

TIIVISTELMÄRAPORTTI

NEUTRONISÄTEILYÄ LÄHETTÄVIEN AINEIDEN HAVAITSEMINEN JA TUNNISTAMINEN

Harri Toivonen, Philip Holm, Ari-Pekka Sihvonen, Kari Peräjärvi ja Teemu Siiskonen
Säteilyturvakeskus

Tiivistelmä

Projektissa tutkittiin tavanomaisen natriumjodidi-ilmaisimen (NaI) käyttöalueen laajentamista gammaspektrometriasta neutronien havainnointiin. Huomattiin, että NaI-ilmaisimella on erittäin hyvä neutronivaste energia-alueella 3 – 8 MeV. Erityisesti jodi toimii konvertterina eli neutronikaappauksen tai epäelastisen sironnan seurauksena vapautuu fotoneja, jotka ilmaisimen sisällä summautuvat suurienergiseksi pulssiksi. Mittausjärjestelmän neutroniherkkyyttä voidaan parantaa muovirakenteilla ilmaisimen ympärillä. Tutkimustuloksilla on suuri vaikutus radioaktiivisten aineiden rajavalvontaan, sillä uusia neutroni-ilmaisimia ei tarvitse hankkia, eikä niitä olisi saatavillakaan maailmanlaajuisen ³He-pulan takia.

1. Johdanto

Radioaktiivisten aineiden rajavalvonnassa tarvitaan gammasäteilyä ja neutronisäteilyä havainnoivia laitteita. Suomeen rakennettiin 1990-luvulla varsin edistyksellinen mittaussysteemi, joka koostuu suurikokoisista muovi-ilmaisimista ja heliumlaskureista (³He). Muovi-ilmaisimilla on hyvä mittausherkkyyys, mutta niillä on heikko kyky tunnistaa radioaktiivisia aineita. Sen vuoksi väriin hälytysten määrä on suuri, eikä havainnon aiheuttanutta lähdeä voida tunnistaa ilman uutta spektrometrillä mittausta. Niinpä viime vuosina, varsinkin Yhdysvalloissa, on siirrytty käyttämään yhä enemmän porttimonitoria, jossa on suurikokoinen natriumjodidi-ilmaisimen (NaI).

Tulli ja Säteilyturvakeskus ovat modernisoimassa radioaktiivisten aineiden rajavalvontaa viisivuotisenä projektina, jonka rahoitus on 10 M€. Tämän työn tuloksena myös Suomen rajoille on tulossa suuri määrä NaI-ilmaisimia.

³He on kaasua, joka syntyy tritiumin hajotessa. Suuria määriä tritiumia käytetään ydinaseiden tuotannossa. Aserajoitussopimusten myötä tritiumia tarvitaan enää paljon vähemmän kuin kilpavarustelun aikaan. Niinpä myös heliumin tuotanto on ratkaisevasti vähentynyt. Samaan aikaan rajavalvontaan tarvittavien heliumilmaisimien kysyntä on kasvanut voimakkaasti. Tämä johti nopeasti heliumin hinnan kymmenkertautumiseen ja lopulta siihen, että uusia ³He-putkia ei enää ole kaupan; Yhdysvallat (DHS) ostaa kaiken materiaalin.

Heliumin puulan vuoksi syntyi maailmanlaajuisesti tutkimustarve tuottaa aivan uudenlaisia ilmaisimia neutronisäteilyn havainnointiin. Lähivuosina onkin odotettavissa innovatiivisia ratkaisuja, etenkin erikoissovelluksiin, kuten nopeiden neutronien spektrometriaan ja kohteen kuvantamiseen. Nämä eivät kuitenkaan ole rajavalvonnan perusmenetelmiä. Suomen näkökulmasta tarvitaan yksinkertainen ja luotettava mittaussysteemi, joka voidaan helposti integroida osaksi muuta valvontaa. Niinpä oli luontevaa käynnistää tutkimus gammaspektrometrin kyvystä havaita neutroneja epäsuorasti.

Postiosoite	MATINE Puolustusministeriö PL 31 00131 HELSINKI	Sähköposti	matine@defmin.fi
Käyntiosoite	Eteläinen Makasiinikatu 8 00130 HELSINKI	WWW-sivut	www.defmin.fi/matine
Puhelinvaihe	(09) 16001	Y-tunnus	FI01460105
Pääsihteeri	(09) 160 88310	OVT-tunnus/verkkolaskuosoite Itellan operaattorivälittäjä-tunnus	003701460105 003710948874
Suunnittelusihteeri	(09) 160 88314	Verkkolaskuoperaattori	Itella Information Oy
Toimistos sihteeri	050 5555 837	Yhteyshenkilö/Itella	helpdesk@itella.net
Faksi kirjaamo	(09) 160 88244		

Neutronilähteestä voi tulla gammasäteilyä seuraavien mekanismien kautta:

- Gammaemissio lähteessä (fissiassa vapautuu suurienergisiä fotoneja)
- Neutronireaktiot väliaineessa lähteen läheisyydessä
- Neutronireaktiot ympäristössä
- Neutronireaktiot konvertterissa gammailmaisimen ympärillä
- Neutronireaktiot gammailmaisimessa

Tavanomaisen gammaspektrometrin mittausalue rajoittuu energia-alueeseen alle 3 MeV. Näin siksi, että keinotekoisien ja luonnollisten radioaktiivisten aineiden gammaenergiat ovat tällä alueella. Neutronisäteilyn ja väliaineen vuorovaikutuksissa syntyvien fotonien energia voi kuitenkin olla jopa 10 MeV.

Ensimmäiset alustavat kokeet tehtiin Säteilyturvakeskuksessa vuonna 2008. Huomattiin, että neutronisäteily aiheuttaa spektriin useita piikkejä ja pulssitaajuus per kanava kasvaa voimakkaasti, etenkin energia-alueella yli 2.6 MeV (suurin merkittävä luonnonsäteilyn gammaenergia, ²⁰⁸Tl). Kului kuitenkin kolme vuotta ennen kuin saatiin aikaiseksi järjestelmällinen tutkimusprojekti MATINEn rahoituksella.

2. Tutkimuksen tavoite ja suunnitelma

Hankkeessa toteutettiin menetelmä havainnoida neutronisäteilyä lähettäviä aineita epäsuorasti käyttäen apuna viritysreaktioita, joita neutronit aiheuttavat väliaineissa. Lisäksi tutkittiin mahdollisuutta tunnistaa neutronisäteilyä lähettäviä aineita spektrometrin avulla. Tavoitteet olivat seuraavat:

1. Tunnistetaan neutronien aiheuttamat viritysreaktiot erilaisissa väliaineissa.
2. Rakennetaan neutroneja epäsuorasti havainnoiva gammaspektrometri.
3. Optimoidaan havaitsemistehokkuus (konvertterin suunnittelu).
4. Testataan kehitettävän laitteen kyky havaita suurienergisiä fotoneja.
5. Laaditaan suunnitelma nopeiden neutronien spektrometriasta kenttäolosuhteisiin.

3. Aineisto ja menetelmät

Spektrometriksi valittiin rajavalvonnassa käytettävä porttimonitori, jossa on neljälitrainen natriumjodidi-ilmaisim (NaI). Eräitä kokeita tehtiin myös pienemmillä, kannettavilla ilmaisimilla. Spektrometrin perustehtävä on havaita gammasäteilyä lähettäviä aineita energia-alueella 0 – 3 MeV.

Alustavissa tutkimuksissa havaittiin, että neutronisäteily tuottaa NaI-ilmaisimessa voimakkaan signaalin energia-alueelle 3 – 8 MeV. Niinpä spektrometrin energiakalibrointi tehtiin välille 0 – 8 MeV. Mittauselektronikka perustuu Canberran valmistamaan Osprey-monikanava-analysaattoriin. Se on kompakti, erittäin kenttäkelpoinen kokonaisuus, jossa on 2048 kanavaa. Ospreyn energiaerottelukyky on riittävä tuottamaan korkeatasoinen, tavanomainen spektri (0 – 3 MeV), mutta silti voidaan havaita suurienergisiä fotoneja.

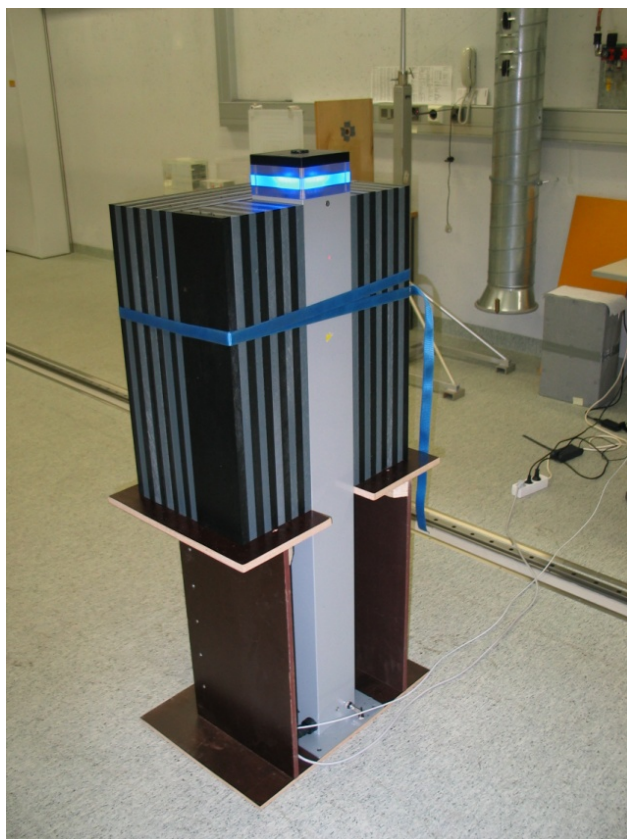
Tiedonkeruu toteutettiin Säteilyturvakeskuksessa valmistetulla Vasikka-ohjelmistolla. Sen avulla spektrit voidaan tallentaa lyhyin aikavälein paikalliseen tietokantaan ja etätietokantaan (LINSSI). Näin spektrien analyysiin saadaan parhaat asiantuntijat ja voidaan käyttää erilaisia ohjelmistoja tarpeen mukaan.

Kaupallista spektrometriä (Envionics Oy) oli muutettava vain energiakalibraation osalta. Analyysiohjelmistoa kuitenkin kehitettiin projektin tuottamien tietojen myötä. Tätä työtä jatketaan vielä projektin päättymisen jälkeenkin.

Spektrometrin ympärille koottiin testusrakenteet sillä tavoin, että erilaisia materiaaleja voitiin asentaa helposti ilmaisimen ympärille (Kuva 1). Näiden materiaalien (mm. muovit, rauta) vaikutusta mitattavaan signaaliin tutkittiin systemaattisesti.

Neutronisäteilijöillä on karakteristisia piirteitä, jotka auttavat aineen tunnistamisessa. Tämä on suuri etu tavanomaisiin ^3He -putkiin verrattuna.

Mittauksissa käytettiin kaliforniumlähdetä ja AmBe-lähdettä. Kalifornium (^{252}Cf) hajoaa joko lähettämällä alfasäteilyä (97 %) tai se fissioituu (3%); keskimäärin yhtä hajoavaa ydintä kohdin syntyy 0.11 neutronia, joiden spektri on hyvin samanlainen kuin plutoniumin. AmBe-lähde on americiumin (^{241}Am) ja berylliumin seos. Lähde tuottaa noin 70 neutronia miljoonaa americiumytimen hajoamista kohti. AmBe-lähteellä on karakteristinen gammaemissio 4.4 MeV:n energialla.



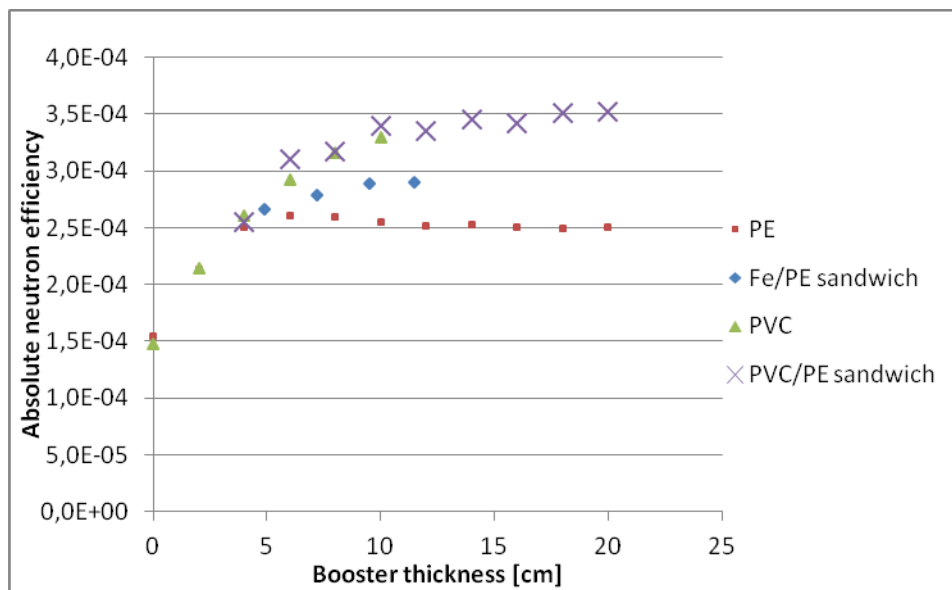
Kuva 1. Porttimonitorin testausympäristö. NaI-ilmaisimen ympärillä on 20 cm paksu voileipärakenne. Harmaat levyt ovat PVC:tä ja mustat levyt PE:tä. Ilmaisimen etureuna on jätetty vapaaksi, jotta havainnoitavien kohteiden tavanomainen spektrometria ei vaikeutuisi. Lisäksi huomattiin, että ilmaisimen edessä muovirakenteet eivät paranna neutroni-ilmaisinkykyä. Vedyn aiheuttama neutronien absorptio on voimakkaampaa kuin suurenergisten fotonien tuotto.

4. Tulokset ja pohdinta

Neutronien energia vaikuttaa kaappaus- ja viritysreaktioiden todennäköisyyteen väliainneissa. Tutkimuksessa tarkasteltiin näiden reaktioiden perusteita ja kartoitettiin olennaimmat reaktiot neutronien ja tärkeimpien väliainemateriaalien (muovit, rauta yms) kanssa. Ilmeni, että hyvä moderaattori ja konverterti saadaan polyeteenistä (PE) ja polyvinylkloridista (PVC).

Paras moderaattori/konvertteri-materiaali on PE/PVC-yhdistelmä (Kuva 2). Porttimonito-
rin vaste on sitä parempi, mitä enemmän materiaalia on ilmaisimen ympärillä. Kuiten-
kaan paksuutta ei kannata lisätä yli 10 cm, sillä saavutettava hyöty on varsin vähäinen
suuren koon haittoihin verrattuna.

Nal-ilmaisimen vaste, havaitsemistehokkuus, on 73 % verrattuna ^3He -putkeen. Tätä voi-
daan pitää erittäin hyvänä tuloksena ottaen huomioon, että Nal-ilmaisimella kykenee myös
tunnistamaan lähteet, tai ainakin erottelemaan fissiolähteet AmBe-tyyppisistä lähteistä.



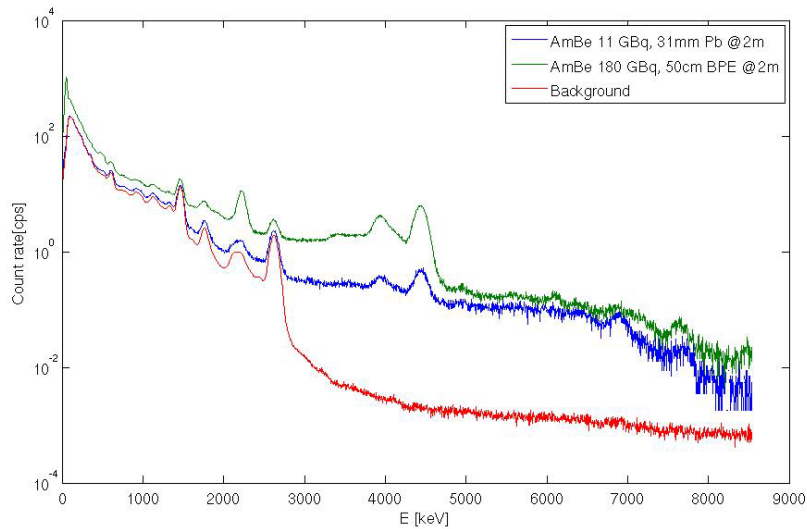
Kuva 2. Porttimonito-
rin absoluuttinen havaitsemistehokkuus kahden metrin etäisyydellä lähteestä
(^{252}Cf , 4 MBq).

Spektrit

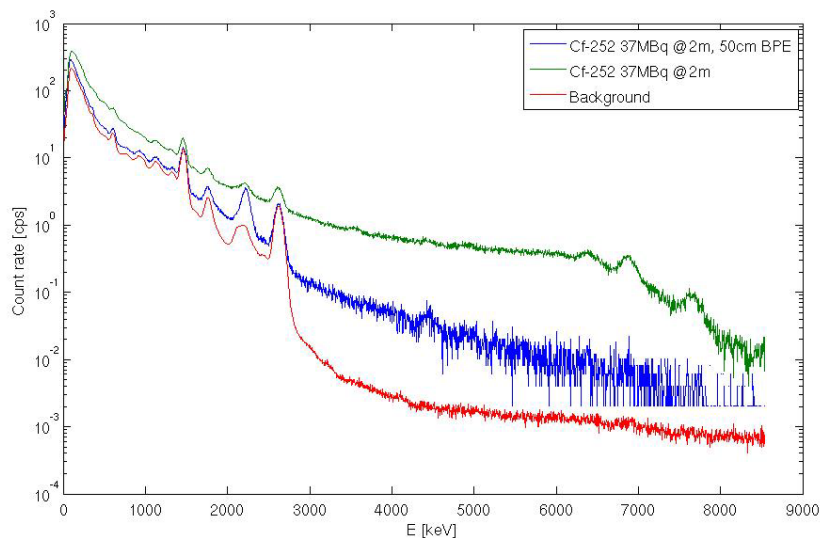
Kuvissa 3 ja 4 on AmBe-lähteen ja ^{252}Cf -lähteen spektrejä. Mittausaika oli 10 min (taus-
talle kuitenkin 16 h). Huomataan, että fissiolähteen energiavaste on monotonisesti laske-
va. Sen sijaan AmBe-lähteessä on voimakas piikki energialla 4.4 MeV; myös sen pakopii-
kit (511 keV ja 1022 keV) erottuvat selkeästi.

Neutronisäteilyä voidaan vaimentaa ympäröimällä lähde moderaattorilla, johon lisätään
neutroneja kaappaavaa ainetta. Kuvat 3 – 4 havainnollistavat, että Nal-ilmaisimella säilyttää
hyvin havaitsemiskykynsä, vaikka lähde on ympäröity 50 cm paksulla boorimuovilla.

^{252}Cf -tulokset ovat kiinnostavia senkin vuoksi, että käyrän laskeva kulmakerroin on täs-
mälleen sama kuin fissiossa syntyvillä suurienergisillä fotoneilla.



Kuva 3. AmBe-lähteen spektrejä NaI-porttimonitorissa verrattuna taustaan. Ylin käyrä kuvaa tilannetta, jossa lähde on suojattu boorimuovilla (BPE). Huomaa, että mittauksissa on käytetty lähteitä, joiden aktiivisuus eroaa tekijällä 16.



Kuva 4. ^{252}Cf -lähteen spektrejä NaI-porttimonitorissa verrattuna taustaan. Keskimääräinen käyrä kuvaa tilannetta, jossa lähde on suojattu boorimuovilla (BPE).

Simulointi

Mittausjärjestelmää tutkittiin mallintamalla lähde ja ilmaisim. Simulointiin sopii erinomaisesti GEANT4-ohjelmisto. Simuloinneilla voitiin tutkia mitkä alkuaineet vaikuttavat ilmaisimen vasteeseen ja mikä on niiden vaikutusmekanismi. Säteilylähteenä simuloinneissa oli ^{252}Cf .

Havaittiin, että pääosa neutronireaktioista tapahtuu ilmaisimen sisällä. NaI-ilmaisim sisältää jodia, joka kaappaa tehokkaasti neutroneja varsin laajalla energia-alueella. Neutronikaappauksen aiheuttama viritystila purkautuu pienienergisinä gammakaskadina. Nämä fotonit absorboituvat tehokkaasti ilmaisimeen ja näin kaappausreaktio havaitaan suurienergisinä signaalina.

Ilmaisimelle tulevien neutronien hidastaminen lisää havaitsemistehokkuutta, koska jodi kaappaa epitermisiä ja termisiä neutroneja huomattavasti tehokkaammin kuin nopeita neutroneja. Hidastaminen siirtää suuren osan neutroneista kaappauksille otolliselle energia-alueelle.

Projektissa tutkittiin NaI-spektrometrian rinnalla toista lähestymistapaa, nopeiden neutronien spektrin mittaamista. Tarkasteltiin erilaisia ilmaisinvaihtoehtoja ja valittiin lupaavin lähestymistapa – rekyylisieppausspektrometria – lähempään tutkimukseen. Menetelmä perustuu neutronien tukeaineessa tuottamien rekyyliprotonien ja reaktiotuotteiden energian mittaukseen. Ilmaisimen elektroniikan tulee olla varsin nopea (aikavakio 100 – 400 ns), jotta neutronisironnasta tulevat pulssit voidaan erottaa termisten neutronien sieppauksesta ^{10}B -yttimeen. Tutkimuksen tuloksena laadittiin spektrometrin suunnitteluperusteet. Ilmaisimen on nestemäistä polyvinyylitolueenia, johon on lisätty 5 % booria. Monte Carlo –laskuilla saatiin selville neutronien sieppaustodennäköisyys erikokoisissa ilmaisimissa. Esitutkimuksen perusteella aloitetaan ilmaisimen rakentaminen vuonna 2012.

5. Loppupäätelmät

Tutkimustulokset laajentavat tavanomaisen NaI-ilmaisimen käyttöalueen gammaspektrometriasta neutronien havainnointiin. Tällä on suuri merkitys radioaktiivisten aineiden rajavalvonnassa, sillä valtakunnallisessa havaitsemisarkkitehtuurissa juuri NaI-ilmaisimet ovat keskeisessä roolissa. Spektrometrien ympärille asennettava 10 cm paksu moderaattori/konvertteri parantaa paljaan ilmaisimen havaitsemiskykyä yli kaksinkertaisesti.

Projekti avasi uudenlaisia mahdollisuuksia neutronispektrometriaan. Näiden tulosten yksityiskohtainen tutkiminen voi johtaa liikuteltaviin tai kannettaviin laitteistoihin, joiden avulla viranomaisten kyky havaita neutronisäteilyä paranee entisestään.

6. Tutkimuksen tuottamat tieteelliset julkaisut ja muut mahdolliset raportit

Projektin tuotoksina syntyi viisi teknistä raporttia. Lisäksi vuonna 2012 aiheesta valmistuu diplomityö Aalto-yliopistoon (P. Holm).

1. Peräjärvi K. ja Holm P. Neutronilähteet ja gammasäteily. TTL-TECDOC-2011-013, Säteilyturvakeskus 2011. (Tehtiin kirjallisuustutkimus neutronisäteilyn havainnoinnista NaI-spektrometrillä ja tunnistettiin lähteiden karakteristiset piirteet sekä moderaattori/konvertteri-materiaalit, joiden avulla ilmaisimen tehokkuutta voidaan parantaa).
2. Siiskonen T. Nopeiden neutronien spektrometria. STO-TECDOC-2011-001, Säteilyturvakeskus 2011. (Tehtiin tutkielma erilaisista tavoista mitata neutronispektri ja laadittiin rekyylisieppausspektrometrin suunnitteluperusteet).
3. Holm P. Preliminary studies on neutron detection with portable gamma spectrometers. TTL-TECDOC-2011-015, Säteilyturvakeskus 2011. (Mitattiin kannettavien NaI ja LaBr_3 -spektrometrien neutronivaste suurilla energioilla (>3 MeV), ja tehtiin taustamittauksia erilaisissa olosuhteissa. Havaittiin, että moderaattori parantaa ilmaisimen tehokkuutta huomattavasti).
4. Holm. P. Neutron measurements with boosted gamma spectrometers. TTL-TECDOC-2011-016, Säteilyturvakeskus 2011. (Mitattiin suuren Nai-ilmaisimen (4 L) neutronivaste ja tunnistettiin hyvä moderaattori/konvertteri-materiaali (PVC/PE) ja optimoitiin sen dimensiot).



-
5. Holm P. Plutoniumin havaitsemisrajat NaI-porttimonitorilla. TTL-TECDOC-2011-017, Säteilyturvakeskus 2011. (Laskettiin plutoniumin havaitsemisrajat (g) taustasäteilymittausten perusteella. Ilmaisimen vaste arvioitiin ^{252}Cf -lähteellä tehdyistä mittauksista laboratorio-olosuhteissa).