

توسعه تکنیکی با استفاده از کد MCNP4c برای اندازه گیری غلظت نیتروژن در مواد منفجره با استفاده از واکافت گامای آنی

نصری نصرآبادی، مهدی*؛ بخش‌ی، فرشته

دانشکده علوم و فناوری‌های نوین دانشگاه اصفهان، گروه مهندسی هسته ای، خیابان هزار جریب، اصفهان

چکیده

برپایه روشهای آشکارسازی هسته ای، می توانیم مواد منفجره را با مشخص کردن ترکیباتشان به خصوص نیتروژن، آشکارسازی کنیم. واکنش نوترون های حرارتی با ^{14}N می تواند برای آشکارسازی اشعه گامای آنی 10.8 MeV استفاده شود. هدف ما این است که با استفاده از کد MCNP4c تکنیکی را برای اندازه گیری غلظت نیتروژن در مواد منفجره با استفاده از آنالیز به روش فعالسازی نوترونی با گامای آنی توسعه بدهیم. بدین منظور یک چشمه رادیوایزوتوپ ^{252}Cf در داخل استوانه ای از جنس پلی اتیلن با چگالی بالا تعبیه شد و این استوانه در داخل یک سطل استوانه ای دیگر که با آب پر شده بود قرار گرفت. اندازه گیری ها بر روی موادی که حجم نیتروژن بالایی دارند شبیه ملامین ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) انجام می شود. پودر ملامین در ظرف استوانه ای از جنس پلی اتیلن، درست در زیر ظرف حاوی آب که چشمه هم داخل آن قرار داشت، گذاشته شد. آشکارسازی توسط دو آشکارساز یدور سدیم (NaI(Tl)) انجام شد. نتایج توسط کد شبیه سازی شد. محاسبه های تئوری و اندازه گیری های تجربی در توافق خوبی با یکدیگر بودند که نشان داد این روش برای آشکارسازی مواد منفجره و داروهای قاچاق می تواند بکار گرفته شود.

Development of a Technique using MCNP4c Code for Determination of Nitrogen Content of Explosive Materials using Prompt Gamma Neutron Activation Analysis Method

Nasri Nasrabadi, Mehdi* ; Bakhshi, Fereshteh

Department of Nuclear Engineering, Faculty of Advanced Sciences & Technologies, University of Isfahan, Isfahan

Abstract

Nuclear-based explosive detection methods can detect explosives by identifying their elemental components, especially nitrogen. Thermal neutron capture reactions have been used for detecting prompt gamma 10.8MeV following radioactive neutron capture by ^{14}N nuclei. We aimed to study the feasibility of using field-portable prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) along with improved nuclear equipment to detect and identify explosives, illicit substances or landmines. A ^{252}Cf radio-isotopic source was embedded in a cylinder made of high-density polyethylene (HDPE) and the cylinder was then placed in another cylindrical container filled with water. Measurements were performed on high nitrogen content compounds such as melamine ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$). Melamine powder in a HDPE bottle was placed underneath the vessel containing water and the neutron source. Gamma rays were detected using two NaI(Tl) crystals. The results were simulated with MCNP4c code calculations. The theoretical calculations and experimental measurements were in good agreement indicating that this method can be used for detection of explosives and illicit drugs.

PACS No. 25

مقدمه

قاچاق کالا و دارو و حمل مواد مخدر و مواد منفجره برای کاربردهای تروریستی، در وسایل و چمدانهای مسافران و محموله های بار و ترانزیت کالا، هم در خطوط هوایی و هم در گمرکات مناطق مرزی بیان شده است. بنابراین نیاز به یک روش کاربردی و کارآمد برای تشخیص و شناسایی

حدود 60 میلیون مین زمینی در حدود 62 کشور در منطقه اروپا دفن شده است [1]. همچنین گزارش شده که چندین میلیون مین فعال در 70 کشور جهان وجود دارد که 85% آنها در مناطق غیر نظامی واقع هستند [2]. علاوه بر این در دهه های اخیر گزارشات زیادی مبنی بر افزایش روز افزون

مختلفی دخیل هستند. چشمه های نوترونی ^{252}Cf نوترون هایی با انرژی میانگین 2.35MeV تولید می کند. بیشترین این انرژی ها در محدوده 1MeV تا 2MeV هستند. در مورد مطالعاتی که با استفاده از روش PGNAA انجام می شود، اغلب نوترون های حرارتی بکار می رود. چشمه ^{252}Cf برخلاف چشمه های دیگر شبیه شناونده ها و راکتورهای هسته ای، گران نیست و به صورت متراکم و کوچک بوده و در نتیجه کارکردن با آن آسان است همچنین به چشمه های ترکیبی دیگر به علت موارد زیر برتری دارد:

بازده بالا برای نوترون های زیر 1.5MeV ، فعالیت ویژه کم گاما و بازده نوترونی بالا (بالا تر از 10^{12}s^{-1}) در واحد گرم. از آنجا که نوترون های تولید شده توسط این چشمه، سریع هستند و در آزمایش به نوترون حرارتی احتیاج است، لذا توسط کند کننده هایی که بین چشمه و نمونه قرار داده می شوند، نوترون های سریع کند می شوند. در این کار از یک روش نسبی با اندازه گیری در دو حالت مختلف استفاده کردیم. یکی بر روی ماده مشابه مواد منفجره به نام ملامین خالص با درصد خلوص 99.8% در سه جرم متفاوت و دیگری بر روی آب برای کاهش زمینه موجود در محیط آزمایش.

چیدمان آزمایش

آزمایش در پژوهشگاه تحقیقات و توسعه راکتورها و شناونده ها وابسته به سازمان انرژی اتمی ایران انجام شد. چشمه نقطه ای نوترون ^{252}Cf با شار تقریبی $10^6(\text{n}/\text{cm}^2\text{s})$ و انرژی متوسط 2.35MeV برای پرتو دهی نمونه ها انتخاب شد. نوترون های سریع باید توسط کند کننده ها به نوترون های حرارتی تبدیل می شدند. برای این کار چشمه نقطه ای در داخل یک استوانه پلی اتیلنی با شعاع 1.5cm و ارتفاع 15cm و در فاصله 4.5cm از ته آن قرار داده شد. سپس خود این استوانه در داخل لوله پلی اتیلنی دیگری به ضخامت 2mm ، شعاع 1.7cm و ارتفاع 14cm که در وسط ظرفی به شعاع 12.85cm و ارتفاع 18.4cm تعبیه شده و ظرف تا ارتفاع 10cm از آب پر

مواد، که با صرفه جویی در وقت و هزینه همراه بوده و علاوه بر این خطرات جانی نیز نداشته باشد، برای همگان واضح و مبرهن است [3-8].

استفاده از تکنیک آنالیز به روش فعال سازی نوترونی با گامای آبی، PGNAA، یکی از بهترین و موثرترین روشها در این زمینه می باشد. این روش یکی از بارزترین نمونه های کاربرد صلح آمیز دانش هسته ای می باشد. این تکنیک یک روش غیر تخریبی بوده و کاربردهای زیادی در زمینه های مختلف علمی و صنعتی دارد. روش PGNAA بر پایه بمباران کردن نمونه مورد آزمایش با نوترون ها و اندازه گیری طیف اشعه گامای آبی ساطع شده از عناصر موجود در نمونه بعد از جذب نوترون، استوار است. اشعه گامای آبی یا به علت واکنش پراکندگی غیر کشسان نوترون های سریع و یا به علت جذب نوترون های حرارتی توسط عناصر موجود در نمونه بوجود می آید و از روی انرژی و شدت گاما می توان به نوع و غلظت عناصر پی برد [4-9]. از آنجا که اکثر مواد منفجره از ترکیب چهار عنصر H, N, O, C تشکیل شده اند، لذا در این تحقیق آشکارسازی با استفاده از مساحت زیر پیک H و N و تعیین مقدار دقیق ماده مورد آزمایش انجام شد. این روش برای تعیین بیشتر عناصر با Z کم، مانند Ti, S, Si, B, H, P مناسب است، با این حال این روش برای عناصر سنگین تر نیز مناسب است. در این روش نمونه های مورد اندازه گیری، نمونه هایی با جرم های کم انتخاب شدند تا از مشکلاتی چون اثر جذب و پراکندگی نوترون ها و جذب تابش های گاما توسط نمونه، جلوگیری شود.

مواد و روش آزمایش

برای PGNAA، از سه چشمه رادیوایزوتوپ استفاده می شود. دو تا از این چشمه ها، چشمه های آلفازایی هستند که همراه با Be بکار می روند و با استفاده از واکنش $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$ تولید نوترون می کنند. این چشمه های آلفازا ^{241}Am ، $^{238,239}\text{Pu}$ هستند. سومین چشمه، چشمه شکافت خود به خود ^{252}Cf است. در مورد اینکه کدامیک از این چشمه ها مورد استفاده قرار گیرند، فاکتورهای

دقیقا در زیر ظرف آبی که چشمه در آن قرار داشت، گذاشته شد. از معادله زیر برای اندازه گیری جرم عناصر موجود در نمونه ها استفاده کردیم.

$$m = AM / (f_n I \gamma N_{AV} \sigma_a \phi_a F \gamma \epsilon \Omega \theta) \quad (1)$$

که در آن m جرم نمونه بر حسب کیلوگرم، A مساحت خالص زیر پیک تمام انرژی، M جرم مولی عنصر، t زمان شمارش پرتو دهی، f_n فاکتور خود حفاظی نوترون، I شدت نسبی گاما، N_{AV} عدد آووگادرو، σ_a سطح مقطع میکروسکپی جذب، ϕ_a شار سطحی نوترون، γ خود حفاظی گاما، ϵ بازده آشکارسازی پیک تمام انرژی، Ω زاویه فضایی بین نمونه و آشکارساز، θ فراوانی ایزوتوپ ماده، روش نسبی بکار گرفته شده برای اندازه گیری نسبت جرم هیدروژن به نیتروژن در این آزمایش بصورت زیر بود:

$$m_H / m_N = (AM / (f_n I \gamma N_{AV} \sigma_a \phi_a F \gamma \epsilon \Omega \theta))_H / (AM / (f_n I \gamma N_{AV} \sigma_a \phi_a F \gamma \epsilon \Omega \theta))_N \quad (2)$$

چون در این آزمایش زمان پرتو دهی، زاویه فضایی بین آشکارساز و نمونه و شار سطحی نوترون در هر دو حالت یکسان بوده و مقادیر θ ، ϵ ، σ_a ، $I \gamma$ ، M ، مقادیر ثابتی هستند و به راحتی از مراجع مختلف قابل حصولند، بنابراین با جایگذاری این مقادیر ثابت در رابطه (2) می توان نوشت:

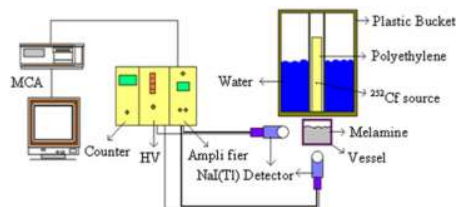
$$m_H / m_N = W \times (A_H / A_N) \times f \quad (3)$$

W مقدار ثابت و $f = (1 / f_n I \gamma)_H / (1 / f_n I \gamma)_N$ است. مجهولات در رابطه (3) سطح خالص زیر پیک و ضرب f می باشند.

شبیه سازی

یکی از روشهای شبیه سازی که در بیشتر تحقیق های هسته ای بکار می رود، روش آماری مونت کارلو است. در این تحقیق، نرم افزار MCNP4C که بر اساس این روش آماری پی ریزی شده است، برای شبیه سازی واکنش نوترون و ماده و طیف اشعه گامای ساطع شده بکار گرفته شد. کد ما را قادر می سازد تا فاصله های بین آشکارساز، ظرف، نمونه و چشمه را برای بدست آوردن بهترین هندسه در حالت های مختلف شبیه سازی کنیم. همچنین کد، تاریخچه نوترون و اشعه گاما را تا جایی که ما برای آن تعریف کردیم دنبال می کند. اندازه گیری شار اشعه گاما توسط تالی F5 انجام می شود.

شده بود، قرار داده شد. نوترون ها در پلی اتیلن و آب کند شده و سپس توسط عناصر موجود در ملامین جذب شدند. هیدروژن و نیتروژن بعد از جذب نوترون های کند شده، اشعه گاما ساطع می کنند. اندازه گیری توسط دو دتکتور یدور سدیم به قطر و ضخامت 3cm که با زاویه 90 درجه نسبت به یکدیگر قرار داشتند و از بازده سوسوزنی نسبی 100% و قدرت تفکیک 6% (برای گامای 0.662MeV) برخوردار بودند، انجام شد. آشکارسازها که در مقابل نوترون ها توسط یک پوشش استوانه ای از جنس بورون (B) محافظت می شدند، به یک تحلیلگر چند کاناله با 4000 کانال متصل بودند. کالیبراسیون دستگاه توسط دو چشمه ^{60}Co و ^{137}Cs انجام و طیف اشعه گاما توسط نرم افزار Mastro آنالیز و سپس مساحت زیر پیک هیدروژن برای انرژی 2.223MeV و برای پیک نیتروژن با انرژی 10.829MeV محاسبه شد. آشکارسازها از مرکز نمونه به فاصله 18cm قرار داشتند تا میزان زمان مرگ در محاسبات از 4% کمتر شود. نمایی از چیدمان آزمایش در شکل (1) نشان داده شده است.



شکل (1) نمایی از چیدمان آزمایش

نحوه انجام آزمایش

آزمایش ها در دو حالت مختلف انجام شد. ابتدا اندازه گیری ها تنها برای حالتی که کندکننده ها وجود داشتند و هنوز نمونه ای قرار داده نشده بود، انجام شد تا طیف زمینه به علت وجود هیدروژن در آنها محاسبه شود، و سپس ملامین خالص با سه جرم مختلف 100، 300 و 500 گرمی مورد تابش و اندازه گیری قرار گرفتند. در همه حالات مدت پرتو دهی یک ساعت در نظر گرفته شد. نمونه ها در ظرف های پلی اتیلنی استوانه ای شکل به شعاع 7 و ارتفاع 6.3cm قرار داده شدند و ظرف نمونه

نتایج

در این کار نسبت جرم هیدروژن به نیتروژن از سه طریق محاسبه شد: فرمول شیمیایی ملامین ($C_3H_6N_6$)، سطح زیر پیک اشعه گاما و کد MCNP4c.

* اگر فرمول شیمیایی هر ماده را بدانیم به راحتی می‌توانیم جرم عناصر موجود در هر مقدار ماده را بدست آوریم. مثلاً برای 500 گرم ملامین خالص می‌توان نوشت:

$$M(C_3H_6N_6) = 3 \times M_C + 6 \times M_H + 6 \times M_N = 126 \text{ gr},$$

$$M_H = (500 \times 6) / 126 = 23.809523,$$

$$M_N = (500 \times 84) / 126 = 333.333333,$$

$$M_H/M_N = 0.0714285$$

* مقادیر ثابت رابطه (3) با محاسبه به روش سطح زیر پیک اشعه گاما، برای هیدروژن و نیتروژن عبارتند از:

$$M=1\text{gr}, I_\gamma=2.223\text{MeV}, \sigma_a=0.332\text{b}, \varepsilon=0.5, \theta=99.985(^1\text{H}) [10]$$

$$M=14\text{gr}, I_\gamma=10.829\text{MeV}, \sigma_a=1.81\text{b}, \varepsilon=0.4, \theta=99.63(^{14}\text{N}) [10]$$

در این روابط مقادیر سطح مقطع جذب برای نوترون‌های حرارتی به کار رفته در این آزمایش داده شده است. برای بدست آوردن سطح خالص زیر پیک هیدروژن، چون در این آزمایش هم از آب و هم از پلی اتیلن به عنوان کندانده استفاده کردیم، لذا باید مقادیر سطح خالص بدست آمده برای پیک هیدروژن را هنگامی که نمونه ای نداریم و تنها کند کننده است از سطح خالص بدست آمده هنگامی که هم کند کننده و هم نمونه را داریم کم کنیم، تا مقدار برای هیدروژن نمونه بدست آید.

* برای محاسبات کد نیز با جمع شار بدست آمده از دو آشکارساز تعریف شده در کد توسط تالی های F15 و F5 برای انرژی 10.829MeV در نیتروژن و انرژی 2.223MeV در هیدروژن، برای 500 گرم ملامین، و با جایگذاری در رابطه (3) ضریب مجهول f را بدست آوردیم و سپس برای جرمهای 100 و 300 گرم ملامین نسبت جرم هیدروژن به نیتروژن را محاسبه کردیم. نتایج هر سه روش در جداول زیر آمده است.

جدول (1) نسبت جرم هیدروژن به جرم نیتروژن

| M(g) | Actual | Experimental | MCNP |
|------|-----------|--------------|----------|
| 500 | 0.0714285 | 0.07142850 | 0.071429 |
| 300 | 0.0714285 | 0.07134055 | 0.071497 |
| 100 | 0.0714285 | 0.07163412 | 0.071870 |

جدول (2) نسبت جرم هیدروژن در آب به هیدروژن مجموع آب و ملامین

| M(g) | Actual | Experimental |
|------|--------|--------------|
| 500 | 0.9555 | 0.9480 |
| 300 | 0.9728 | 0.9729 |
| 100 | 0.9908 | 0.9980 |

جدول (3) نسبت جرم هیدروژن به جرم نیتروژن در برخی مواد منفجره و ملامین

| H/N | Actual |
|----------|-----------|
| TNT | 0.1189189 |
| HMX | 0.0714285 |
| LX-17 | 0.0730897 |
| COMP-B | 0.0888157 |
| TATB | 0.0705521 |
| Pbx-9502 | 0.0796703 |
| Melamine | 0.0714285 |

می‌بینیم که نتایج در توافق خوبی با یکدیگر هستند و این دلیلی بر صحت آزمایش است.

بحث و نتیجه گیری

وقتی یک نمونه توسط چشمه نوترون پرتو دهی می‌شود، اشعه گامای آنی ساطع می‌کند. با اندازه گیری بر روی انرژی و شدت تابش گاما می‌توان به ترتیب به نوع و غلظت عناصر موجود در نمونه پی برد. با استفاده از یک روش نسبی به راحتی می‌توان نسبت جرم هیدروژن به نیتروژن در مواد منفجره را پیدا کرد چراکه در این حالت به علت یکسان بودن تعدادی از ضرایب در رابطه (2)، این ضرایب از دو طرف معادله حذف شده و با اندازه گیری مساحت زیر پیک طیف اشعه گاما، مقدار مورد نظر بدست می‌آید. در روشهای غیر نسبی مشکلات زیادی برای محاسبه همان ضرایب حذف شده در روش نسبی وجود دارد. در این کار از شبیه سازی و اندازه گیری شار نوترون در سطح نمونه نیز برای اندازه گیری نسبت جرم هیدروژن به جرم نیتروژن در مواد منفجره استفاده شد.

مرجع ها

- [1] B. Kiraly, T. Sanami, et al., Nuclear Instrumentation and Methods B 213 (2004) 452.
- [2] D.R. Ochbelagh, H.M. Hakimabad, et al., Radiation Physics and Chemistry 78 (2009) 303.
- [3] G. Viesti, M. Lunardon, et al., Applied Radiation and Isotopes 64 (2006) 706.
- [4] D.L. Perry, G.A. English, et al., Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 265 (2005) 229.
- [5] M.N. Nasrabadi, M. Jalali, et al., Nuclear Instrumentation and Methods B 263 (2007) 473.
- [6] M.N. Nasrabadi, A. Mohammadi, et al., Applied Radiation and Isotopes 67 (2009) 1208.
- [7] H.J. Im, B.C. Song, et al., Applied Radiation and Isotopes 67 (2009) 1458.
- [8] A.G.C. Nair, K. Sudarshan, et al., Nuclear Instrumentation and Methods A 516 (2004) 143.
- [9] A.A. Naqvi, M.S. Abdelmonem, et al., Nuclear Instrumentation and Methods A 562 (2006) 358.
- [10] N. Tsoulfanidis, Measurement and Detection of Radiation, second ed., Taylor & Francis, London, 1983.