

# Árnyékolt uránminták interrogációs vizsgálata LINAC fotoneutronforrással

LAKOSI László\*, NGUYEN Cong Tam, BAGI János és SERF Egyed

MTA Izotópkutató Intézet Sugárbiztonsági Osztály, Konkoly-Thege M. út 29-33, 1121 Budapest

## 1. Bevezetés

A nukleáris anyagok gyenge és lágy gamma sugárzása általában könnyedén leárnyékolható. Illegális forgalmuk (lopás, csempészés) felderítése saját sugárzásuk alapján (passzív módon) körülményes. Az erősen dúsított urán saját  $\gamma$ -sugárzását pl. már néhány mm-es fémlémez is leárnyékolja. Nukleáris anyagokat illegálisan izotópszállító tartóban is (pl. legálisan szállított radioizotóp mellett, de önállóan is) forgalmazhatnak. A csomagban elhelyezett anyag burkolata, árnyékolása általában megakadályozza a direkt módszerrel történő kimutatást, így a passzív  $\gamma$ -detektálási módszerek többnyire nem alkalmasak az elrejtett anyag kimutatására. A neutronok azonban áthatolnak az árnyékoláson, így neutrondetektáláson alapuló technika segítségével több esetben a csempésztett nukleáris anyag kimutatására. Ilyen esetben célszerű lehet a tartóból nem kivenni az anyagot, és úgy elvégezni a besugárzást és a vizsgálatot.

A spontán hasadó anyagok által kibocsátott neutronok már önmagukban is elég nagy intenzitást képviselhetnek a passzív neutrondetektálással történő kimutatáshoz, azonban a spontán nem hasadó anyagok (pl. az erősen dúsított urán) esetén valamilyen aktív technikára van szükség. Ilyen például a neutron-interrogáció. Ez külső neutronforrással történő besugárzást jelent, melynek hatására az elrejtett nukleáris anyagban indukált hasadások során kibocsátott neutronok mérése nyújt lehetőséget az anyag kimutatására.

A szállítmány neutronokkal való besugárzása (aktív interrogáció) következtében megjelenő hasadási neutronok abszorbensen keresztül is jól detektálhatók. Ezért a vizsgálandó mintát – az árnyékoláson keresztül – neutronokkal sugározzuk be hasadás indukálása céljából, a hasadási neutronokat pedig ugyancsak az árnyékoláson keresztül detektáljuk.

A hasadási neutronoknak a besugárzó neutronoktól való megkülönböztetésére a hasadási neutronok korrelációjának kihasználása (koincidencia-számlálás), vagy a késő neutronok adnak lehetőséget, mivel ez utóbbiak időben szétválaszthatók az interrogáló neutronoktól. Mivel a késő neutronok intenzitása kicsi (a hasadási neutronok  $\sim 1\%$ -a), jó statisztika eléréséhez elég hosszú ideig kell mérni, vagyis pulzáló neutronforrás szükséges, és a késő neutronokat az impulzusok közti szünetekben lehet detektálni.

A célkitűzés aktív interrogációs módszer kidolgozása volt árnyékoló tartóba helyezett erősen dúsított U-minták kimutatására. A vizsgálat LINAC fotoneutronforrással impulzus-üzemben történt. A fékezési sugárzás által

kiváltott neutronimpulzus előállítására nehésvizet vagy Be konvertert alkalmaztunk. A gyorsító elektronimpulzusával szinkronizált indítás után az impulzusok közötti időtartam alatt, He-3 töltésű proporcionális számlálócsövekkel felépített neutronszámlálóval mértük a késő neutronok intenzitását.

## 2. A késő neutronok intenzitásának időfüggése az interrogáció tartama alatt. A neutronimpulzus kialakulásának vizsgálata.

A telítési és lebomlási viszonyokat az interrogáló LINAC-impulzus frekvenciájának függvényében elméletileg, és a lehetőségekhez képest kísérletileg is vizsgáltuk.

Az U-235 hasadásából származó késő neutronok az irodalom<sup>1</sup> alapján a felezési idejük szerint 6 csoportra bonthatók (a gyors neutronok okozta hasadás hozamai lettek figyelembevéve, mivel a termalizáció messze nem teljes). Az egyes csoportok járuléka az 1. táblázatban láthatók.

1. Táblázat. Gyors neutronok által hasított U-235-ből származó késő neutron csoportok.

Csoport	$T_{1/2}$ (s)	Rel. hozam $R$ (%)	Rel. intenzitás $I$ (%)
1	0,179	2,6	23,1
2	0,496	12,8	41,1
3	2,23	40,7	29,1
4	6,0	18,8	5,0
5	21,84	21,3	1,6
6	54,51	3,8	0,11

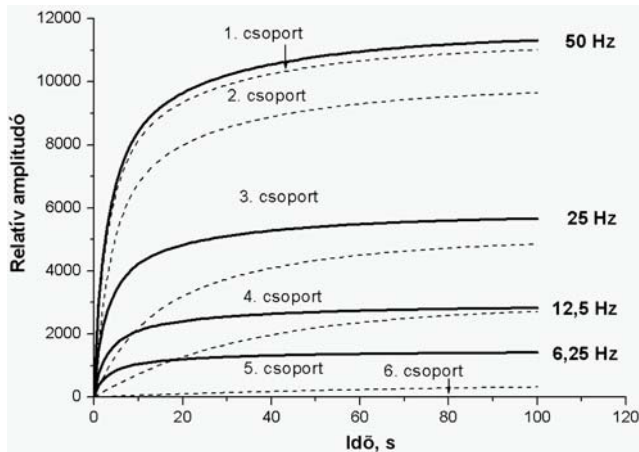
Míg a hozam a hasadási késő neutronok összes számát adja meg a teljes lebomlásig, az intenzitás az időegység alatti kezdeti késő neutron emissziót jelenti. A relatív intenzitások a relatív hozamoknak a megfelelő bomlási állandóval való szorzásával adódnak, összegük 100%-ra történő normálásával, az

$$I_i = \frac{R_i \ln 2}{T_{1/2i}} \frac{100}{\sum_i \frac{R_i \ln 2}{T_{1/2i}}}$$

képlet szerint.

\* Tel.: 392 2222/31 35; fax: 392 2529; e-mail: lakosi@iki.kfki.hu

A folyamatosan pulzáló besugárzás eredményeként a késő neutronok intenzitása telítésbe megy, az alkalmazott frekvenciától függő amplitudóval. A telítési görbék a négy LINAC frekvenciára az 1. ábrán láthatók. Az egyes csoportok telítési görbéi itt 50 Hz frekvencián vannak csak feltüntetve. Igen lényeges, hogy a frekvencia felezésével – az elektronáram átlag-erősségével párhuzamosan – a telítési intenzitások is feleződnek. Leolvasható, hogy 20 s besugárzási idő már közel 80%-os telítést tesz lehetővé, ezért előbesugárzásként általában ennyit alkalmaztunk a besugárzási-mérési ciklusok megkezdése előtt a mérések folyamán. Az ordináta a LINAC egyszeri impulzusa által létrehozott kezdeti későneutron-amplitudót 100%-nak véve lett beskálázva, so-called active portal monitor.

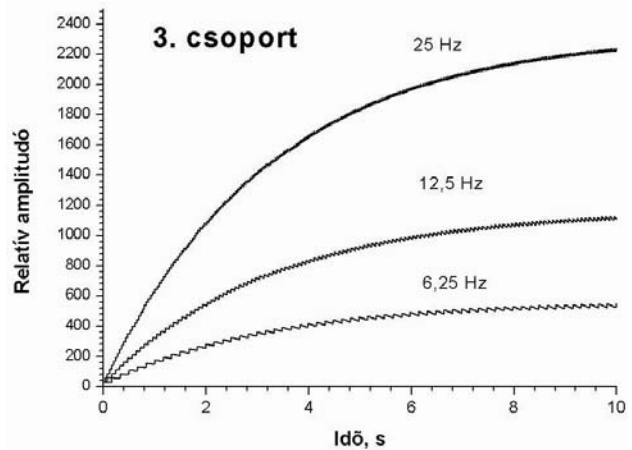


1. Ábra. A késő neutronok telítési görbéje a 4 frekvenciára. Az egyes csoportok telítési görbéje csak 50 Hz-es besugárzásra van megadva.

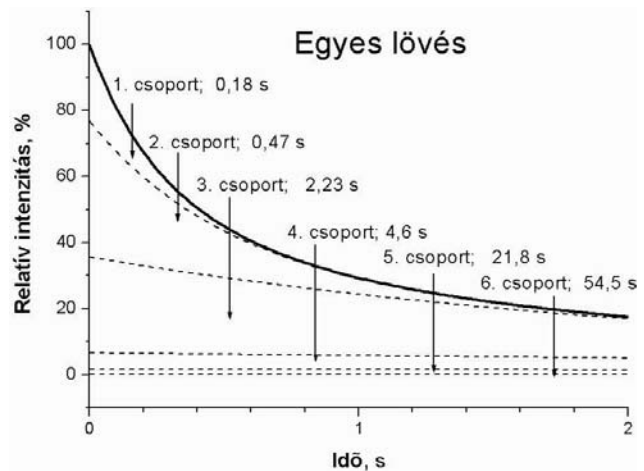
A tényleges telítési görbéken az impulzusok közötti besugárzás-lebomlás ciklikus ismétlődéseinek fűrészfog-szerű hatása is megjelenik, melytől az 1. ábrán az egyszerűség kedvéért eltekintettünk. A legnagyobb hozamú harmadik késő neutron csoportnak három frekvenciára vonatkozó tényleges telítési görbéi vannak – illusztrációképpen – a 2. ábrán felrajzolva.

A 3. ábrán az egyes késő neutron-csoportok lecsengésének időfüggése látható a LINAC egyszeri impulzusa után. Az ábrán az egyes csoportok felezési időit is jelöltük. Az induló amplitudók a táblázatban szereplő relatív intenzitások. A 4. ábrán ezzel szemben a 25 Hz-es, telítési besugárzás utáni lebomlást ábrázoltuk. (A 25 Hz-es ismétlődési frekvenciának kitüntetett szerepe van, mert ez bizonyult a mérések során optimálisnak.) A késő neutron-intenzitás amplitúdója az egyszeri impulzus utáninak majdnem 60-szorosára növekedett, emellett az egyes késő neutron-csoportok relatív súlya is tekintélyes eltolódást szenvedett (ugyanis az induló amplitudók itt már – a telítés miatt – az egyes hozamoknak felelnek meg). A lecsengések eltérő menete a kezdeti 2 s alatt jól követhető a nagyított részleten. A besugárzás leállta után 2 másodperccel az intenzitás csak kb. 65%-ra esik vissza az egyszeri impulzus utáni 20%-kal szemben. A lebomlást kísérletileg is sikerült követni az első 400 s-os időtartam alatt. A kezdőpont a 10,5 g-os U minta 25 Hz-es frekvenciával történő interrogációja során mért beütésszám volt (a mérések leírását lásd alább). Ezután kiolvastuk a

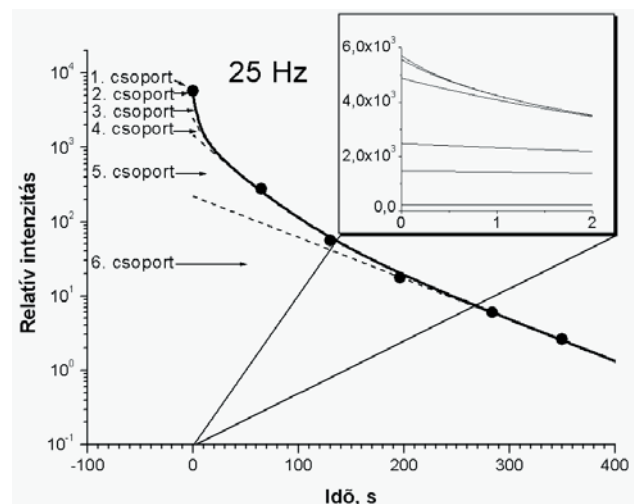
LINAC leállása utáni egymást követő mérési idők alatt kapott beütéseket.



2. Ábra. A 3. késő neutron csoport tényleges telítési görbéi.



3. Ábra. A késő neutronok intenzitásának időfüggése az első 2 másodpercben egyes lövés után.



4. Ábra. A késő neutronok intenzitása telítésig történő 25 Hz-es besugárzás után.

A relatív amplitudóhoz normalizált mérési pontok jól illeszkednek a számított (folytonos vonal) görbéhez.

### 3. Mérőberendezés

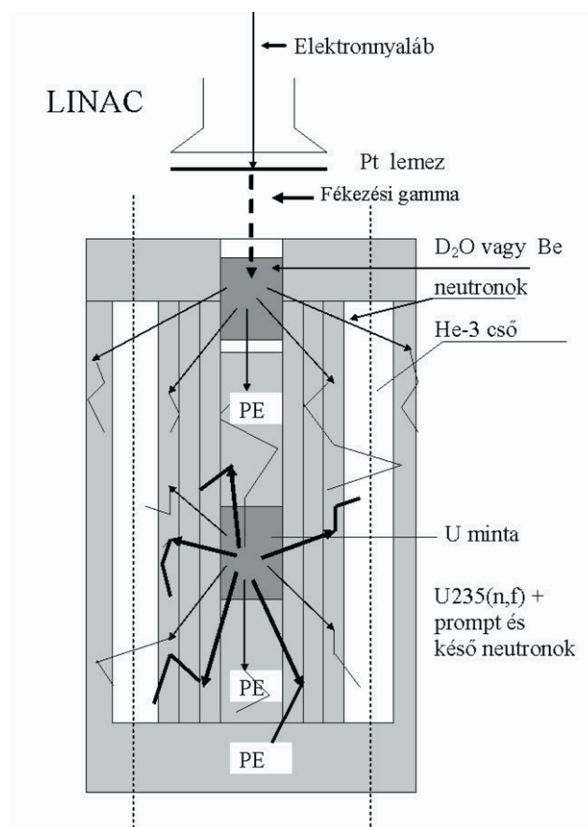
A LINAC (Tesla LPR-4, 100 W max.) 50, 25, 12,5 és 6,25 Hz frekvenciával állít elő 4 MeV-es átlagos energiájú elektronnyaláb-impulzust. Egyetlen impulzus "lövése" is lehetséges. Az elektron-impulzus időtartama 2,6  $\mu$ s, amplitúdója kb. 200 mA. Ez 50 Hz esetén 26  $\mu$ A átlagos áramerősséget jelent, a többi frekvencián arányosan kisebbet. Ennek a maximális áramerősségnek a LINAC jelenlegi állapotában a töredékét lehetett csak elérni. Így a méréseket 1,9  $\mu$ A áramerősség mellett végeztük (25 Hz-en ez volt maximálisan elérhető, ill. 50 Hz-en ennek duplája).

A 4 MeV-es elektronnyaláb 0,9 mm vastag Pt lemezből ütközve fékezési sugárzást kelt, mely deutériumban vagy berilliumban neutronokat hoz létre ( $\gamma, n$ ) reakció révén. A fékezési sugárzás végponti energiája 4 MeV, ahol az intenzitás nullára csökken. Minden más anyag neutronkeltési küszöbenergiája 4 MeV-nél nagyobb. A Be 1,67 MeV-es és a D 2,23 MeV-es küszöbenergiája 2,33 ill. 1,77 MeV-es maximális energiájú neutronokat tesz lehetővé, a neutronspektrum legnagyobb intenzitású helye azonban mindkét esetben csak 0,5 MeV körül van, még sokkal nagyobb (15-20 MeV) LINAC energiáknál is<sup>2,3</sup>. A viszonylag kis interrogáló energia kedvező abból a szempontból, hogy nem kell túl nagy moderátor, ellentétben pl. a 14 MeV-es neutrongenerátorokkal, ahol szobanagyságú moderátor-építmények sem ritkák.

A korábban<sup>4,5</sup> is alkalmazott 100 g nehézvizet és 170 g-os Be-hengert használtuk foton-neutron-konverterként. A mérés indítása előtt legalább 20 s ideig csak besugároztunk, hogy a késő neutronok intenzitása telítésbe menjen. A telítési érték természetesen függ az átlagos elektronáramtól, tehát a frekvenciától is. Minél kisebb a frekvencia, annál kisebb az elérhető áramerősség, tehát a késő neutronok telítési intenzitása is, és annál hosszabb ideig tart a mérés. A kezdeti 20 s-os besugárzást és az azt követő mérési-besugárzási ciklusokat 25 Hz frekvenciával végeztük.

Az 5. ábra szerinti, intézetünkben kidolgozott mérőberendezést használtuk neutrontektorokként<sup>6,7</sup>. A polietilén edény külső átmérője 30 cm, teljes magassága 47 cm. A külső moderátor-henger falvastagsága 2 cm. Ezen belül 12 db He-3 töltésű proporcionális számlálócső foglalt helyet. Az SzNM-28-as típusú, orosz gyártmányú csövek mérete  $\varnothing 32 \times 308$  mm, nyomása  $4 \times 10^5$  Pa (4 atm). A csövek alkotta gyűrű-elrendezésen belüli moderátor-rész három egymásba tolható, 1,5, 2,5 és 2 cm falvastagságú betét-hengerből áll. (Az összesen 6 cm falvastagság közel van az optimálishoz, lásd alább). A belső betétet három egymás tetejére helyezett gyűrű képezi, melyek kivehetőek. Így nagyobb méretű minták is behelyezhetők a belső mérőüregbe, a detektorhatásfok lényeges csökkenése nélkül. A középső gyűrűt kivettük, helyére az U-mintákat tartalmazó ólomtartók, ill. egy vékonyfalú távtartó került az ólom nélküli mérések esetén. Henger alakra hajlított Cd lemez alkalmazását a korábbi tapasztalatok<sup>4,7</sup> és az alábbi számítások alapján mellőztük.

Az elektronikus időzítő-vezérlő rendszer blokk-sémája a 6. ábrán látható. A kisméretű, változtatható időskálájú, mikrovezérlővel épült, PC által vezérelhető, külső jellel



5. Ábra. A kísérleti elrendezés.

szinkronizálható, 400 csatornás multiscalerrel az „élő spektrum” adatgyűjtés közben is megjeleníthető.

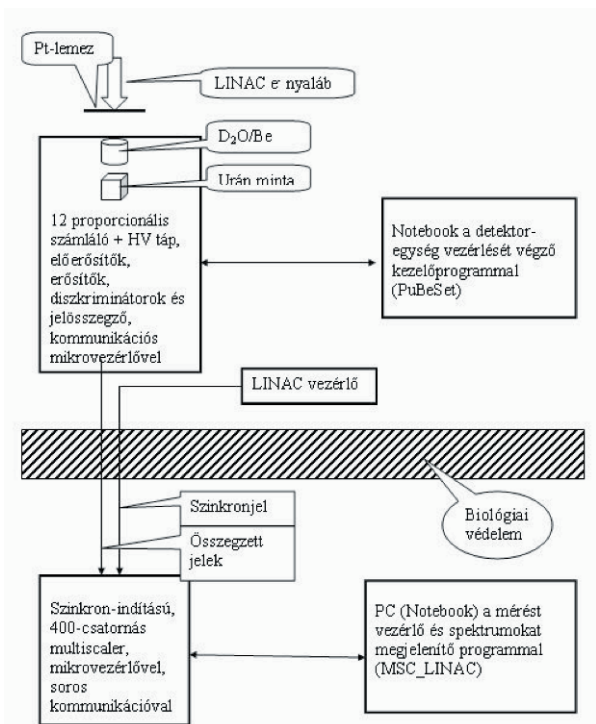
### 4. Modellszámítások

Az interrogációs kísérleteket megelőzően modellszámításokat végeztünk, hogy útmutatást kapjunk a mérőberendezés ideális összeállítására és méretezésére. A modellezéshez az MCNP nevű szimulációs programot használtuk, amely egy Los Alamosban kifejlesztett, háromdimenziós, Monte Carlo alapú algoritmusra épülő, csatolt neutron-foton-elektron számításokat lehetővé tevő részecsketranszport-program. Alapvető felhasználási területe a reaktorfizika és a sugárvédelem.

A számításoknál számos paramétert rögzítettnek tekintettünk, mivel azok a valós kísérlet során is állandók, vagy csak nehezen változtathatók voltak. Ilyenek például az elektronnyaláb tulajdonságai, a Pt konverter helyzete, a detektorház külső méretei és a He-3-as detektorcsövek paraméterei. A berendezés modelljét 2 részre osztottuk. Külön modelleztük a besugárzó részt, ami az elektronnyalábból, Pt konverterből és nehézvízből áll, és külön a detektor részt, ami tartalmazza a vizsgálandó nukleáris anyagot és a detektort.

A modellezés második felében azt vizsgáltuk, hogyan függ a vizsgálandó mintában végbemenő hasadások száma és a detektálási hatásfok a polietilén moderátor vastagságától, a minta helyzetétől, illetve a mintát körülvevő Cd henger jelenlététől. A szimulációhoz az 5. ábrán látható elrendezésből indultunk ki.

A szimulációt különböző moderátor-vastagságokat beállítva futtattuk. Vizsgáltuk azt is, hogy a mintában végbemenő hasadások száma hogyan függ a nehésvíz-minta távolságtól. A modellezés alapján az alábbi következtetéseket vontuk le:



6. Ábra. Az elektronika blokkvázlata.

A legnagyobb detektálási hatások hasadási neutronokra akkor érhető el, ha a mintát a detektor közepére, azaz a mintatartó aljától 20 cm-re helyezük el. A mintát 5 cm-rel feljebb téve ugyanakkor a detektálási hatások alig változik, de ennél nagyobb magasságban drasztikusan csökken.

A mintát közelebb téve a berilliumhoz/nehésvízhez, a hasadások száma növekszik.

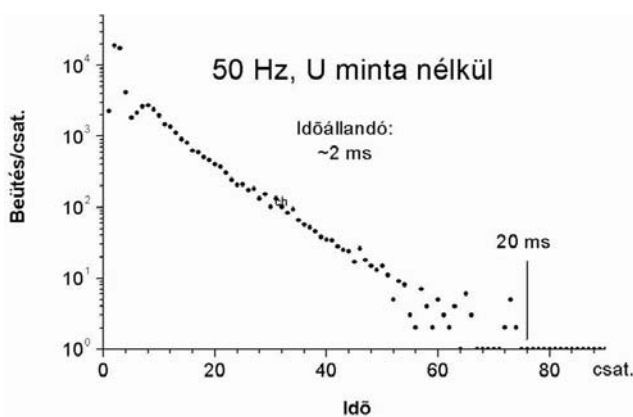
Figyelembe véve a fenti két körülményt, a mintát célszerű a mintatartó aljától kb 25 cm-re elhelyezni.

A moderátor vastagságának növelése kb. 5-6 cm-es falvastagságig növeli a hasadások számát és a detektálási hatásokot is, de a további méretnövelés a hasadások számára nincs hatással, a detektálási hatásokot pedig csökkenti. A moderátor vastagságának a minták mérete is határt szab. A Cd henger használata lecsökkenti a hasadások számát és a detektálási hatásokot.

## 5. Mérési eredmények a minták tömege (hasadóanyag-tartalma) és az árnyékoló tartó mérete függvényében

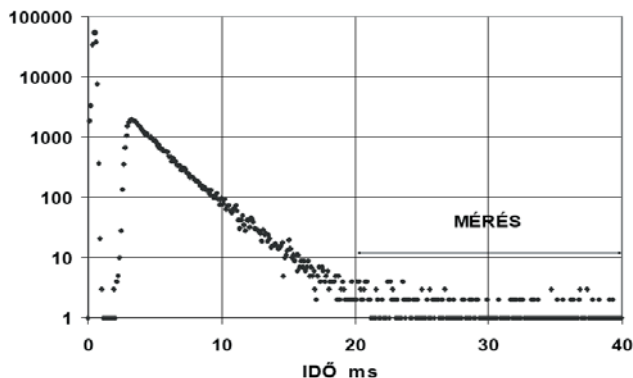
10,49, 5,55 és 2,33 g-os 36%-os dúsítású, továbbá egy 0,53 g-os 90 %-os dúsítású urán-mintát vizsgáltunk ólomtartókban és ólomárnyékolás nélkül. A nagyobbik ólomtartó tömege 2,70 kg, külső átmérője 63 mm, magassága a fedéllel együtt 106 mm, lyukátmérője 36 mm, falvastagsága 14 mm. A kisebbik tartó tömege 0,60 kg, külső átmérője 44 mm, magassága a fedéllel együtt 87 mm, lyukátmérője 36 mm, falvastagsága 4 mm volt.

A 7. ábrán az interrogáló neutronimpulzus Be konverterrel 50 Hz-es frekvenciával U minta nélkül felvett időspektruma látható. Az időspektrumon az egyes időcsatornába eső, 1000 besugárzási-mérési ciklus alatt (vagyis összesen 20 s alatt) gyűjtött beütésszámok vannak feltüntetve. Amint látható, a kezdeti interrogáló neutron-impulzus lefutása igen hosszú, gyakorlatilag exponenciális, időállandója kb. 2 ms. Elektronikusan nem befolyásolható, nehésvíz és Be esetén egyaránt kb. ugyanakkora. Nagyságát a detektor-edény anyaga, méretei és a neutronspektrum szabják meg. Így az 50 Hz-es frekvencia, amely egyébként a legkedvezőbb lenne, nem használható, mert az impulzus hossza 15 – 22 ms, és nem marad idő a késő neutronok mérésére. Ezért a továbbiakban 25 Hz-es ismétlődési frekvenciával jártunk a LINAC-ot. Az impulzusok ekkor 40 ms-onként követik egymást, tehát egy besugárzási-mérési ciklus is annyi ideig tart.



7. Ábra. Az interrogáló 50 Hz-es neutronimpulzus időspektruma Be konverterrel, U minta nélkül, 1000 besugárzási-mérési ciklus után.

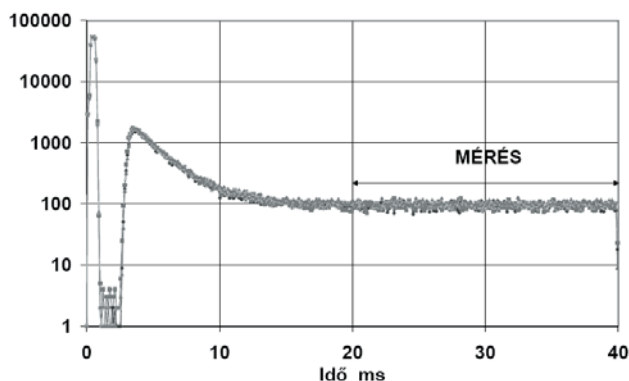
A 8. ábrán U minta nélkül felvett 25 Hz-es időspektrum látható, nehésvízzel. Az impulzus lefutása után, 20-tól 40 ms-ig jelöltük ki a mérési időintervallumot.



8. Ábra. A 25 Hz-es impulzus időspektruma D<sub>2</sub>O konverterrel, U minta nélkül, 1000 ciklus után.

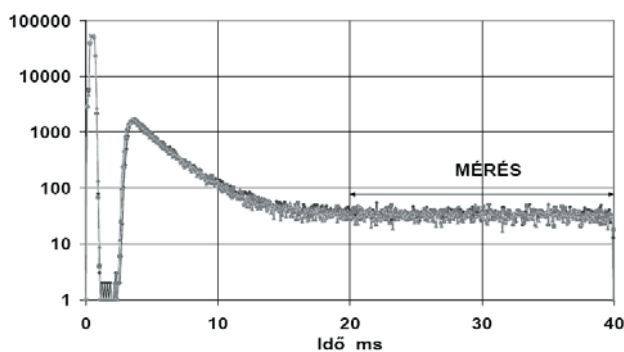
Az ólomtartókba helyezett és ólomárnyékolás nélküli U mintákról nehésvíz konverterrel 25 Hz-es frekvencián felvett időspektrumok a 9–11. ábrákon láthatók. Ezek az ábrákon is 1000 besugárzási-mérési ciklus alatt begyűjtött beütésszámok vannak feltüntetve. Mivel az interrogáló neutronimpulzus hossza az ábrákon jól látható módon kb. 20 ms, a teljes mérési idő fele használható fel későneutron-mérésre (ennyi az effektív, azaz besugárzásra fordított idő nélküli számlálási idő).

Az egyes árnyékolásoknak megfelelő (az elektronikus változatban különböző színekkel jelölt) időspektrumok az ábrákon látható módon nagyon közel esnek egymáshoz, jelezve, hogy a neutronok számára gyakorlatilag nincs különbség az egyes esetek között. Az 5,55 g-os mintával kapott eredmény a másik háromhoz hasonló.



9. Ábra. 10,5 g-os U minta mérése D<sub>2</sub>O konverterrel. 25 Hz, 1000 ciklus.

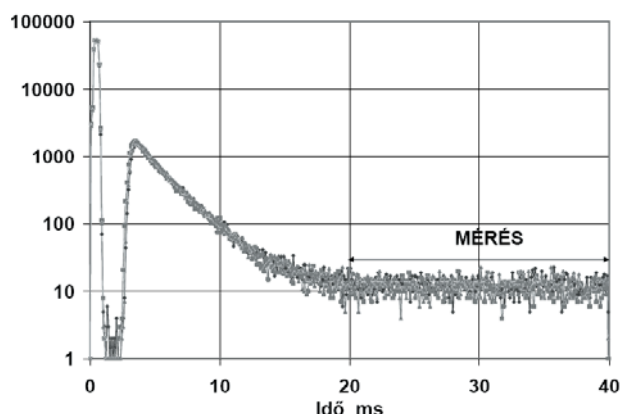
A Be konverterrel kapott időspektrumok a nehézvízzel mért spektrumokhoz teljesen hasonlóak.



10. Ábra. 2,33 g-os U minta mérése D<sub>2</sub>O konverterrel. 25 Hz, 1000 ciklus.

2. Táblázat. Ólomtartókban és szabadon mért U mintákból származó késő neutronok beütésszámai, intenzitásai, az ólomtartókban és szabadon mért eredmények arányai az egyes mintákra, nehézvíz konverterre, 1000 ciklusra.

Minta-tömeg, g	U-235 tömeg, g	Ólomtartó	Beütésszám	Eff. beütési gyakoriság, cps	Beütés-arányok 10,5g-os mintára	Árnyékolt/árnyékolatlan arány
10.49	3.20	-	17930	897	1	
(36 %-os dúsítás)		Kicsi	17979	899	1	1.003
		Nagy	19500	975	1	1.088
5.55	1.69	-	12611	630	0,70	
(36 %-os dúsítás)		Kicsi	12086	604	0,67	0.958
		Nagy	13300	665	0,68	1.055
2.33	0.71	-	6836	342	0,38	
(36 %-os dúsítás)		Kicsi	6423	321	0,36	0.940
		Nagy	5819	291	0,30	0.851
0.53	0.40	-	2317	116	0,13	
(90 %-os dúsítás)		Kicsi	2039	102	0,11	0.880
		Nagy	2251	112	0,12	0.972



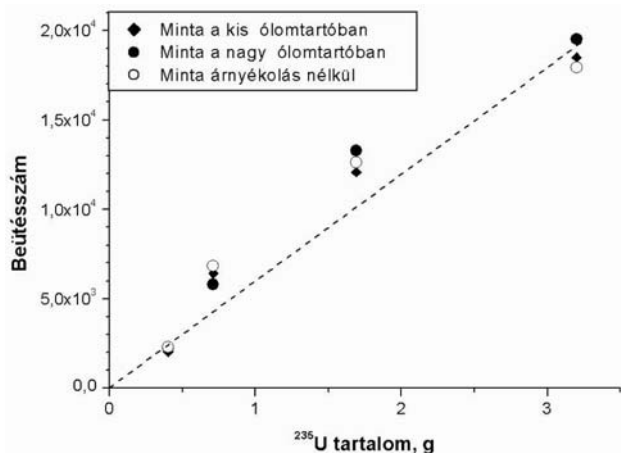
11. Ábra. 0,53 g-os U minta mérése D<sub>2</sub>O konverterrel. 25 Hz, 1000 ciklus.

A nehézvíz konverterrel kapott eredmények a 2. táblázatban vannak összefoglalva. A táblázat tartalmazza a mintatömegek mellett az U-235 tartalmat, a késő neutronok beütésszámainak, intenzitásait, a 10,5 g-os mintára vonatkozó beütésszámok arányait, továbbá az ólomtartókban mért beütésszámok arányait az ólomárnyékolás nélküli beütésszámokhoz viszonyítva, 1000 besugárzási-mérési ciklusra. Az intenzitás-adatok az effektív mérési idővel (20 s) való osztással adódnak.

Látható, hogy a tartókban végzett mérések eredményei  $\pm 10\%$ -on belül megegyeznek az árnyékolás nélküli eredményekkel. A LINAC-ot minden mérésnél újra kell indítani, az értékek elsősorban emiatt szórnak, a statisztikus hiba csak 1-2%, elhanyagolható.

A 10,49 g-os mintára vonatkozó beütésszám-arányok – a legkisebb minta kivételével - nem pontosan tükrözik az U-235 tömeg-arányokat, melyek értékei rendre 0,529, 0,222 és 0,126.

Az utolsó oszlopban az árnyékoló tartókban végzett mérések eredményei vannak összehasonlítva (elosztva) az árnyékolás nélküli eredményekkel. Az eltérések irányában tendenciát nem vettünk észre.



12. Ábra. Az ólomtartókban és árnyékolás nélkül mért mintákból származó késő neutronok beütésszámai az U-235 tartalom függvényében.

A minták nem egyforma dúsítása miatt az U-235 tartalom függvényében ábrázoltuk az eredményeket (12. ábra). Csak a beütésszámok vannak feltüntetve. A beütésszám nem teljesen lineáris az U-235 tartalom függvényében. Az eltérést nem tekintjük szignifikánsnak, inkább a konverter-és minta-helyzetek, továbbá a LINAC impulzus-amplitúdók korlátozott reprodukálhatóságának tulajdoníthatjuk. A nem teljes termalizálás és a gyors hasadás miatt a módszer az U-238 tartalomra is – bár az U-235-nél 50-60-szor gyengébben – érzékeny<sup>4</sup>. Ez a hatás a 3 kisebb dúsítású mintánál jobban érvényesül, azonban eltérpül a fenti mellett.

Be konverterrel hasonló eredmények születtek, a fentiekben túlmenő következtetések azokból sem vonhatók le.

## 6. Összefoglalás

A LINAC fékezési sugárzása által nehézvízben és berilliumban létrehozott neutronimpulzusokkal besugárzott U-mintából származó neutronok detektálására az előző években kifejlesztett, 12 db He-3 töltésű proporcionális számlálóval működő neutronmérő berendezésünket alkalmaztuk.

A LINAC impulzusával szinkronizált multiszkéler és időzítő/vezérlő/mérő-rendszert használtunk. Az interrogáló neutronimpulzus 20 ms-os időtartamához optimális LINAC frekvenciát, 25 Hz-et választottuk.

Elméletileg vizsgáltuk a késő neutronok intenzitásának lecsengését egyszeres LINAC impulzus és pulzáló

besugárzás után, az utóbbit részben kísérletileg is igazoltuk.

MCNP szimulációval néhány paramétert határoztunk meg a besugárzás és a neutronmérő geometriai elrendezése, a polietilén moderátor vastagsága, a minta és a konverter elhelyezése függvényében. A számítások alátámasztották az eddigi kialakításokat.

Az U minta ólomárnyékolásának hatását vizsgálva megállapítottuk, hogy érdemi változás a neutronimpulzus alakjában, amplitudójában, beütésszámában nincs. Az ólomárnyékolásnak, legalábbis a vizsgált 14 mm-es vastagságig, nincs hatása U minták kimutathatóságára a LINAC-nehésvíz ill. LINAC-Be együttes mintafotoneutronforrás esetében.

A jelenlegi eredmények alapján a kimutatási érzékenység – összesen 1 perces interrogáció és 1,9  $\mu$ A elektronáram esetén – ~5500 beütés vagy 275 cps 1 g U-235-re. A kimutatási küszöböt 6,8 cps-nek véve (a háttér kétszerese 1000 ciklus esetén), ez ~ 25 mg U-235 tartalomnak felel meg. Ha egy minta interrogációs vizsgálatára összesen 1 percet szánunk, az 20 s-os elő-besugárzásból és utána 40 s-ig tartó besugárzási-mérési ciklusokból áll, melynek fele fordítódik a prompt impulzus lecsengésére, és így 20 s effektív idő marad a késő neutronok mérésére. A ciklusszámot (vizsgálati időt) növelve nincs akadálya az érzékenység további növelésének.

A jelen munka egy laboratóriumi berendezésen végzett vizsgálat eredményeit foglalja össze. A nukleáris anyagok illegális forgalmazását megakadályozó ill. annak elejét vevő intézkedések keretében, pl. határátkelőhelyen felállítandó „aktív sugárkapu” a fenti elven, LINAC alkalmazásával megvalósítható. Tapasztalataink hasznosak lehetnek az ilyen irányú fejlesztésben.

## Köszönetnyilvánítás

A LINAC működtetéséért Hargittai Péternek mondunk köszönetet. A munkát az Országos Atomenergia Hivatal támogatta (OAH-ÁNI-ABA-07/07 szerződés).

## Hivatkozások

1. Keepin, G., R., et al., *Phys. Rev.* **1957** 107, 1044.
2. Sáfár, J., Lakosi, L., *Appl. Radiat. Isot.* **1994** 45 1057-1059.
3. Facure, A., et al., *Appl. Radiat. Isot.* **2005** 62 69-72.
4. Lakosi, L.; Nguyen, C. T.; Bagi, J. *Nucl. Instr. Meth. B* **2008**, 266, 295-300.
5. Lakosi, L., Nguyen, C. T. *Nucl. Instr. Meth. B* **2008**, 266, 3295-3001.
6. Bagi, J., Nguyen, C. T.; Lakosi, L., *Nucl. Instr. Meth. B* **2004**, 222, 242-248.
7. Lakosi, L.; Nguyen, C. T.; Bagi, J. *Nucl. Instr. Meth. B* **2006**, 243, 385-391.

## Neutron interrogation of shielded uranium by a 4 MeV linac

For preventing spread of nuclear materials (NM), a non-destructive assay (NDA) method (a "portal monitor" as an ultimate goal) has long been needed, which is suitable for revealing smuggled NM at border checkpoints. Even a thin metallic shielding hinders detection of uranium-containing material by direct methods, i. e. by passive  $\gamma$ -ray detection. However, active methods may be promising, by irradiating NM by neutrons („active interrogation”). Neutrons can readily penetrate high-Z shielding material, induce subsequently fission in the NM, and fission neutrons can more effectively be detected than passive gamma rays.

A photoneutron interrogation project has been carried out by applying 4 MeV electron linac of the Institute of Isotopes (Tesla LPR-4, 100 W at maximum) installed at the institute 25 years ago, as a neutron source, to induce fission in high-enriched uranium (HEU) samples, which are shielded. The electron energy has been converted into bremsstrahlung by a platinum foil, whereas interrogating neutrons have been produced in beryllium or heavy water. Delayed neutrons produced in the fissile material have been detected, distinguished from interrogating neutrons by using time discrimination. Electron pulses have been produced with a repetition rate of 25 Hz as an optimum setting, while the pulse duration has been 2.6  $\mu$ s. A repetition rate 25 Hz of electron pulses was established to be the optimum setting, selected among from 50, 25, 12.5, or 6.25 Hz. Single shots can also be fired.

Bremsstrahlung was generated on a 20 by 30 mm size platinum converter positioned at 3 cm distance from the exit window of the linac. The diameter of the electron beam was about 2 cm at converter distance. The energy distribution of the electrons is about 0.67 MeV FWHM at 4 MeV. Energy stability is about 4 %.

Neutron production is due to ( $e,\gamma$ ) and ( $\gamma,n$ ) double conversion. Both beryllium and heavy water was tried as photoneutron converter. Their ( $\gamma,n$ ) reaction thresholds are 1.67 and 2.23 MeV, respectively. The neutron energy available from the  ${}^9\text{Be}(\gamma,n){}^8\text{Be}$  and  $\text{D}(\gamma,n)\text{H}$  reaction is up to 2.33 and 1.77 MeV, respectively, at 4 MeV electron energy. However, the yields abruptly vanish above around 0.9 MeV neutron energy, whereas maximum intensity of the spectrum of evaporated neutrons is at about 0.5 MeV, even at much higher (15-50 MeV) linac energies.

Heavy water or beryllium photoneutron converters of a mass of 100 and 170 g, respectively, were applied at the top of the collar.

The neutron collar consisted of concentric polyethylene cylinders of an outer size of 300 mm diameter and 470 mm total length. The innermost ring (of 20mm wall thickness) forms a measurement cavity for the material to be assayed. In between the outermost and inner cylinders, 12 proportional counters (Type SNM-28) of diam. 32 by 308 mm length each, filled with  ${}^3\text{He}$  gas to a pressure of  $4 \times 10^5$  Pa (4 at) served as neutron detectors. Cd foil was not used.

The signal processing electronics consisted of a 400 channel analyzer in multiscaler mode of operation as a time analyzer. The multiscaler receives commands from a PC through a micro-controller. Triggering the analyzer was synchronized with the linac control command pulse. Dwell time was variable from 25.6  $\mu$ s/channel to 65.5 ms/channel. The whole time spectrum thus may

cover a period extending from the fastest 13 ms to the slowest range of about 1.6 s. A channel width of 102.4  $\mu$ s was selected for the present measurements.

An irradiation-measurement cycle at 25 Hz lasts for 40 ms. So, 1000 cycles lasted for 40 s. Time spectra acquired at 25 Hz show that the pulse length of prompt (interrogating and fission) neutrons cover a half of the 40 ms interval between two pulses. Exponential decay with a time constant of about 2 ms can be observed, with a total pulse length of 20 ms. Thus, the effective time remaining for delayed neutron measurement is about 20 ms. Half of the time interval 40 ms between pulses could only be exploited, i. e. 20 ms effective time was available for counting at 25 Hz frequency. It was practically the same by using the beryllium converter.

Time spectra of uranium samples of 10.5, 5.5, and 2.3 g mass of 36 % enrichment, as well as of a 0.53 g sample of 90 % enrichment were acquired. All the spectra were taken by the  $\text{D}_2\text{O}$  and beryllium converters, during 1000 irradiation-measurement cycles. The mean electron current was uniformly 1.9  $\mu$ A at 25 Hz. In order to reach a sufficient degree of saturation, 20 s irradiations were uniformly carried out before starting cyclic delayed neutron measurements. The samples were interrogated both unshielded and shielded, being inserted in two lead containers of outer diameters 63 and 44 mm by heights 106 and 87 mm, respectively. Container masses were 2.70 and 0.60 kg, with wall thicknesses of 14 and 4 mm, respectively. There are no significant differences between the spectra of the samples being shielded or not, so the actual interrogation of an unknown material can well be performed with the material left in their holders (up to 14 mm lead shielding at least).

The number of counts was summed up in the time interval for counting delayed neutrons, i. e. from channel number 200 to 400, corresponding to an effective measurement time of 20 s during 1000 cycles. The results agree to within  $\pm 10\%$ , with no significant deviations. Total interrogation time corresponds to 1 min, including an additional 20 s initial irradiation and 40 s counting time, of which 20 s is effective. Results for the two converters are very similar.

Assuming a detection limit of 6.8 count/s (cps) corresponding to twice the background level at 1000 cycles, this means 136 counts during the effective measurement time (20 s). Taking into account a sensitivity of about 5500 counts/g  ${}^{235}\text{U}$  content, this corresponds to a lower detection limit of about 25 mg  ${}^{235}\text{U}$  at a mean electron current intensity of 1.9  $\mu$ A in a 1 min total interrogation time (1000 cycles). By increasing the electron current or interrogation time (number of cycles), the response can be enhanced.

Delayed neutron signal is practically linearly related to  ${}^{235}\text{U}$  content.

No influence of a shielding container was observed (up to 14 mm lead thickness at least).

Summing up, an efficient laboratory method and equipment has been developed for quantitative assay of unknown U-containing material, which is suitable for interrogation measurement without opening the holder of the material. Experience gathered and results may form a basic knowledge for designing a larger system of a so-called active portal monitor.