatt. Az aktivációs módszer lehetővé tette a termikus- és az epitermikus neutronok fluxus-eloszlásának helyszerinti pontos meghatározását is. A méréseink során a reflektált neutronokat BF₃ detektorokkal mértük és az R=(I-I₀)/I₀ relatív értéket határoztuk meg, ahol I₀ a minta nélkül, I pedig a mintával mért beütésszámokat jelenti. Az R értékekből számoltuk ki ezután a mintákra jellemző hatáskeresztmetszeteket, ill. következtettünk az R(z) és $\sigma_{\beta}(z)$ függvényekre is.

<u>2.1. Mérések az ETNA mérési összeállítással</u>: Az ETNA elrendezés egy 18,5GBq aktivitású Pu-Be forráson és két henger alakú, ~ 80 cm³ érzékeny térfogatú BF₃ számlálón alapul.

Az első kísérletsorozatban a neutronfluxus eloszlását vizsgáltuk, oly módon, hogy henger alakú, Al mintatartókba helyezett homokmintákat használtunk reflektorként, amelyek közül az egyiket elhelvezett polietilénnel különböző pozíciókba (PE) teli mintatartóval cseréltünk ki. А PE mintát а számlálók hossztengelyével párhuzamosan, arra merőlegesen és átlós irányban mozgattuk a moderátor szabad, ill. kadmiummal borított felszínén.

Eredmények: az R, a PE-nel telt mintatartó és a rendszer szimmetriatengelye közötti távolság függvényeként, 0,46, ill. 0,13 értékű maximumot adott a Cd lemez használatával, ill. nélküle. Az üres moderátorfelszínen történt fluxuseloszlás-méréseknél az eloszláshoz tartozó FWHM értékét nem befolyásolta a Cd lemez jelenléte, reflektor használatával azonban igen.

A második kísérletsorozatban megmértük újra az üres moderátorfelszínen a fluxuseloszlást, de a számlálókat beborítottuk Cd lemezzel. Megvizsgáltuk homok, ill. PE töltésű mintatartók, mint reflektorok hatását. A DLM2 (dummy landmine) mintát papír, ill. ruhaanyag közé rejtettük el különböző mélységben. A DLM2 mintához hasonló mennyiségű hidrogént tartalmazó mintákat is vizsgáltunk: PE, ammónium-nitrát és melamin alkalmazásával. Mértük az R értékét úgy is, hogy az Al dobozt adott magasságig megtöltve homokkal, a DLM2 mintát különböző mélységben rejtettük el benne.

Eredmények: a neutronok fluxuseloszlása függ a minta és a detektorok egymáshoz viszonyított távolságától és a moderátort befedő Cd lemez jelenlététől. Az R maximumát a rendszer geometriai középpontjában éri el 0.64, ill. 0.17 értékekkel Cd borítás, ill. annak hiánya esetén. A szabad moderátorfelszínen végzett fluxuseloszlás-mérés során kapott FWHM értéke ~12cm volt Cd lap nélkül és használatával is. Ellenben reflektort is alkalmazva ~12cm, ill. ~16cm értéket kaptunk a Cd lemez használata nélkül, ill. DLM2 és PE reflektorokat használatával. használva а fluxuseloszlásokhoz tartozó FWHM értékekre ~8 cm adódott, amely jóval alacsonyabb, mint a szabad felszínhez tartozó hasonló adat.

Az R, mint a DLM2 minta és a detektor távolságának függvénye, azt mutatja, hogy a DLM2 kimutathatósági mélységének maximuma ~8cm. Méréseket végeztünk DLM2 nélküli homok reflektorral is és megállapítottuk: ha a detektor és a minta közötti homokréteg vastagsága több, mint 8-10cm, akkor a DLM2 hatását már nem tudjuk elkülöníteni a háttértől. Az összehasonlíthatóság érdekében más anyagokat is használtunk reflektorként és ~8cm-es vastagságnál minden esetben elértük az R telítési értékét.

Az ETNA és a BITATRON mérőrendszerekkel kapott, 8cm-es mintavastagságra vonatkozó R értékek összehasonlítása szerint az ETNA módszerrel, Cd lap használata mellett, hidrogén tartalmú minták esetén, a relatív beütésszámok telítési értékei egy kettes faktorral nagyobbak lesznek, mint BITATRON alkalmazásával. Az R értékeire 1,2, 0,8, ill. 0,7 értéket kaptunk az ETNA-val való kísérlet során, amikor PE-t, melamint, ill. ammónium-nitrátot rejtő, 1,2kg tömegű papírreflektort vizsgáltunk. A papír helyett 0,55kg textilanyagot használva pedig ugyanezen adatokra 1, 0,4, ill. 0,5 értékeket nyertünk. A plasztik robbanószerek kimutatása ilyen körülmények között nehéz, amit az a tény is bonyolít, hogy a különféle papírok és ruhaanyagok kémiai összetétele nem azonos.

A reflektor és a moderátor érintkezési felületén mérhető fluxus eloszlás ismerete szükséges a "hand-held" neutron detektor méretének megbecsléséhez. Fontos megemlíteni, hogy a Cd lap jelenléte nemcsak az FWHM értékét befolyásolja, hanem a jel-zaj hányadost is, így növelhető a mérőeszköz érzékeny térfogatának mérete. Így az ETNA geometria (lásd a dolgozat 3.1.1. ábráját) ajánlható a "hand-held" detektor felépítésének.

2.2. Összehasonlító mérések az ETNA és a BITATRON mérési összeállításokkal: A BITATRON elrendezés egy 18,5GBq aktivitású Pu-Be forráson és egy kisméretű, henger alakú BF₃ számlálón alapul. Az aktivációs fóliákkal elvégzett mérések során egy 185GBq aktivitású Pu-Be forrást, egy végablakos GM számlálót és ~0,1mm vastagságú, ill. ~1,9cm átmérőjű In, ill. Au fóliákat alkalmaztunk.

Az első mérési sorozatban a tiltott anyagok vizsgálatához szükséges alapvető reflektoranyagokat vizsgáltuk meg reflexiós és aktivációs módszerrel, ill. megállapítottuk az R(z) és a $\sigma_{\beta}(z)$ függvényeket (ahol z a reflektorvastagságot jelöli).

Eredmények: a kétféle mérési módszernél az R értékek jelentősen eltértek egymástól. Az R(z) függvények alakját az exponenciális eloszlás eloszlás-függvényével írtuk le. Vagyis R(z) = R₀[1-exp(- $\Sigma_{\beta}z$)] alakban. Meg kell említeni, hogy a kapott eredmények nem egzaktak, értékük függ a reflektorok kémiai összetételétől és a mérési geometriától.

A második kísérletsorozatban a mérési körülményeken nem változtattunk, de kiszélesítettük a megvizsgált minták körét. Célunk volt az R(z) függvények meghatározása és a mérési eredményekből a σ_{β} mikroszkopikus hatáskeresztmetszetek kiszámolása. Megadtuk a C, O, H és N atomokra vonatkozó σ_{β} értékeket, majd az addíciós formula segítségével a molekulákra vonatkoztatott $\sigma_{\beta mol}$ hatáskeresztmetszet adatokat. Megmértük a bonamid moderátor szabad felszínén Dy és In aktivációs fóliákkal a síkbeli fluxus-eloszlást is.

Eredmények: az eloszlásfüggvénnyel jól közelíthetők BITATRON, ill. az aktivációs módszer esetén is a kísérleti adatok. Az R₀ értékek összehasonlítása azt mutatja, hogy a termikus, ill. rezonancia neutronok esetén az eredmények még ugyanazon reflektor esetén is eltérnek. A kapott $\sigma_{\beta mol}$ értékek eltérőek, ha a drogokat összehasonlítjuk a robbanó-, ill. fedőanyagokkal. Megjegyzés: a robbanóanyagok nitrogént tartalmaznak, így a robbanószerek kimutatásához a nitrogénre vonatkozó termikus szórási hatáskeresztmetszet pontos meghatározása szükséges.

2.3. A BITATRON mérési összeállítással végzett további vizsgálatok: A BITATRON mérési geometriával végeztünk újabb méréseket, azon célból, hogy a $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ értékek

vastagság függését meghatározzuk és megadjuk a függvények kapcsolatát a mért R(z) függvényekkel. A σ_{β} adatok ismeretében kiszámoltuk a $\sigma_{\beta mol}$ értékeket is.

Az első mérési sorozatban NH₄NO₃ tartalmú műtrágyát vizsgáltunk, a nitrogénre vonatkozó adatok meghatározása miatt. Mértünk DLM2 mintával és megvizsgáltuk, hogy a különböző fedőanyagok (SiO₂, CH₂, zeolit) hogyan változtatják meg a kimutathatóságát. Az R, ill. σ_{β} értékeket lemértük, ill. kiszámoltuk különböző reflektoranyagokra, amelyek nagysága megegyezett a DLM2 méretével, ill. a tárolóedényével. Megmértük fedőanyagok, ill. ammónium-nitrát esetén az R(z) és a $\sigma_{\beta}(z)$ függvényeket. Az eredményeket az R, σ_{β} és Σ_{β} értékek segítségével jellemeztük. Az utóbbi két adat a kiterjedt minta egészére átlagolt értékek, amelyek kiszámításánál figyelembe vettük a reflektorban lévő részecskék számát.

Eredmények: a makroszkopikus (Σ_{β}) és mikroszkopikus (σ_{β}) hatáskeresztmetszeteknek a legnagyobb értékét a magányos DLM2 esetén mértük. A reflektált neutronok hozamában csökkenést tapasztaltunk a fedőanyagok hatására. A homokban elkevert NH₄NO₃ esetén a hidrogén tartalmú anvag tömegének növekedésével csak adott koncentrációig nő a beütésszám, majd telítésbe megy. A szeparált helyzetű SiO₂ és NH₄NO₃ esetén viszont a σ_{β} értékek a mintavastagság növekedésével. Az csökkennek NH₄NO₃ koncentrációját növelve (kevert minta esetén) a σ_{β} is nő, így a robbanóanyag kimutatásának valószínűsége növekszik. Ha a robbanóanyagot ~10cm-nél mélyebb rétegű talajba vagy hidrogén tartalmú anyagba reitik el, akkor már a róla érkező jeleket nem lehet elkülöníteni a környezet hatásától, mert a beütésszámok telítésbe mennek. Vagyis ennél mélyebbre elásott taposóaknát nem tudunk kimutatni ezzel a módszerrel. Az eredmények azt mutatják, hogy a robbanóanyagok kimutatásához együtt aiánlott használni а neutronreflexión alapuló- és a hagyományos fémdetektorokat.

A második kísérletsorozatban azt vizsgáltuk meg, hogy az R(z) függvények segítségével hogyan lehet meghatározni a $\sigma_{\beta mol}(z)$ és a $\Sigma_{\beta mol}(z)$ függvényeket különböző minták esetén. Ezekből az adatokból megadtuk a $\sigma_{\beta}(z)$ függvényeket az általunk vizsgált anyagokat alkotó C, H, O, N elemekre, amely értékekből már kiszámolható más molekulák esetén is a hatáskeresztmetszet.

Eredmények: a $\sigma_{B}(z)$ exponenciálisan csökken a z növelésével, a $\sigma_{\beta}(z) = \sigma_{\beta}(0) \exp(-kz)$ formula szerint. Ezzel az összefüggéssel számoltuk ki a referenciaként használt $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ értékeket és ezekből az adatokból az ismeretlen anyagokra vonatkozó $\sigma_{Bmol}(z)$ és R(z) függvényeket. A molekulákra vonatkozó értékeket egy egyszerű addíciós képlettel számoltuk ki: $\sigma_{\beta mol}(z) = \sum_{i} n_i \sigma_{\beta i}(z) = R/(CN_{mol}z)$. A mért és a számított R(z)függvények alapján azt kaptuk, hogy 0-10cm mintavastagság esetén a mért és a számított hozamok 10%-os hibahatáron belül megegyeznek egymással. Megjegyzés: a tiltott anyagok kimutatását befolyásolja az ezeket körülvevő fedőanyagok minősége és mennyisége is. Ezért hasznos kiegészíteni a reflexiós módszert a reflektált neutronok spektrumára vonatkozó "unfolding" eljárással. A módszer érzékenysége növelhető, abban az esetben is, ha a BITATRON és az ETNA mérési elrendezéseket kombináljuk.

Tehát mérési módszerünk a következő volt: Az első lépésben nagy tisztaságú anyagokra lemértük az R(z) függvényeket. Ezután más vegyületekre is meghatároztuk ezeket és az eredményekből kiszámoltuk az anyagokra jellemző $\sigma_{\beta}(z)$ függvényeket. A mérésekből az addíciós formula segítségével kiszámoltuk a C, H, O, N atomokra vonatkozó hatáskeresztmetszet értékeket. Ezen adatokból pedig meghatározhattuk az adott összegképletű, de általunk nem lemérhető molekulákra vonatkozó $\sigma_{\beta mol}(z)$ értékeket. Ez utóbbiakból pedig visszaszámolhatók az ismeretlen minta esetén várható R(z) függvények.

3. Tézispontok

1. Mérések az ETNA mérési összeállítással:

1.1. Az epitermikus neutronok laterális fluxusának eloszlását az R értékkel jellemeztük, ami a PE-nel telt mintatartó (sörös doboz) és a rendszer szimmetriatengelye közötti távolság függvényeként adódik. Az R maximális értékét a rendszer szimmetriatengelyénél érte el és ez az adat ~3,5-szeresére nőtt, ha a moderátor szabad felszínét Cd lappal fedtük le. Az eloszláshoz tartozó FWHM értékét a Cd lemez jelenléte csak reflektor használata esetén változtatta meg. Megjegyzés: Α laterális fluxus eloszlásának megmérése nélkülözhetetlen a talaj felszínének szkennelésére szolgáló "handheld" neutrondetektorok tervezése és megépítése során. A Cd-mal, ill. Cd nélkül elvégzett mérések eredményei azt mutatják, hogy a műszer megfelelő jel-zaj arányának kialakításához az szükséges, hogy a detektor neutron moderátorként-, ill. abszorbensként funkcionáló anyagokat is tartalmazzon. A számításaink azt mutatják, hogy az általunk használt 1mm vastagságú Cd lap hatásával 3mm vastagságú SiO₂ rétegnek vagy 0,2mm vastagságú PE rétegnek a hatása egyezik meg. Eredményeink szerint a laterális fluxus eloszlás mérése ETNA geometria segítségével lehetőséget ad a "hand-held" neutrondetektor továbbfejlesztésére.

- A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0,999. Független hivatkozások száma: 1.
- [6] A. Papp, J. Csikai: Lateral flux distributions of thermal and epithermal neutrons around a Pu-Be source. Acta Physica Debrecina 43 (2009) 10-14. IF: 0,000.

1.2. Amennyiben a detektorokat is Cd lemez borítja, akkor az R maximuma ~3,75-szeresére nőtt a moderátort befedő Cd lap felhasználásával. A reflektor nélküli moderátorfelszínen végzett fluxuseloszlás-mérés során az FWHM értékét nem befolyásolta a Cd lap jelenléte. Homokreflektor használatával azonban ~16cm, ill. ~12cm értéket kaptunk a Cd lap használatával, ill. nélküle. DLM2 mintát vagy PE reflektort használva a szabad felszínen az FWHM értékekre ~8 cm adódott, vagyis a DLM2 kimutathatósági mélységének maximuma ~8cm. Megállapítottuk, ha a detektor és a minta közötti homokréteg vastagsága több, mint 8-10cm, akkor a DLM2 hatását már nem tudjuk elkülöníteni a háttértől. Más reflektorok használata esetén is ~8cm vastagságnál értük el az R telítési értékét.

 A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0,999. Független hivatkozások száma: 1.

2. Összehasonlító mérések az ETNA és a BITATRON mérési összeállításokkal:

2.1. Az ETNA és a BITATRON mérőrendszerekkel kapott, 8cm-es mintavastagságra vonatkozó R értékek összehasonlítása szerint az ETNA módszerrel, Cd lap használata mellett, hidrogén tartalmú minták esetén, a relatív beütésszámok telítési értékei egy kettes faktorral nagyobbak lesznek, mint BITATRON alkalmazásával. Az R értékeire 1,2, 0,8, ill. 0,7 értéket kaptunk az ETNA-val való kísérlet során, amikor PE-t, melamint, ill. ammónium-nitrátot rejtő, 1,2kg tömegű papírreflektort vizsgáltunk. A papírt 0,55kg textilanyagra cserélve ugyanezek az adatokra 1, 0,4, ill. 0,5 értékeket kaptunk.

 A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0,999. Független hivatkozások száma: 1.

2.2. Az aktivációs és a reflexiós mérési módszerekkel kapott R értékek jelentősen eltérnek egymástól. Az R(z) függvények alakját az exponenciális eloszlás eloszlás-függvényével közelíthetjük, R(z)=R₀[1-exp(- $\Sigma_\beta z$)] alakban, ahol z a mintavastagság. Ezzel a függvénnyel jól közelíthetők mindkét módszer esetén a kísérleti adatok. Az R₀ értékek összehasonlítása azt mutatja, hogy a termikus, ill. rezonancia neutronok esetén az eredmények még ugyanazon reflektor esetén is eltérnek.

- [3] A. Papp: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method. Applied Radiation and Isotopes 75 (2013) 26-29. IF: 1,056.
- [7] A. Papp, J. Csikai: Flux albedo of neutrons with thermal and 1.45 eV energies. Acta Physica Debrecina 46 (2012) 123-131. IF: 0,000.

3. Mérések a BITATRON mérési összeállítással:

3.1. A Σ_{β} és σ_{β} hatáskeresztmetszetek legnagyobb értékét a magányos DLM2 esetén mértük. A reflektált neutronok hozamában csökkenés tapasztalható fedőanyagok hatására. Homokban elkevert NH4NO3 esetén a hatóanyag tömegének növekedésével csak adott koncentrációig nő a beütésszám, majd telítésbe megy. A szeparált helvzetű SiO₂ és NH₄NO₃ esetén viszont a σ_{β} értékek csökkennek a mintavastagság növekedésével. A hatóanyag koncentrációját növelve (kevert minta esetén) a σ_{β} is nő, így a robbanóanyag kimutatásának valószínűsége növekszik. Ha a robbanóanyagot ~8cm-nél mélyebb rétegű talajba vagy hidrogén tartalmú anyagba rejtik el, akkor már a róla érkező jeleket nem lehet elkülöníteni a környezet hatásától, hiszen a beütésszámok telítésbe mennek. Így ennél mélyebbre elásott taposóaknát nem tudunk kimutatni ezzel a módszerrel. Az eredmények azt mutatják, hogy a robbanóanyagok kimutatásához együtt ajánlott használni a neutronreflexión alapuló- és a hagyományos fémdetektorokat a felszín szkennelése során.

[8] A. Papp, J. Csikai: Use of neutron albedo to detect plastic explosives. Acta Physica Debrecina 47 (2013) 137-150. IF: 0,000.

3.2. A $\sigma_{\beta}(z)$ függvény értéke exponenciálisan csökken a z növelésével (a $\sigma_{\beta}(z)=\sigma_{\beta}(0)\exp(-kz)$ összefüggést használtuk a H, C, N, O atomok esetén). Ezzel a képlettel számoltuk ki a referenciaként használt $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ értékeket és ezekből az adatokból az ismeretlen anyagokra vonatkozó $\sigma_{\beta mol}(z)$ és R(z) függvényeket. A molekulákra vonatkozó értékeket egy egyszerű addíciós képlettel adtuk meg: $\sigma_{\beta mol}(z)=\Sigma_i n_i \sigma_{\beta i}(z)=R/(CN_{mol}z)$ formában. A mért és a számított R(z) függvények alapján azt kaptuk, hogy 0-10cm mintavastagság esetén a mért és a számított hozamok 10%-os hibahatáron belül megegyeznek egymással. Fontos megjegyezni azonban, hogy a tiltott anyagok kimutatását befolyásolja az őket körülvevő fedőanyagok minősége és mennyisége is. Ezért hasznos kiegészíteni a reflexiós módszert a reflektált neutronok spektrumára vonatkozó "unfolding" eljárással. A módszer érzékenysége növelhető, olyan módon is, hogy a BITATRON és az ETNA mérési elrendezéseket kombináljuk.

- [3] A. Papp: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method. Applied Radiation and Isotopes 75 (2013) 26-29. IF: 1,056.
- [4] A. Papp, J. Csikai: Use of thermal neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 758 (2014) 26-29. IF: 1,216. Független hivatkozások száma: 1.

4. A mérési módszer tömör összefoglalása:

1. Nagy tisztaságú, pontosan ismert összetételű anyagokra lemértük, ill. kiszámoltuk az R(z) függvényeket.

2. Ezután más vegyületekre is meghatároztuk ezeket és az eredményekből kiszámoltuk az anyagokra jellemző $\sigma_{\beta}(z)$ függvényeket.

3. A mérésekből az addíciós formula segítségével kiszámoltuk a molekulát felépítő atomokra vonatkozó hatáskeresztmetszet értékeket.

4. Ezekből az adatokból meghatároztuk az adott összegképletű, de általunk nem mérhető molekulákra vonatkozó, $\sigma_{\beta mol}(z)$ értékeket.

5. Ez utóbbiakból pedig visszaszámoltuk az ismeretlen minta esetén várható R(z) függvényeket.

6. A $\sigma_{\beta mol}(z)$ és R(z) értékeket megadtuk különböző kábítószerek (pl. az új pszichoaktív szerek) és robbanóanyagok esetében is.

1. Introduction

Since the discovery of neutrons the neutron physics has had an important role in the nuclear physics research and nuclear technology. Because of the properties of neutrons are very different over against the properties of other particles and the neutrons may be produced relatively easy way and used up for various applications. Thus the methods and results of neutron interactions are used up efficiently also in the chemical analysis.

In the essay I showed the properties of the neutrons, their nuclear reactions, detection- and investigation methods, mainly the neutron reflection- and activation procedures. I showed the ETNA and BITATRON measuring geometries what we used mainly for the measurements.

The aim of our study was devoted to find the hidden organic materials (for example explosives or drugs) in bulk samples with neutron physical methods. This is important because the detection of anti-personnel landmines and the drug smuggling are an international problem. Added to which the finding illicit materials have sometimes no amount of metals so the traditional detectors are very little usable. However, the organic materials can easily be detected by the neutron methods. The International Atomic Energy Agency has coordinated and supported research programs to determine the hydrogen contents of bulk samples. Two research groups of the DU Institute of Experimental Physics and the ATOMKI in Debrecen have joined these programs from the very beginnings.

2. Methods and results

At the Institute of Experimental Physics of the University of Debrecen my task was to study and development of the BITATRON and ETNA measuring geometries. The main aim was to improve the neutron reflection method and complete it by the activation process. The advantage of the neutron methods contrary to application of metal detectors is the determination of the organic materials based on their high hydrogen contents. The activation method allowed to the determination of the real lateral flux distributions for thermal and epithermal neutrons. In our experiments the reflected neutrons were detected with BF₃ counters. The relative excess counts were determined by the R=(I-I_0)/I_0 values, where I_0 and I denoted the number of counts without and with sample, respectively. Using the R values we could calculate the cross sections for the reflector materials and through them the R(z) and $\sigma_{\beta}(z)$ functions were determined.

2.1. Measurements with ETNA arrangement: The ETNA equipment is based on a Pu-Be source of 18.5GBq activity and two cylindrical BF_3 counters of ~80cm³ sensitive volumes.

In the first series of experiments the lateral neutron flux distributions for sand reflectors placed in cylindrical shaped Al sample holders (beer-boxes) were investigated. One of the boxes filled with polyethylene (PE) granulate was placed in different positions in the matrix of the boxes. The PE sample was moved along, perpendicular and diagonal directions to the longitudinal axis of the counters using with and without Cd covered moderator surface.

Results: the maximum values of R (as a function of the distance between the polyethylene sample and symmetry axis of the system) were found to be 0.46 and 0.13 with or without Cd cover, respectively. In addition, it was observed that the FWHM value was not influenced by the Cd cover without reflector but in its present a definite change was observed.

In the second series of experiments we measured the flux distributions on the free moderator surface covering the counters with a Cd cap. We used Al sample holders filled with sand or PE samples as reflectors. DLM2 (dummy landmine) sample was hidden into paper and clothes environments in different depths. PE,

ammonium-nitrate and melamine samples containing the similar amount of hydrogen as present in the DLM2 were investigated, too. We have determined the R values when the DLM2 was placed inside the bulk sand reflector in different depths.

Results: the flux distribution of neutrons depends on the distance between the sample and the detectors. The results were influenced by the Cd plate if it placed on the moderator surface. The maximal values of R were 0.64 and 0.17 with and without Cd plate, respectively. These data were obtained in the geometrical center of the system. The FWHM value of the flux distribution was found to be ~12cm with and without Cd plate on the free moderator surface. However using reflector these data were ~12cm and ~16cm without and with Cd layer, respectively. If we used DLM2 or PE reflectors the FWHM value was ~8 cm only what was much less than the R value in the case of free surface.

The values of R were determined as a function of the distance between the DLM2 and the detectors indicated that DLM2 could be detected only up to depth of ~8cm. We studied the effect of sand reflector on the value of R without using the DLM2. It was found if the thickness of the sand layer present between the detector and sample was higher than 8-10cm then we could not separate the signal of DLM2 from the background. In the case of some other reflector materials we obtained ~8cm for the saturation thickness in every case.

A comparison of the R values obtained by ETNA and BITATRON measuring geometries for 8cm sample thicknesses has shown the advantage of the ETNA method in the case of hydrogenous materials with Cd covered moderator. The R values were 1.2, 0.8 and 0.7 when we hid the PE, melamine and ammonium-nitrate samples in 1.2kg paper reflector. However, if we changed the paper to 0.55kg textile the R values were 1, 0.4 and 0.5, respectively. So the detection of the plastic explosives depends on the type of the environmental materials. It should be noted that the various paper and clothes chemically are not identical.

The knowledge of the lateral flux distribution in the interface of the moderator and reflector renders to estimate the dimension of the interrogated region for a hand-held neutron thermalization detector possible.

It should be emphasized that in the present of Cd layer not only the value of FWHM but also the signal to noise ratio could be increased and through them the interrogated volume. Therefore, the ETNA arrangement (see Fig. 3.1.1. in the essay) is recommended to use in the hand-held detector.

2.2. Comparative measurements with ETNA and BITATRON arrangements: The BITATRON equipment is based on a Pu-Be source of 18.5GBq activity and a single cylindrical BF₃ counter. However, in the case of activation method we used a Pu-Be source of 185GBq activity, as well as a GM counter in order to measure the activity of ~0.1mm thickness and ~1.9cm diameter In and Au foils.

In the first series of experiments we have investigated some important reflector materials using both the reflection and activation methods to study the R(z) and $\sigma_{\beta}(z)$ functions, where z denotes the thickness of the reflector.

Results: the values of R were significantly different obtained by the activation and reflection methods. The shape of the R(z) functions was characterized in a similar manner like to the form of the distribution function of the exponential distribution. So we used the R(z)=R₀[1-exp(- $\Sigma_{\beta}z$)] expression. These results were not exact because as we observed the R(z) values depended on the elemental composition of the reflector materials and the measuring geometry.

In the second series of experiments we have used the same experimental circumstances for different samples. Our aim was to determine the R(z) functions and from them to calculate the σ_{β} microscopic cross sections. We have determined the σ_{β} data for C, O, H, N and the $\sigma_{\beta mol}$ values for the molecules containing these elements using the additional formula. The lateral flux distributions have been measured with Dy and In activation foils on the empty surface of the bonamide moderator.

Results: the distribution function could approximate well the experimental data obtained both by the BITATRON and the activation methods. Results based on R_0 data were found to be different for the same reflector in the case of thermal and resonance neutrons. We have obtained that the $\sigma_{\beta mol}$ values were different for drugs, explosives and hiding materials. Note: Because of the explosives contain nitrogen; we do need to determine the thermal neutron scattering cross section for N with high precision.

2.3. Further measurements with BITATRON arrangement: The BITATRON equipment was used for further investigations to determine the $\sigma_{\beta}(z)$ functions in the case of $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ and through them to obtain the relation between $\sigma_{\beta}(z)$ and R(z) functions. In the knowledge of σ_{β} data the $\sigma_{\beta mol}$ values could be calculated, too.

In the first series of experiments we have measured the σ_{β} data for fertilizer containing NH₄NO₃ to deduce the cross section for N. The R value was measured with DLM2 sample and searched how the experiment could be affected by some hiding materials (SiO₂, CH₂ and zeolite). The R and σ_{β} values were measured and calculated for DLM2 as well as for some other container sized reflector materials. We have determined the R(z) and $\sigma_{\beta}(z)$ functions for hiding materials and ammonium-nitrate. These results rendered to deduce the R, σ_{β} and Σ_{β} values. The σ_{β} and Σ_{β} data are the average values over bulk samples taking into account the number of molecules or atoms in their determinations.

Results: the macroscopic (Σ_{β}) and microscopic (σ_{β}) cross sections had the highest values in the case of lonely DLM2 sample. The yield of the reflected neutrons was decreased in the presence of hiding materials. In the case of mixed sand and NH4NO3 the excess counts achieved saturation with increasing the mass of the hydrogenous material. In this arrangement of the separated sand and ammoniumnitrate the σ_{β} values decreased with increasing the thickness of the reflector material. However, if the concentration of NH₄NO₃ was increased (in the case of mixed samples) then the σ_{β} value became higher and the probability of the detection of the explosives would be increased. If the blasting agent was hidden deeper than ~10cm in soil or hydrogenous material then we could not separate the signals of explosive from the environmental ones (because the excess counts reached the saturation value). Namely this method does not able to detect the landmines if they were placed deeper than ~10 cm. Our results indicate that we need to use the neutron- and metal detectors simultaneously for more reliable detection of explosives.

In the second series of experiments it was studied the possible analytical expressions for $\sigma_{\beta mol}(z)$ and $\Sigma_{\beta mol}(z)$ as a function of reflector thickness deduced from the measured R(z) relations for different materials. The $\sigma_{\beta}(z)$ functions for the C, H, O, N elements

were determined and these data could be used to calculate the cross sections for the molecules.

Results: the $\sigma_{B}(z)$ functions decrease exponentially with increasing z (namely with the $\sigma_{\beta}(z) = \sigma_{\beta}(0) \exp(-kz)$ expression can be used). So we could calculate the σ_{β} data for the reference elements $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ and through them to determine the $\sigma_{\beta}(z)$ and R(z) functions for unknown materials. The data were calculated for molecules with the simple addition formula: $\sigma_{\beta mol}(z) = \sum_i n_i \sigma_{\beta i}(z) = R/(CN_{mol}z)$. The measured and calculated yields were the same within 10% error limit for the region of 0-10cm sample thicknesses. Note: The detection of illicit materials was influenced by the quality and quantity of the surrounding hiding materials. So the sensitivity of the reflection method may increase by using the "unfolding" method for the analysis of the spectra of reflected neutrons. In addition the BITATRON and ETNA methods are recommended to use in simultaneously.

Thus our measuring method was: In the first step we studied the R(z) functions for high quality materials. Later we determined these functions for another compounds and calculated the $\sigma_{\beta}(z)$ functions. From these results we deduced the cross section data for C, H, O, N atoms by the additional formula. So we could determine the $\sigma_{\beta mol}(z)$ data for compounds what we could not measure but their atomic formulas were well known. These results rendered to calculate the R(z) functions for unknown samples.

3. Thesis points

1. Measurements with ETNA arrangement:

1.1. The lateral flux distributions of epithermal neutrons were described by the R value what was the function of the distance between the sample holder filled with PE (beer-box) and the symmetry axis of the system. The maximal value of R was reached at the symmetry axis of the system and this data increased to ~3.5 times when the surface of the moderator was covered by a Cd plate. The FWHM value was not influenced by the Cd cover without reflector but in its present a definite change was observed. Note: Measurements of the lateral flux distributions are indispensable to design and construction of the neutron thermalization hand-held detector used for scanning the fields. Results obtained with and without Cd show that the signal to noise ratio requires as small amount of neutron moderator and absorber parts in the detector. Our calculations show that the effect of the moderator covering Cd plate of 1mm thickness is equivalent with SiO₂ layer of 3mm thickness or PE layer of 0,2mm thickness. Results obtained in ETNA arrangement for the lateral flux distributions give a possibility to improve the hand-held neutron thermalization detector.

- [1] A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0.999. Number of citations: 1.
- [6] A. Papp, J. Csikai: Lateral flux distributions of thermal and epithermal neutrons around a Pu-Be source. Acta Physica Debrecina 43 (2009) 10-14. IF: 0.000.

1.2. If the Cd plate was covered both of the moderator and the detectors then the maximal R value was increased to \sim 3.75 times. The FWHM value of the flux distribution was not influenced by the Cd cover without reflector. However with sand reflector these data were \sim 16cm and \sim 12cm with and without Cd cover, respectively. If we used DLM2 or PE reflectors on the free surface the FWHM value was \sim 8 cm so the DLM2 could be detected only up to a depth of \sim 8cm. It was found if the thickness of the sand layer present between the detector and sample was higher than 8-10cm then we could not

separate the effect of DLM2 from the background. We used some other reflector materials and obtained that the saturation thickness was at ~8cm in every case.

 A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0.999. Number of citations: 1.

2. Comparative measurements with ETNA and BITATRON arrangements:

2.1. A comparison of the R values obtained by ETNA and BITATRON measuring geometries for 8cm sample thicknesses has shown the advantage of the ETNA method in the case of hydrogenous materials with Cd covered moderator. The R values were found to be 1.2, 0.8 and 0.7 if the PE, melamine and ammonium-nitrate samples were hidden in 1.2kg paper reflector. However, if we changed the paper to 0.55kg textile these data were 1, 0.4 and 0.5, respectively.

 A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0.999. Number of citations: 1.

2.2. The values of R were significantly different obtained by the activation and reflection methods. The shape of the R(z) functions was approximated with the form of the distribution function of the exponential distribution. So we used the R(z)=R_0[1-exp(- $\Sigma_\beta z$)] equation denoting the sample thickness with z. This function can approximate well the experimental data obtained by the two methods. The results based on R₀ data were different for the same reflector in the case of thermal and resonance neutrons.

- [3] A. Papp: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method. Applied Radiation and Isotopes 75 (2013) 26-29. IF: 1.056.
- [7] A. Papp, J. Csikai: Flux albedo of neutrons with thermal and 1.45 eV energies. Acta Physica Debrecina 46 (2012) 123-131. IF: 0.000.

3. Measurements with BITATRON arrangement:

3.1. The Σ_{β} and σ_{β} cross sections have had the highest values in the case of a lonely DLM2 sample. The yield of the reflected neutrons was decreased in the presence of hiding materials. In the case of mixed sand and NH₄NO₃ the excess counts achieved saturation with increasing the mass of the hydrogenous material. However in the case of separated SiO₂ and NH₄NO₃ the σ_{β} values decreased with increasing the thickness of the reflector material. If the concentration of NH₄NO₃ was increased (in the case of mixed samples) then the σ_{β} value became higher and the probability of the detection of the explosives would also be increased. If the anti-personnel landmine was hidden deeper than ~8cm in soil or hydrogenous materials then we could not separate the signals of explosive from the environmental objects (because of the excess counts reached the saturation value). Namely this method does not able to detect the landmines placed deeper than ~8cm. Our results indicate that we need to use the neutron- and metal detectors simultaneously for the observation of plastic explosives during the scanning procedures.

[8] A. Papp, J. Csikai: Use of neutron albedo to detect plastic explosives. Acta Physica Debrecina 47 (2013) 137-150. IF: 0.000.

3.2. The $\sigma_{\beta}(z)$ functions are decreasing exponentially with increasing z (namely with the $\sigma_{\beta}(z) = \sigma_{\beta}(0) \exp(-kz)$ formula can be used for the main composite elements: H, C, N, O). Using this observation we could calculate the cross sections for the $\sigma_{\beta}(H)$, $\sigma_{\beta}(C)$, $\sigma_{\beta}(O)$, $\sigma_{\beta}(N)$ as reference data and through them to determine the $\sigma_{\text{Bmol}}(z)$ and R(z)functions for unknown materials. The data were calculated for molecules with the simple addition formula: $\sigma_{\beta mol}(z) = \sum_{i} n_i \sigma_{\beta i}(z) = R/(CN_{mol}z)$. Using these measured and calculated R(z) functions the measured and calculated yields were the same within 10% error limit for the 0-10cm sample thicknesses. Note: The possible detection of the illicit objects was influenced by the quality and quantity of the surrounding hiding materials. So the sensitivity of the reflection method may increase by using the "unfolding" method for the spectra of reflected neutrons. In addition the BITATRON and ETNA methods are recommended to use in simultaneously.

- [3] A. Papp: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method. Applied Radiation and Isotopes 75 (2013) 26-29. IF: 1.056.
- [4] A. Papp, J. Csikai: Use of thermal neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 758 (2014) 26-29. IF: 1.216. Number of citations: 1.

4. Short summary of the measuring method:

1. We measured and calculated the R(z) functions for materials of high quality and well known chemical composition.

2. Later we determined the R(z) functions for another compounds and calculated the $\sigma_{\beta}(z)$ functions for these materials.

3. From these results we deduced the cross section data for C, H, O, N atoms by the additional formula.

4. So we could determine the $\sigma_{\beta mol}(z)$ data for compounds what were not measured but using their well known atomic formulas rendered the determination of these data possible.

5. These results rendered to calculate the R(z) functions for unknown samples, too.

6. The $\sigma_{\beta mol}(z)$ and R(z) functions was calculated in the case of various illicit materials (for example designer drugs and explosives).

4. Saját közlemények (Own articles)

Referált folyóiratban megjelent közlemények (Articles in referred scientific journals):

- A. Papp, J. Csikai: Studies on the properties of an epithermalneutron hydrogen analyzer. Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1677-1681. IF: 0,999. Független hivatkozások száma: 1.
- [2] A. Papp, J. Csikai: Detection and identification of explosives and illicit drugs using neutron based techniques. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 288 (2011) 363-371. IF: 1,52. Független hivatkozások száma: 4.
- [3] A. Papp: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method. Applied Radiation and Isotopes 75 (2013) 26-29. IF: 1,056.
- [4] A. Papp, J. Csikai: Use of thermal neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 758 (2014) 26-29. IF: 1,216. Független hivatkozások száma: 1.
- [5] A. Papp, J. Csikai: Use of neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 308 (2016) 297-302. IF: 0,983.

Egyéb közlemények (Articles in other journals):

- [6] A. Papp, J. Csikai: Lateral flux distributions of thermal and epithermal neutrons around a Pu-Be source. Acta Physica Debrecina 43 (2009) 10-14. IF: 0,000.
- [7] A. Papp, J. Csikai: Flux albedo of neutrons with thermal and 1.45 eV energies. Acta Physica Debrecina 46 (2012) 123-131. IF: 0,000.
- [8] A. Papp, J. Csikai: Use of neutron albedo to detect plastic explosives. Acta Physica Debrecina 47 (2013) 137-150. IF: 0,000.



DEBRECENI EGYETEM



Egyetemi és Nemzeti Könyvtár

Nyilvántartási szám: Tárgy: DEENK/206/2016.PL PhD Publikációs Lista

hod

Jelölt: Papp Attila Neptun kód: L2JCV5 Doktori Iskola: Fizikai Tudományok Doktori Iskola

A PhD értekezés alapjául szolgáló közlemények

- Idegen nyelvű tudományos közlemények hazai folyóiratban (4)
- Papp, A., Csikai, G.: Use of neutron albedo to detect plastic explosives. Acta Phys. Debr. 47, 137-150, 2013. ISSN: 1789-6088.
- Papp, A., Csikai, G.: Flux albedo of neutrons with thermal and 1.45 eV energies. Acta Phys. Debr. 46, 123-131, 2012. ISSN: 1789-6088.
- Papp, A., Csikai, G.: Detection and identification of explosives and illicit drugs using neutron based techniques.

J. Radioanal. Nucl. Chem. 288 (2), 363-371, 2011. ISSN: 0236-5731. DOI: http://dx.doi.org/10.1007/s10967-011-0994-1 IF: 1.52

 Papp, A., Csikai, G.: Lateral flux distributions of thermal and epithermal neutrons around a Pu-Be source.

Acta Phys. Debr. 43, 10-14, 2009. ISSN: 1789-6088.

Idegen nyelvű tudományos közlemények külföldi folyóiratban (3)

 Papp, A., Csikai, G.: Use of thermal neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A-Accel. Spectrom. Dect. Assoc. Equip. 758, 26-29.

2014. ISSN: 0168-9002. DOI: http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2014.04.068 IF: 1.216

Papp, A.: Studies on the detection of concealed objects using the neutron reflection method paper. Radiat. Isol. 75, 26-29, 2013. ISSN: 0969-8043.
 DOI: http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.01.028
 IF: 1.056

Cim: 4032 Debrecen, Egyetem tér 1. ¤ Postacim: 4010 Debrecen, Pf. 39. ¤ Tel.: (52) 410-443 E-mail: <u>publikaciok@lib.unideb.hu</u> ¤ Honlap: <u>www.lib.unideb.hu</u>



DEBRECENI EGYETEM Egyetemi és Nemzeti Könyvtár



 Papp, A., Csikai, G.: Studies on the properties of an epithermal-neutron hydrogen analyzer. *Appl. Radiat. Isot.* 68 (9), 1677-1681, 2010. ISSN: 0969-8043. DOI: http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2010.03.007 IF: 0.999

További közlemények

Idegen nyelvű közlemények hazai folyóiratban (1)

 Papp, A., Csikai, G.: Use of neutron reflection method for chemical analysis of bulk samples. J. Radicanal. Nucl. Chem. 308, 297-302, 2016. ISSN: 0236-5731. DOI: http://dx.doi.org/10.1007/s10967-015-4657-5 IF: 0.983 (2015)

A közlő folyóiratok összesített impakt faktora: 5,774 A közlő folyóiratok összesített impakt faktora (az értekezés alapjául szolgáló közleményekre): 4,791

A DEENK a Jelölt által az iDEa Tudóstérbe feltöltött adatok bibliográfiai és tudománymetriai ellenőrzését a tudományos adatbázisok és a Journal Citation Reports Impact Factor lista alapján elvégezte.

Debrecen, 2016.07.20.

LEGYETEA

Cim: 4032 Debrecen, Egyetem tér 1. º Postacim: 4010 Debrecen, Pf. 39. º Tel.: (52) 410-443 E-mail: <u>publikaciok@lib.unideb.hu</u> [©] Honlap: <u>www.lib.unideb.hu</u>