

Neutronanalitikai módszerek fejlesztése kiterjedt minták hidrogéntartalmának meghatározására

Dóczi Rita

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Nukleáris Technikai Intézet
1111 Bp. Műegyetem rkp. 9., Tel.: +361 463 2523

Az újonnan kidolgozott és továbbfejlesztett neutronlassulási módszert mutatom be a kiterjedt minták hidrogéntartalmának meghatározása témakörben. A fejlesztések során sikerült egy gyors, direkt detektálási módszert kidolgozni, valamint folyamatban van a forrás-minta-detektor geometriájának optimalizálása a vizsgálandó minták méretének növelése céljából.

Bevezetés

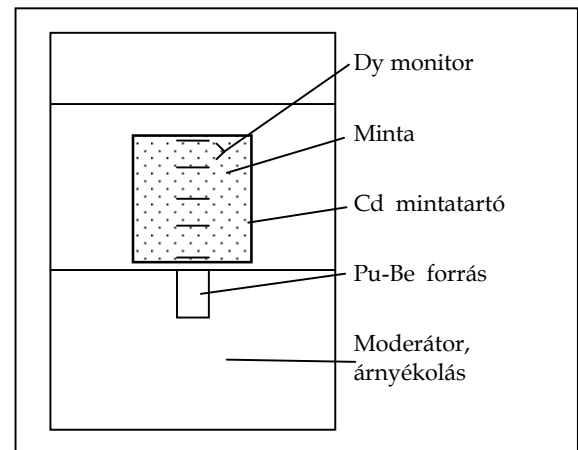
A kiterjedt minták hidrogéntartalmának analízise napjainkban gyakorlati szempontból is igen fontos feladat, a módszerek fejlesztése 1997 óta NAÜ által koordinált kutatási program keretében történik.

Debreceni és külföldi kollégáimmal nemrégiben bevezettünk egy epitermikus neutronok felhasználásán alapuló új eljárást, melynek érzékenysége mintegy hússzorosa a régóta széles körben alkalmazott neutronreflexiók technikában elérhetőnek. A kísérletek eddigi eredményeit számos publikációban bemutattuk [1-9]. Először aktivációs fóliákkal részletesen vizsgáltuk a mintákban létrejövő neutronfluxus axiális eloszlását és a módszer alkalmazhatóságát. Újabb kutatásaink azt mutatják, hogy a direkt neutron detektálással (BF_3 számláló segítségével) történő hidrogéntartalom meghatározás jól alkalmazható, gyorsabb, rutinszerű ipari felhasználást tesz lehetővé az epitermikus neutronokra alapozott új eljárás esetén.

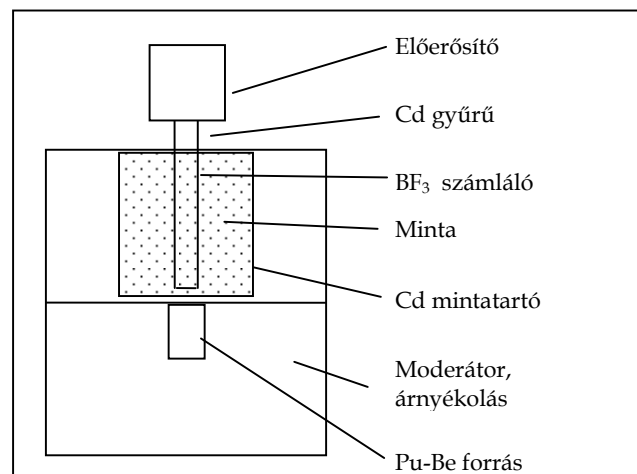
Ebben a beszámolóban bemutatom a direkt detektálási módszer alapjait, előnyeit és hátrányait.

Kísérlet

A besugárzások során a Debreceni Egyetem Kísérleti Fizikai Tanszékén szénhidrogén moderátorba ágyazott Pu-Be forrást alkalmaztunk az 1. ábra szerinti elrendezésekben. Nemzetközi együttműködés keretében (KEK, Tsukuba, Japán) összehasonlítást végeztünk Am-Be forrás és grafit moderátor alkalmazhatóságára vonatkozóan is [6].



a



b

1. ábra: A fólia aktivációs (a) és a direkt (b) módszer kísérleti elrendezése az epitermikus neutronokra alapozott hidrogéntartalom meghatározáshoz

A neutronlassulási módszer lényege, hogy a vizsgálandó mintát Cd tartóba helyezük, ezáltal a hidrogén-meghatározást epitermikus neutronokra alapozzuk. A minta belsejében a neutronok lassulását és a kialakuló termikus neutroneloszlást a minta elemi összetétele határozza meg. A kísérletek azt igazolták, hogy a módszer csak a minta hidrogéntartalmára érzékeny, azaz a termikus neutronterhez a különböző anyagok (Al, Fe, Cu, Pb stb.) elhanyagolható járulékot adnak [6].

Az 1. ábra szerinti összeállításokban körülbelül egy liter térfogatú minták elemzésére került sor. Az eljárás egyszerűsítése érdekében a már részleteiben kidolgozott [6] fólia (Dy) aktivációt kell prompt módszerre cserélni. Erre BF_3 proporcionális számlálót használunk megfelelő geometriában. Egyetlen 18 mm átmérőjű és 80 mm hosszúságú számlálócső hosszanti behelyezésével (1. b ábra) információt nyerhetünk a minta belsejében kialakult termikus neutronfluxus átlagáról a korábbi, aktivációs fóliából nyert lokális eloszlás számolással történő átlagolása helyett.

Eredmények

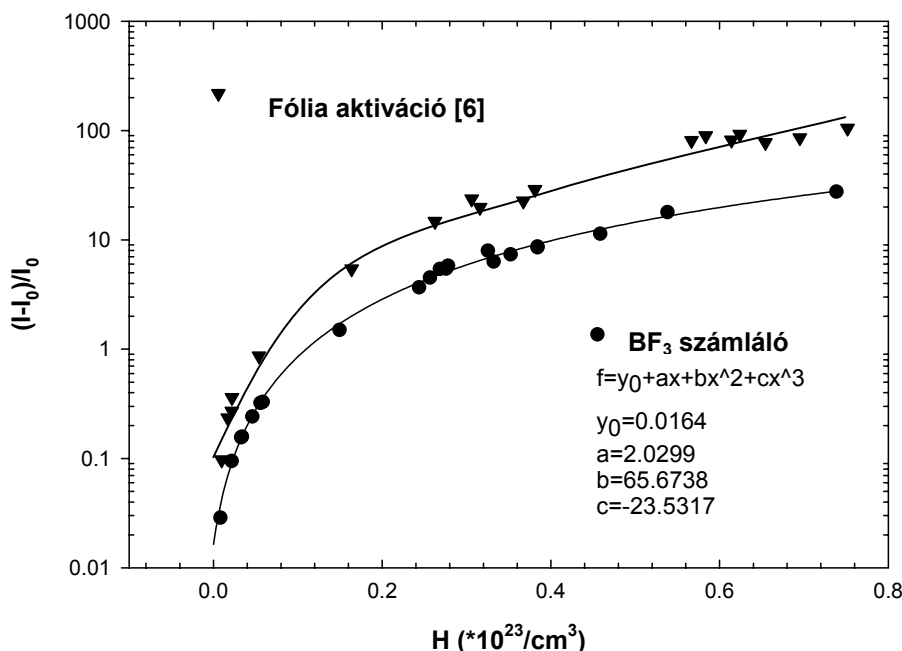
A hagyományos neutron reflexiók technikához képest kb. hússzorosa a lassulási módszer érzékenysége [5]. A kétféle módon (fólia aktiváció és direkt detektálás) megvalósított lassulási módszer érzékenységét pedig a 2. ábrán vetem össze. Az összehasonlítás végett azonos térfogatú, ismert hidrogéntartalmú standard mintákkal (pl. polietilén, plexiüveg, bonamid, paraffin, polisztirol, ammónium-nitrát,

melamin) vettük fel a kalibrációs görbéket. Az ábra mutatja, hogy a fólia aktivációs módszer érzékenyebb, mint a direkt eljárás. A prompt módszer kisebb érzékenysége a nagy méretű BF_3 detektor körül kialakuló fluxusdepresszióval magyarázható. Az ábrázolt $(I-I_0)/I_0$ mennyiség az üres (I_0) mintatartóhoz képest mért relatív beütésszám-többletet jelenti.

Az érzékenység kismértékű csökkenését számos előny kompenzálja: a mérési idő jelentősen csökkenthető (néhány perc), ugyanakkor a neutronforrás intenzitása is tízed részére csökkenthető (10-20 GBq); rutinszerű, ipari alkalmazásra használható eszközt hoztunk létre. A kalibrációs görbék alapján különböző eredetű kőszén és nyersolaj hidrogéntartalmát határoztuk meg, módszerünk alkalmazhatóan bizonyult fosszilis energiahordozók minősítésére, ami egyike a lehetséges felhasználásoknak [1].

A mátrixeffektus vizsgálata során grafitval kitöltött mintatartó esetén a háttér 8%-kal mutatkozott magasabbnak az üres mintatartóhoz képest – ami nagyobb, mint a fóliaaktivációs eljárás esetén tapasztalt érték – nehezebb elemekre nem észleltünk többletbeütést [6].

Megfelelő geometria kidolgozásával a vizsgálandó minta nagysága jelentősen növelhető (~20 liter), jelenleg ezen a fejlesztési feladaton dolgozunk. A H-analízisen kívül jövőbeli célunk a C/H atomarány meghatározása is a neutronreflexiók és az epitermikus lelassulási módszer kombinálásával, ez további analitikai felhasználásokat tesz lehetővé.



2. ábra: A fólia aktivációs és a direkt neutron detektáláson alapuló módszer érzékenységének összevetése

Irodalomjegyzék

- [1] R. Dóczi, J. Csikai: *An improved method for bulk hydrogen analysis using epithermal neutrons*, *Appl. Radiat. Isot.* 66. (2008) 1870-1872.
- [2] J. Csikai, R. Dóczi, *Optimization of source-sample-detector geometries for bulk hydrogen analysis using epithermal neutrons*, *Appl. Radiat. Isot.* 67. (2009) 70-72.
- [3] R. Dóczi, J. Csikai, *High sensitivity prompt neutron method for bulk hydrogen analysis*, *Proceedings of the CANDIDE workshop "Neutron Measurements, Evaluations and Applications, Nuclear data needs for Generation-IV and accelerator driven systems"*, (NEMEA-4), 16-18 October 2007, Prague, Czech Republic, EUR Report 23235 EN, Printed in Belgium, EC (2008) p. 155-158.
- [4] J. Csikai, R. Dóczi, *A comparison of the neutron thermalization and reflection methods used for bulk hydrogen analysis*, *Appl. Radiat. Isot.* 65. (2007) 764-768.
- [5] R. Dóczi, J. Csikai, *A comparison of the neutron slowing down and reflection methods used for bulk hydrogen analysis*, *Proceedings of the Enlargement Workshop "Neutron Measurements, Evaluations and Applications"*, (NEMEA-3), 25-28 Oct. 2006, Borovets, Bulgaria, EUR Report 22794 EN, Printed in Belgium, EC (2007) p. 137-139.
- [6] R. Dóczi et al., *Bulk Hydrogen Analysis Using Epithermal Neutrons*, *J. Radioanal. and Nucl. Chem.* 266. 1 (2005) 11-17.
- [7] R. Dóczi et al., *Determination of hydrogen content in bulk samples using the neutron activation method*, *Appl. Radiat. Isot.* 63. (2005) 137-140.
- [8] J. Csikai, R. Dóczi, *Some recent applications of nuclear methods, "Exotic Nuclear Systems" (ENS'05)*, Eds. Z. Gácsi, Zs. Dombrádi, A. Krasznahorkay, *AIP Conference Proceedings Volume 802*, Melville, New York, (2005) p.103-108.
- [9] R. Dóczi et al., *Determination of average activating thermal neutron flux in bulk samples*, *Proceedings of "Nuclear and Particle Physics Conference" (NUPPAC'03)*, 11-15 Oct. 2003, Fayoum, Egypt, Cairo (2004) p. 270-275.