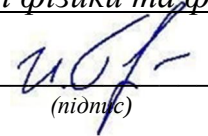


Міністерство освіти і науки України
Харківський національний університет імені В. Н. Каразіна
Навчально-науковий інститут «Фізико-технічний факультет»
Кафедра прикладної фізики та фізики плазми

До захисту допущено

Кафедрою прикладної фізики та фізики плазми протокол № 11 від 17.06.2026 р.

завідувач кафедри  Ігор ГАРКУША
(підпис) (ім'я, прізвище)

«18» червня 2026 р.

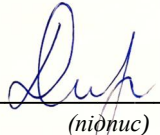
КВАЛІФІКАЦІЙНА РОБОТА

здобувача першого (бакалаврського) рівня вищої освіти

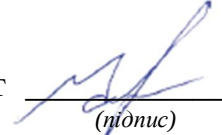
Визначення ізотопного складу урану методом пікових співвідношень з використанням гамма-спектрометра високої роздільної здатності

Спеціальність (спеціалізація) 105 Прикладна фізика та наноматеріали

Освітня програма Прикладна фізика

Здобувач  Данило ЛОБАНЦОВ
(підпис) (ім'я, прізвище)

Науковий керівник  Інна АФАНАСЬЄВА
(підпис) (ім'я, прізвище)

Рецензент  Ігор ЧЕРНОВ
(підпис) (ім'я, прізвище)

Харків – 2026

АННОТАЦІЯ

Мета роботи – розробка програмного забезпечення з відкритим кодом для визначення ізотопного складу урановміщуючих зразків методом пікових співвідношень. Об'єктом дослідження є зразки збагаченого урану у вигляді порошку U_3O_8 з рівнями збагачення 2%, 4%, 6% та 10% за ^{235}U . Предметом дослідження є гамма-спектрометричний аналіз ізотопного складу урану та методи обробки спектрометричних даних. У роботі використано реєстрацію гамма-випромінювання з HPGe-детектором, апроксимацію спектральних піків методом найменших квадратів, побудову відносної кривої ефективності детектора та визначення ізотопного складу за методом пікових співвідношень. Для чотирьох зразків визначено вміст ізотопів ^{234}U , ^{235}U та ^{238}U . Порівняння з алгоритмами MGAU та FRAM показало відхилення 1-3% для зразків з більшим збагаченням та 6-9% для зразка з найменшим збагаченням. Розроблене програмне забезпечення є відкритим і безкоштовним.

Ключові слова: гамма-спектрометрія, ізотопний склад урану, збагачення урану, HPGe-детектор, метод пікових співвідношень, крива ефективності, MGAU, FRAM.

ABSTRACT

The aim of the work is to develop open-source software for determining the isotopic composition of uranium-bearing samples using peak ratio method. The object of the study is enriched uranium samples in the form of U_3O_8 powder with enrichment levels of 2%, 4%, 6% and 10% in ^{235}U . The subject of the study is the gamma-ray spectrometric analysis of uranium isotopic composition and methods for processing spectrometric data. The work employed gamma-ray detection with an HPGe-detector, spectral peak fitting by the least squares method, construction of a relative detector efficiency curve, and determination of isotopic composition using peak ratios. The contents of ^{234}U , ^{235}U and ^{238}U isotopes were determined for four samples. Comparison with the MGAU and FRAM algorithms showed deviations of 1-3% for samples with higher enrichment levels and 6-9% for the sample with the

lowest enrichment level. The developed software is open-source and freely available for use.

Keywords: gamma spectrometry, uranium isotopic composition, uranium enrichment, HPGe detector, peak ratio method, efficiency curve, MGAU, FRAM

ЗМІСТ

Вступ.....	6
1. Літературний огляд.....	7
1.1. Уран та його основні напрямки застосування.....	7
1.2. Основні методи визначення ізотопного складу урану.....	7
1.3. Гамма-спектрометричний метод визначення ізотопного складу зразків.....	8
1.4. Обчислювальні алгоритми MGAU та FRAM	10
2. Експериментальна установка та методика вимірювань.....	13
2.1. Характеристики детектора високої чистоти з надчистого германію (HPGe).....	13
2.2. Кріогенна система та геометрія вимірювань.....	13
2.3. Програмний комплекс Genie 2000 та обробка даних.....	14
2.4. Калібрування системи та програмна обробка даних	15
2.5. Методика вимірювань гамма-спектру зразків урану	16
2.6. Зразки для дослідження	17
3. Визначення ізотопного складу урану.....	19
3.1. Метод визначення вмісту ^{235}U в експериментальному зразку	19
3.2. Визначення відношення активностей ізотопів урану	20
3.3. Визначення площ спектральних піків.....	22
3.4. Побудова відносної кривої ефективності детектора.....	25
3.5. Екстраполяція отриманої кривої ефективності.....	27
3.6. Оцінка похибок вимірювання	28
3.7. Визначення вмісту ізотопів ^{234}U та ^{238}U	30
3.8. Програмне забезпечення.....	30

3.9. Аналіз та порівняння результатів з програмою Genie 2000	33
Висновки	36
Список літератури	37

ВСТУП

Визначення ізотопного складу урану є важливою задачею в ядерній енергетиці, де контроль ступеня збагачення необхідний для безпечної роботи реакторів, а також у сфері ядерної криміналістики, де швидке і точне визначення ізотопного складу є важливим для виявлення незаконного обігу ядерних матеріалів.

Серед існуючих методів аналізу гамма-спектрометрія є найбільш поширеним неруйнівним методом, який не потребує хімічної підготовки зразка і може застосовуватись до матеріалів різної форми та стану. Для автоматизованого дослідження ізотопного складу урану широко використовуються алгоритми MGAU та FRAM, що реалізовані в спеціалізованій програмі Genie 2000. Однак ця програма є дорогим комерційним продуктом з закритим кодом, що обмежує її доступність та можливості налаштування алгоритмів.

Метою даної роботи є розробка власного програмного забезпечення з відкритим кодом мовою програмування Python для визначення ізотопного складу урановміщуючих зразків методом пікових співвідношень. Завдання роботи включають розробку автоматичного пошуку та апроксимації спектральних піків, побудову відносної кривої ефективності детектора в обраному діапазоні енергій, визначення вмісту ізотопів ^{234}U , ^{235}U та ^{238}U за співвідношеннями обчислених піків та порівняння отриманих результатів з алгоритмами MGAU та FRAM.

1. ЛІТЕРАТУРНИЙ ОГЛЯД

1.1. Уран та його основні напрямки застосування

Уран є важким радіоактивним елементом з порядковим номером 92, який відіграє ключову роль в сучасній ядерній енергетиці. В природі уран зустрічається у вигляді суміші трьох основних ізотопів – ^{234}U , ^{235}U та ^{238}U з природною концентрацією 0.0054%, 0.72% та 99.27% відповідно [1].

Практичний інтерес представляє саме ізоотоп ^{235}U , оскільки він є єдиним природним нуклідом, здатним підтримувати ланцюгову ядерну реакцію під дією теплових нейтронів. Вміст ^{235}U є головною характеристикою уранового палива, а саме ступеня його збагачення. Залежно від концентрації ізоотопу ^{235}U розрізняють дві головні категорії урану: низькозбагачений (до 20% ^{235}U), який використовується на атомних електростанціях, і високозбагачений (понад 20% ^{235}U), що застосовується в дослідницьких реакторах та спеціалізованих енергетичних установках.

Визначення ізоотопного складу урану є важливою задачею в широкій області застосувань. В ядерній енергетиці контроль збагачення необхідний для забезпечення безпечної та ефективної роботи реакторів. У сфері ядерної криміналістики швидке і точне визначення ізоотопного складу є критично важливим для виявлення незаконного обороту ядерних матеріалів. Міжнародне агентство з атомної енергетики (МАГАТЕ) встановлює чіткі вимоги до методів контролю ядерних матеріалів, які повинні забезпечувати достатню точність при мінімальному часі аналізу [2].

1.2. Основні методи визначення ізоотопного складу урану

Для визначення ізоотопного складу урану існує велика кількість аналітичних методів, які поділяються на руйнівні та неруйнівні залежно від того, чи потребується хімічна або фізична підготовка зразка [1].

Руйнівні методи забезпечують надзвичайно високу точність визначення ізоотопного складу зразку. Однак головним процесом в цих методах, до яких також відносяться мас- та альфа-спектрометрія, є розщеплення зразку та

хімічне розділення, що фактично унеможливляє його подальше використання [1]. Такі методи також потребують складної підготовки зразка та обладнання, що обмежує їх застосування в польових умовах.

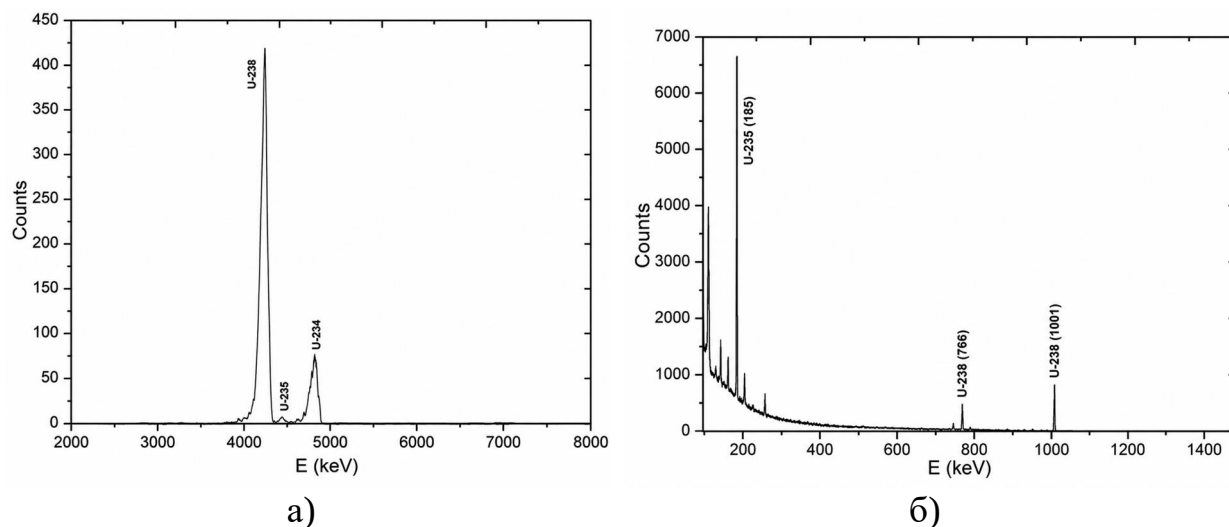


Рис. 1.1. Спектри одного із зразків урану:

а) альфа-спектр, б) гамма-спектр [1]

Неруйнівні методи дозволяють проводити аналіз без хімічної підготовки зразка та без його пошкодження. Серед них найбільш поширеним методом визначення ізотопного складу урану є гамма-спектрометрія. Цей метод не потребує хімічної підготовки зразка і може застосовуватись до різних матеріалів: порошків, рідин та твердих тіл, що суттєво спрощує проведення аналізу в польових та лабораторних умовах. Саме завдяки цим перевагам гамма-спектрометричний метод широко застосовується в системах МАГАТЕ та ядерній криміналістиці [2]. На рис.1.1 для прикладу представлено фрагменти спектрів отриманих двома різними методиками.

1.3. Гамма-спектрометричний метод визначення ізотопного складу зразків

Гамма-спектрометрія базується на реєстрації фотонів, що випромінюються при радіоактивному розпаді ізотопів. В процесі розпаду утворюються нові дочірні нукліди у збудженому стані. При переході із

збудженого в основний стан чи в стан з меншим збудженням випромінюється γ -квант, енергія якого дорівнює різниці енергій цих станів. Оскільки кожен ізотоп має певний набір енергетичних рівнів, то і спектр γ -квантів є унікальним для кожного ізотопу [3].

Детектор реєструє γ -кванти і формує енергетичний спектр, що описує залежність кількості зареєстрованих γ -квантів від їхньої енергії. Радіоактивні ізотопи та їх дочірні продукти розпаду мають характеристичні γ -лінії в діапазоні від кількох десятків до кількох тисяч кеВ. Кожна γ -лінія ізотопу проявляється у вигляді окремого піка на певному значенні енергії (рис.1.2). За значеннями енергії спектрального піка визначаються присутні ізотопи в зразку, а за площею цих піків обчислюються їх кількісні співвідношення, що дозволяє визначити вміст декількох ізотопів за одне вимірювання [3].

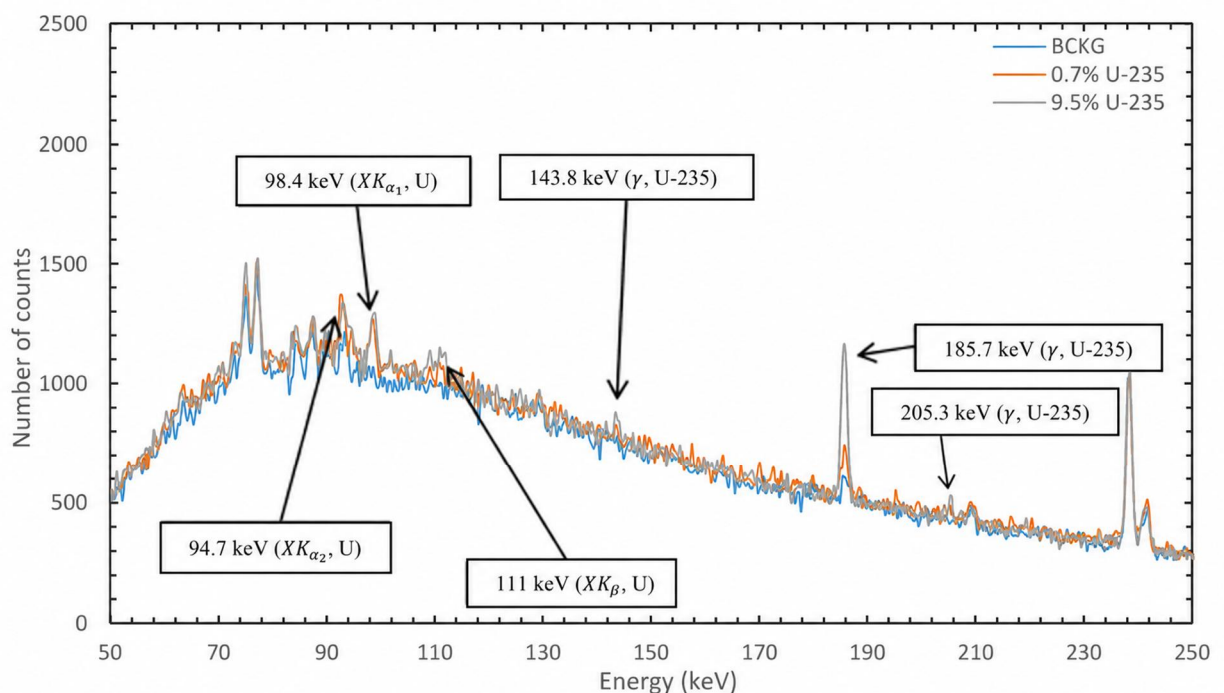


Рис. 1.2. Гамма-спектр урану в діапазоні 50-250 кеВ для зразків зі збагаченням 0.7% та 9.5% ^{235}U [4].

Для реєстрації γ -квантів використовуються детектори різних типів. Сцинтиляційні детектори на основі NaI (Tl) є відносно дешевими і компактними, але мають обмежену роздільну здатність. Детектори на основі

надчистого германію (HPGe) забезпечують значно вищу роздільну здатність порядку 1-2 кеВ в діапазоні сотень кеВ, що дозволяє чітко розрізняти близько розташовані спектральні піки. Саме тому HPGe-детектори є стандартним вибором для точного визначення ізотопного складу [4].

Важливою характеристикою детектора є ефективність реєстрації γ -квантів, яка суттєво залежить від енергії. Для коректного кількісного аналізу потрібно враховувати як ефективність, так і ймовірність випромінювання γ -кванта певної енергії, що описується коефіцієнтом розгалуження. В традиційному підході проводиться абсолютне калібрування ефективності детектора в усьому енергетичному діапазоні з використанням еталонних зразків з тією ж геометрією, що і досліджуваний зразок. Однак в практичних умовах такі еталонні зразки можуть бути недоступними, а геометрія зразка заздалегідь невідомою [2]. Вирішення цієї проблеми полягає в проведенні відносного калібрування, при якому крива ефективності будується безпосередньо зі спектру досліджуваного зразка, що є основою багатьох сучасних методів.

1.4. Обчислювальні алгоритми MGAU та FRAM

Прикладами алгоритмів, заснованих на побудові відносної кривої ефективності є алгоритми MGAU та FRAM. Всі необхідні γ -лінії реєструються в однакових умовах, тому ефекти поглинання випромінювання у зразку та стінках контейнера автоматично враховуються. Це дозволяє застосовувати метод до зразків довільної форми та хімічного складу без необхідності додаткового калібрування [2].

Алгоритм MGAU (Multi-Group Analysis for Uranium) використовує відносне калібрування для визначення ізотопного складу урану, аналізуючи енергетичний діапазон 89-100 кеВ [5]. В цьому діапазоні одночасно наявні γ -лінії ^{235}U і лінії торію та протактинію, що є дочірніми продуктами розпаду ^{238}U . Через сильне перекриття цих ліній алгоритм MGAU використовує ітераційний метод розкладання піків через функції відгуку, що описують внесок кожного

ізотопа в даний діапазон спектру (рис.1.3). Параметри кривої ефективності визначаються шляхом аналізу діапазону 104-116 кеВ, де розташовані K_{β} -лінії рентгенівського випромінювання. Додатково для визначення вмісту окремих ізоотопів використовуються γ -лінії за межами основного діапазону, в тому числі лінія 120.9 кеВ для ^{234}U та лінія 1001 кеВ $^{234\text{m}}\text{Pa}$ для ^{238}U [1]. Метод має певні обмеження і є менш точним при дуже низькому рівні збагачення (менше 0.71%) або дуже високому (більше 90%), а також при сильному екрануванні зразка [6].

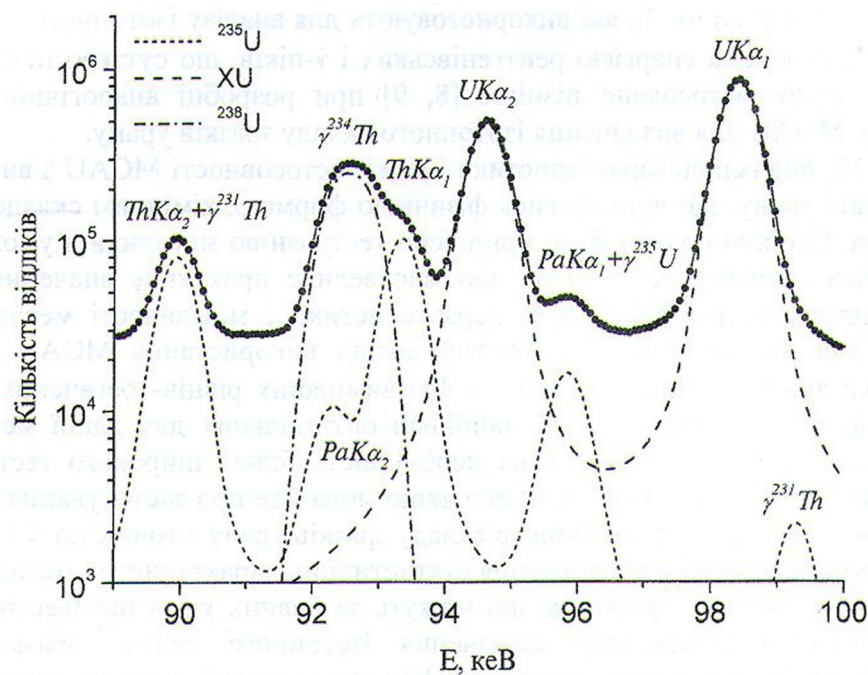


Рис. 1.3. Робоча ділянка спектра MGAU 89-100 кеВ
і окремі функції відгуку [5]

Алгоритм FRAM використовує ширший діапазон 120-450 кеВ, але також може бути налаштований на вищі енергії до 600 кеВ [7]. Крива ефективності апроксимується поліномом $\log E$ методом найменших квадратів, що забезпечує гнучку і точну функцію в ширшому енергетичному діапазоні. Для визначення площ піків використовуються функції відгуку, а співвідношення ізоотопів визначаються шляхом розв'язання системи рівнянь методом найменших квадратів. FRAM є більш універсальним у порівнянні з MGAU, оскільки застосовується для широкого діапазону збагачень і різних типів матеріалів.

Обидва алгоритми реалізовані у комерційній програмі Genie 2000 і широко використовуються для неруйнівного аналізу ізотопного складу урану. MGAU оптимізований саме для низькозбагаченого урану, а FRAM є більш універсальним, застосовується для ширшого діапазону збагачень і має приблизно однакову точність для усіх значень збагачення [2].

Однак програма Genie 2000 є комерційним продуктом з закритим кодом, що обмежує можливості її адаптації та додаткового налаштування. Тому метою даної роботи є розробка власного програмного забезпечення з відкритим кодом для визначення ізотопного складу урановміщуючих зразків методом пікових співвідношень, що забезпечуватиме прозорість алгоритму та його доступність для користувачів.

2. ЕКСПЕРИМЕНТАЛЬНА УСТАНОВКА ТА МЕТОДИКА ВИМІРЮВАНЬ

2.1. Характеристики детектора високої чистоти з надчистого германію (HPGe)

Для реєстрації спектрів гамма-випромінювання у широкому діапазоні енергій (від 3 кеВ до 3 МеВ) в роботі використовувався гамма-спектрометр з напівпровідниковим детектором серії BEGe-3830 виробництва компанії Mirion (Canberra). Вибір детектора типу BEGe пов'язаний з його здатністю забезпечувати високу роздільну здатність у низькоенергетичній області спектра, що є необхідним для ідентифікації основної аналітичної лінії ^{235}U (185.7 кеВ) та ліній дочірніх продуктів розпаду ^{238}U .

Технічні параметри нашої моделі:

- Активна площа: 3800 мм².
- Товщина кристала: 30 мм.
- Вхідне вікно виконане з вуглецевого композиту, що забезпечує максимальну прозорість для низькоенергетичного випромінювання та суттєво зменшує власне поглинання гама-квантів у мертвому шарі детектора.
- Енергетична роздільна здатність (FWHM) становила 0.468 кеВ для енергії гамма-квантів 5.9 кеВ (^{55}Fe); 0.572 кеВ для енергії 122 кеВ (^{57}Co) та 1.51 кеВ для енергії 1332 кеВ (^{60}Co).

Конструкція електродів BEGe суттєво знижує ємність детектора, що дозволяє досягти низького рівня шуму. Це дозволяє проводити точний аналіз складних чи малоінтенсивних спектрів.

2.2. Кріогенна система та геометрія вимірювань

Детектор змонтований на вертикальному кріостаті моделі 7500SL, який забезпечує охолодження кристала до температури рідкого азоту (77 К). Вертикальна орієнтація кріостата дозволяє зменшити вібраційні шуми від кипіння холодоагенту та гарантує незмінність положення детектора відносно

осі симетрії установки протягом тривалих експозицій, які необхідні для набору статистики при аналізі.

Для зниження фонового випромінювання установка розміщена всередині низькофонового захисту, що складається з шарів свинцю високої чистоти, кадмію та міді. На рис. 2.1 представлено загальний вигляд гамма-спектрометра.



Рис. 2.1. Загальний вигляд гамма-спектрометра

2.3. Програмний комплекс Genie 2000 та обробка даних

Керування процесом набору даних та їх подальша кількісна обробка здійснювалися за допомогою програмного забезпечення Genie 2000. Цей комплекс дозволяє виконувати повний цикл спектрометричного аналізу: від калібрування енергетичної шкали до точної апроксимації піків. Завдяки цифровому спектрометричному процесору, інтегрованому з Genie 2000, проводилася автоматична корекція на втрати набору, пов'язані з мертвим часом та ефектами накладання імпульсів.

Для визначення ізотопного складу урану в Genie 2000 інтегровані спеціалізовані алгоритми – MGAU та FRAM, які дозволили провести порівняльний аналіз результатів, отриманих за допомогою створеного в роботі застосунку.

2.4. Калібрування системи та програмна обробка даних

Початковим етапом налаштування спектрометричного комплексу було проведення енергетичного калібрування для встановлення точної відповідності між номером каналу багатоканального аналізатора (МКА) та енергією гамма-квантів. Для цього використовувалися сертифіковані точкові джерела гамма-випромінювання на основі ізотопів ^{241}Am та ^{152}Eu , які забезпечували наявність референтних ліній у необхідному діапазоні енергій.

Використання низькоенергетичних ліній америцію дозволило забезпечити високу точність первинного калібрування у низько-енергетичній області спектра. Використання джерела ^{152}Eu дозволило провести калібрування у всьому робочому діапазоні завдяки наявності інтенсивних ліній: 121.8 кеВ, 344.3 кеВ, 778.9 кеВ, 964.1 кеВ, 1112.1 кеВ та 1408.0 кеВ. Це забезпечило високу надійність ідентифікації ліній гамма-спектру в енергетичному діапазоні до 1.5 МеВ. На основі отриманих результатів було побудовано залежність номеру каналу від енергії та апроксимувати лінійною функцією, яка в подальшому використовувалася в Genie 2000 для ідентифікації ліній спектру. Завдяки стабільності детектора BEGe 3830, коефіцієнт лінійності склав приблизно 1. На рис. 2.2 представлено графік залежності енергії від номера каналу.

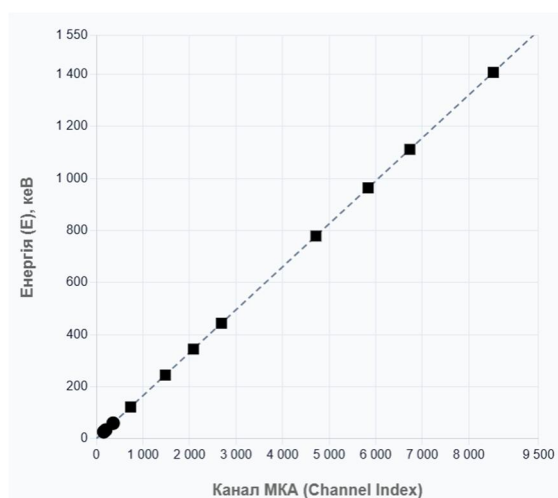


Рис. 2.2. Калібрувальний графік залежності енергії від номера детектора,

● – ^{241}Am , ■ – ^{152}Eu

2.5. Методика вимірювань гамма-спектру зразків урану

Для проведення гамма-спектрометричних досліджень зразків урану було розроблено та застосовано методику, що забезпечує мінімізацію похибок, пов'язаних із геометричними факторами та завантаженням детектуючої системи. Вимірювались спектри гамма-випромінювання зразків урану різного збагачення масою 12 г кожен. Для забезпечення однорідності геометрії детектування зразки розміщувалися у спеціалізованих герметичних пластикових контейнерах циліндричної форми. Висота заповнення контейнера становила 1.2 см, що дозволило вважати джерело «об'ємним» з рівномірним розподілом активності за висотою.

Контейнер зі зразком встановлювався строго по центру осі детектора. Ключовим параметром при налаштуванні вимірювань було обмеження «мертвого часу» системи. Відстань між поверхнею детектора та дном контейнера вибиралось індивідуально для кожного зразка таким чином, щоб величина мертвого часу не перевищувала 5 %. Такий підхід дозволив мінімізувати спотворення форми ліній у спектрі через ефекти накладання імпульсів та забезпечити лінійність енергетичної шкали в умовах високої швидкості рахунку.

З огляду на необхідність ідентифікації слабких ліній урану та його дочірніх продуктів розпаду, а також для досягнення високої статистичної точності, час набору спектра становив 204 години для кожного зразка. Тривала експозиція дозволила отримати чітку структуру спектра в області низьких та середніх енергій. Для контролю стабільності роботи гамма-спектрометра після кожного вимірювання проводилась перевірка положення референтних піків.

2.6. Зразки для дослідження

В рамках даної роботи було виготовлено чотири зразки з різним збагаченням методом хімічного змішування. Як вихідні зразки використовувалися порошки оксиду урану з наступними значеннями масової частки ізотопу ^{235}U : збіднений уран (0.47%) та низькозбагачений уран (19.78%).

Для отримання заданих збагачень в роботі використовувалась формула, що є оберненою до формули Пірсона:

$$\omega = \frac{m_1 \omega_1}{m_1 + m_2} + \frac{m_2 \omega_2}{m_1 + m_2} \quad (2.1)$$

де ω – масова частка ^{235}U в змішаному зразку, ω_1 – масова частка ^{235}U в першому зразку, ω_2 – масова частка ^{235}U в другому зразку, m_1 – маса першого зразка, m_2 – маса другого зразка. Для розрахунку заявлених збагачень використовували паспортні значення вихідних зразків. В табл. 2.1 представлено масовий розрахунок вхідних компонент (2-га та 3-тя колонки) для отримання суміші з вибраним збагаченням (1-ша колонка) і масою (остання колонка).

Таблиця 2.1. Розрахунок мас вихідних зразків для отримання зразків з певним збагаченням

Збагачення суміші, %	Вхідний зразок (збагачення і концентрація)		М _{суміші} , гр.
	19.78% і 87.52%	0.47% і 87.6%	
	m ₁ , гр.	m ₂ , гр.	
2	0.9516	11.0484	12
4	2.1953	9.8047	12
6	3.4388	8.5612	12
10	5.9251	6.0749	12

На рис. 2.3 представлено основні етапи отримання зразків заданого збагачення методом хімічного змішування.

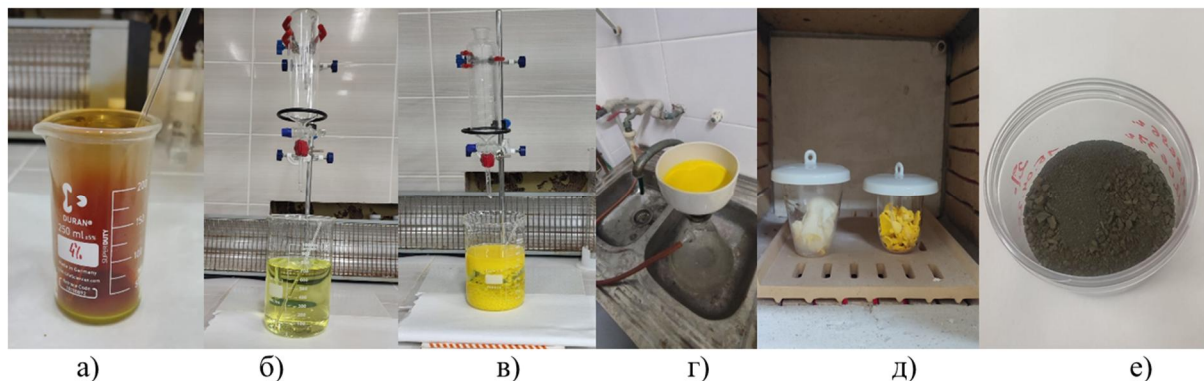


Рис. 2.3. Процес змішування і осадження суміші уранових порошків

- а) – розчинення суміші порошків в азотній кислоті ($\text{UO}_2 + 4\text{HNO}_3 \rightarrow \text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + \text{NO}_2\uparrow + 2\text{H}_2\text{O}$);
- б) – розчин уранілу нітрату $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$;
- в) – осадження уранілу нітрату за допомогою гідроксиду амонію $2\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 + 2\text{NH}_4\text{OH} \rightarrow (\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7\downarrow + 4\text{NO}\uparrow + \text{H}_2\text{O}$ з утворенням диуранату амонію;
- г) – фільтрування осаду диуранату амонію;
- д) – відпалювання зразку в муфельній печі ($9(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7 \rightarrow 6\text{U}_3\text{O}_8 + 14\text{NH}_3\uparrow + 15\text{H}_2\text{O}\uparrow + 2\text{N}_2\uparrow$) з отриманням порошку октаоксиду триурану;
- е) – готовий зразок.

Верифікація отриманих збагачень виконувалась гамма-спектрометричним методом з використанням власної методики пікових співвідношень та комерційних алгоритмів розрахунку збагачення MGAU та FRAM.

3. ВИЗНАЧЕННЯ ІЗОТОПНОГО СКЛАДУ УРАНУ

3.1. Метод визначення вмісту ^{235}U в експериментальному зразку

Вміст ізоотопу ^{235}U у зразку зазвичай визначається як відсоткова частка його маси від сумарної маси всіх ізоотопів урану. У загальному випадку ізоотопний склад урану визначається співвідношенням мас ізоотопів ^{234}U , ^{235}U та ^{238}U :

$$q_{235} = \frac{m_{235}}{m_{234} + m_{235} + m_{238}} \cdot \frac{m_{234} + m_{238}}{m_{235}} \quad (3.1)$$

де m_{234} , m_{235} і m_{238} – маси відповідних ізоотопів урану в досліджуваному зразку.

Оскільки у спектрометричних методах безпосереднє визначення мас окремих ізоотопів є складним, використовується зв'язок між масою ізоотопу та його активністю. Активність радіонукліда визначається наступним чином:

$$A = \frac{\ln 2 \cdot m \cdot N_a}{\mu \cdot T_{1/2}} \quad (3.2)$$

де A – активність ізоотопу, m – його маса в зразку, μ – молярна маса відповідного ізоотопу, $T_{1/2}$ – період напіврозпаду і $N_a \approx 6.022 \cdot 10^{23} \text{ моль}^{-1}$ – число Авогадро.

Звідси відношення мас двох ізоотопів визначається відношенням їхніх активностей з урахуванням періоду напіврозпаду:

$$\frac{m_1}{m_2} = \frac{T_{1/2,1}}{T_{1/2,2}} \cdot \frac{A_1}{A_2} = k \frac{A_1}{A_2} \quad (3.3)$$

Підставляючи вираз (3.3) у формулу (3.1), отримуємо загальний вигляд для вмісту ^{235}U через відношення активностей ізоотопу:

$$q_{235} = \frac{1}{k_1 \cdot \frac{A_{234}}{A_{235}} + k_2 \cdot \frac{A_{238}}{A_{235}}} \quad (3.4)$$

де коефіцієнти k_1 та k_2 визначаються з відомих фізичних констант відповідних ізоотопів урану:

$$k_i = \frac{{}_i T_i}{{}_{235} T_{235}} \quad (3.5)$$

Підставляючи табличні значення молярних мас та періодів напіврозпаду ізотопів урану, отримуємо:

$$k_1 = \frac{{}_{234} T_{234}}{{}_{235} T_{235}} = \frac{2.44 \cdot 10^5}{4.47 \cdot 10^9} \approx 5.46 \cdot 10^{-5}$$

$$k_2 = \frac{{}_{238} T_{238}}{{}_{235} T_{235}} = \frac{4.47 \cdot 10^9}{4.47 \cdot 10^9} = 1$$

Мале значення k_1 пояснюється коротким періодом напіврозпаду ${}^{234}\text{U}$, тому цей ізотоп значно активніший за ${}^{235}\text{U}$ при однаковій масі, і внесок цього коефіцієнту є незначним навіть при відносно великому значенні A_{234} . Велике значення k_2 навпаки відображає довгий період напіврозпаду і меншу активність ${}^{238}\text{U}$ при однаковій масі. Як наслідок, навіть при незначному вмісті ${}^{238}\text{U}$ у зразку доданок $k_2 \cdot A_{238}$ домінує в формулі (3.4) і визначає кінцевий результат.

Підставляючи числові значення коефіцієнтів в формулу (3.4) отримуємо остаточний вираз для вмісту ${}^{235}\text{U}$:

$$q_{235} = \frac{A_{235}}{A_{235} + A_{238} + A_{234} \cdot 5.46 \cdot 10^{-5}} \quad (3.6)$$

Таким чином, для визначення вмісту ${}^{235}\text{U}$ в досліджуваному зразку необхідно визначити відношення активностей ізотопів A_{234} та A_{238} до A_{235} .

3.2. Визначення відношення активностей ізотопів урану

У даній роботі визначення ізотопного складу урану здійснюється на основі аналізу спектрометричних даних, отриманих у вузькому діапазоні енергій. Реєстрація випромінювання здійснюється гамма-спектрометром, який фіксує окремі імпульси, що відповідають γ -квантам з певним значенням енергії. У результаті формується енергетичний спектр (Рис. 3.1), у якому

кожному значенню енергії відповідає певна кількість зареєстрованих γ -квантів.

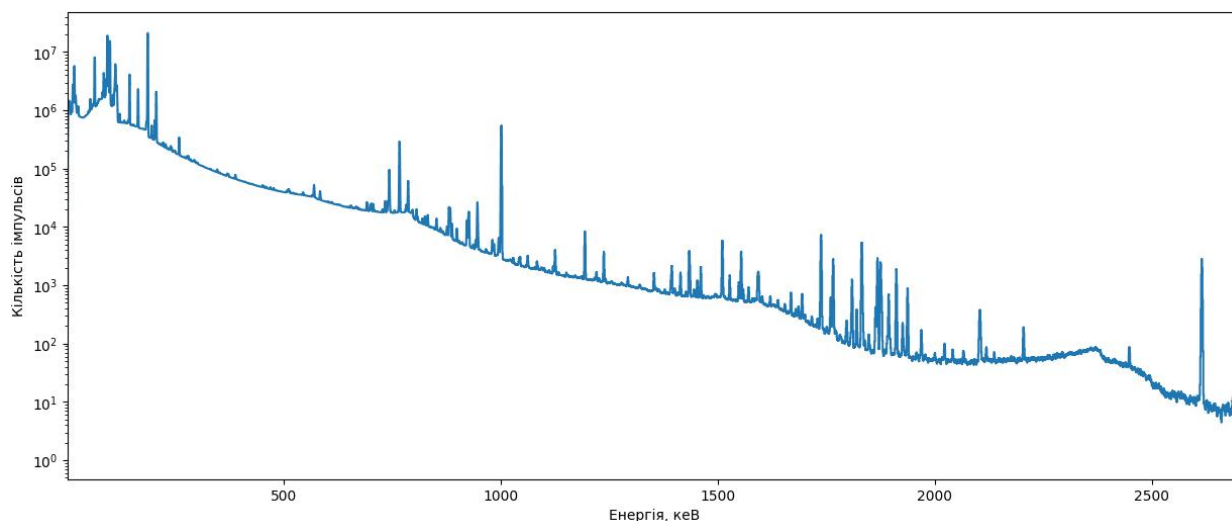


Рис. 3.1. Енергетичний спектр гамма-випромінювання одного із зразків

Експериментально вимірюваною величиною в гамма-спектрометрії є не активність ізотопу, а саме інтенсивність випромінювання у певному енергетичному діапазоні. Для окремих γ -ліній це проявляється у вигляді спектральних піків для відповідного значення енергії. Таким чином, відношення активностей певних ізотопів визначається відношенням площ відповідних спектральних піків.

У загальному випадку активність ізотопу залежить не тільки від площі піка, а ще й від ефективності реєстрації детектора, що є функцією енергії. Для спрощення обробки результатів в даній роботі використовується підхід, що базується на аналізі спектральних піків, розташованих у вузькому діапазоні (Рис. 3.2).

Для аналізу використовуються γ -лінії ізотопів урану у вузькому діапазоні 120-260 кеВ (Таблиця 3.1). Близьке розташування необхідних спектральних піків дозволяє застосувати просту параболічну апроксимацію для побудови кривої ефективності детектора з достатньо високою точністю в цьому енергетичному діапазоні.

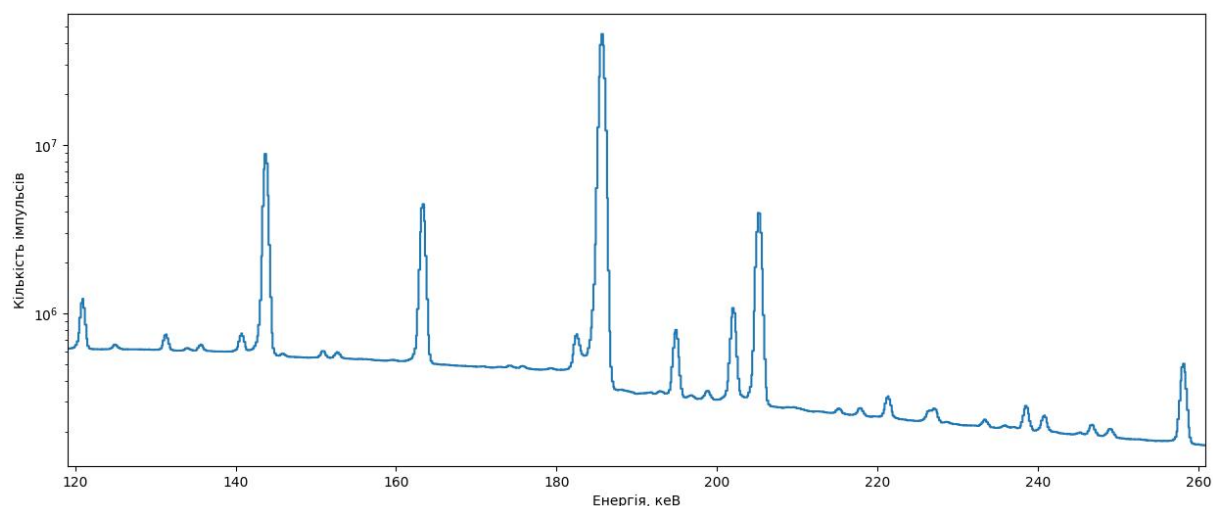


Рис. 3.2. Фрагмент енергетичного спектра в діапазоні 120-260 кеВ

В результаті отримуємо, що відношення площ спектральних піків є пропорційним до відношення активностей відповідних ізотопів з урахуванням ефективності детектора.

Таблиця 3.1. Характеристики гамма-випромінювання ізотопів урану

	Е, кеВ	Branching ratio
^{234}U	120.9	$3.42 \cdot 10^{-4}$
^{235}U	143.8	0.1096
	163.4	0.0508
	185.7	0.572
	205.3	0.0501
	240.9	$7.4 \cdot 10^{-4}$
^{238}U	258.3	$7.54 \cdot 10^{-4}$

Це дозволяє перейти від аналізу активностей до аналізу експериментально виміряних площ піків у спектрі.

3.3. Визначення площ спектральних піків

В реальних умовах отриманий спектр, окрім корисного сигналу містить також фонову складову. Фон може бути зумовлений як власними шумами детектора, так і іншими джерелами випромінювання або розсіяними γ -

квантами. Внаслідок цього при обчисленні площ спектральних піків також потрібно враховувати цю фонову складову.

Загалом форма спектрального піка визначається статистичними процесами реєстрації γ -квантів в детекторі (Рис. 3.3). Випадковий характер процесів утворення та реєстрації сигналів дозволяє описувати спектральні піки за допомогою гауссівської функції:

$$G(E) = h \cdot \exp\left(-\frac{(E - \mu)^2}{\sigma^2}\right) \quad (3.7)$$

де h – амплітуда піка, μ – положення максимуму, σ – ширина піка.

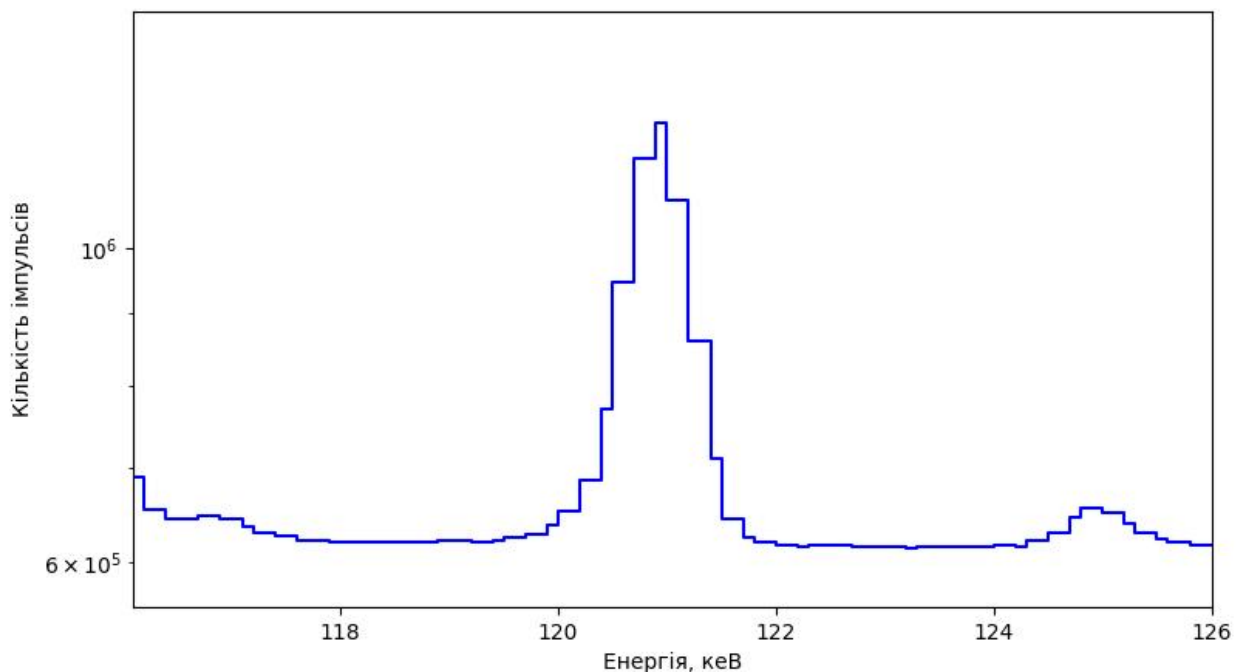


Рис. 3.3. Приклад спектрального піку для γ -лінії 120.9 кеВ

Ширина піка σ не є незалежним параметром, а її початкове значення оцінюється з енергетичного розділення детектора через FWHM (повну ширину на половині висоти):

$$FWHM = B_0 + B_1 \sqrt{E} \quad (3.8)$$

$$\sigma_0 = \frac{FWHM}{2.35} \quad (3.9)$$

де B_0 та B_1 – калібрувальні коефіцієнти детектора. Отримане значення σ_0 використовується як початкове наближення і коригується в процесі апроксимації.

З урахуванням фонові складові спектральний пік може бути представлений як сума корисного сигналу та фону. У найпростішому випадку фон може бути апроксимований лінійною залежністю в межах вузького діапазону енергій (Рис. 3.4). Тому повна модель спектра в області піка має вигляд суми гауссіанів та лінійного фону:

$$N(E) = \sum_{i=1}^n G_i(E) + aE + b \quad (3.10)$$

де n – кількість піків у розглянутому діапазоні енергій. У більшості випадків в межах обраного діапазону присутній лише один пік ($n = 1$), однак в деяких областях спектра відбувається накладання близько розташованих γ -ліній. В таких випадках модель включає відповідну кількість гауссіанів, що дозволяє коректно підігнати модель спектра та визначити площу необхідного піка незалежно від інших.

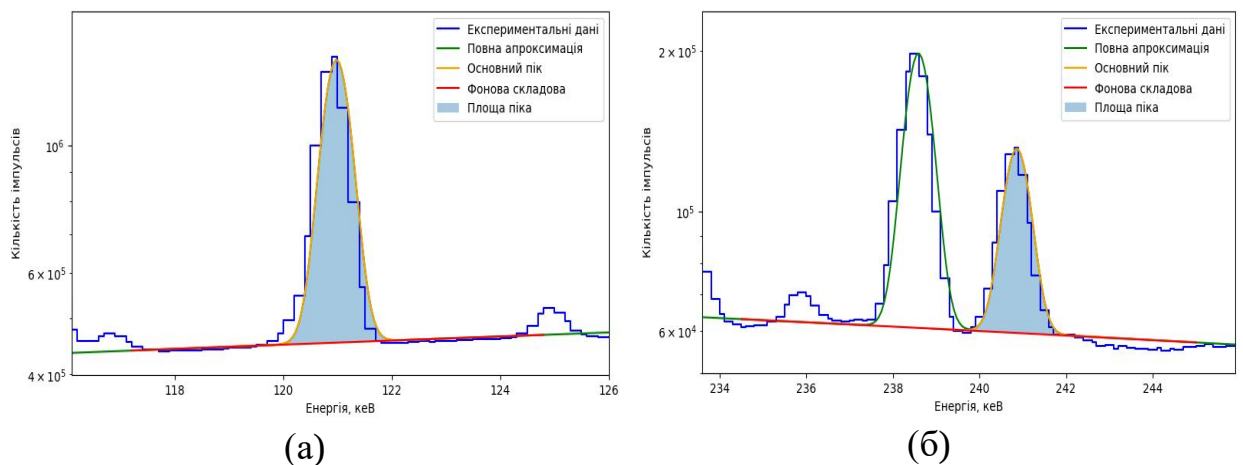


Рис. 3.4. Апроксимація спектральних піків: (а) одиночний пік, (б) мультиплет

Параметри моделі визначаються шляхом апроксимації експериментальних даних методом найменших квадратів з ваговими коефіцієнтами:

$$\sum_{i=1}^m \frac{(N_{exp} E_i - N E_i)^2}{\sigma_i'^2} \rightarrow \min \quad (3.11)$$

де $\sigma_i' = \sqrt{N_{exp} E_i}$ – дисперсія числа імпульсів у каналі E_i , що відповідає пуассонівській статистиці реєстрації γ -квантів.

Отриману математичну модель можна розділити на вхідні компоненти, а саме лінійний фон та гауссіани. Після визначення параметрів гауссіана для необхідного спектрального піка його площа обчислюється аналітично:

$$S = h \cdot \sigma \cdot \sqrt{\pi} \quad (3.12)$$

3.4. Побудова відносної кривої ефективності детектора

У цій роботі для подальшого визначення ізотопного складу зразка обчислюються площі усіх семи спектральних піків (Таблиця 3.1). П'ять центральних піків належать спектральним лініям ізоотпу ^{235}U і використовуються для побудови кривої ефективності детектора. Піки ізоотпів ^{234}U (120.9 кеВ) і ^{238}U (258.3 кеВ) використовуються в подальшому для визначення відношення активностей ізоотпів.

Експериментально вимірювана площа залежить не тільки від активності ізоотпу, але й від ефективності реєстрації детектора для відповідних значень енергії. Слід також врахувати, що γ -квант з певною енергією випромінюється лише з деякою ймовірністю під час розпаду ізоотпу. Ця ймовірність характеризується коефіцієнтом розгалуження (англ. *branching ratio*), який є індивідуальною сталою величиною для кожної γ -лінії з певною енергією (Таблиця 3.1). Таким чином, вимірювана площа залежить від ефективності реєстрації і ймовірності розгалуження:

$$S = \varepsilon E \cdot Br \cdot A \quad (3.13)$$

де εE – ефективність реєстрації детектора для γ -квантів з енергією E , Br – коефіцієнт розгалуження для відповідної γ -лінії, A – активність ізоотпу.

Оскільки п'ять центральних γ -ліній належать одному ізотопу ^{235}U , їх активність є спільною. При цьому з формули (3.12) видно, що площа спектрального піка залежить не лише від амплітуди, але й від ширини піка σ_i . Оскільки всі необхідні γ -лінії знаходяться в вузькому енергетичному діапазоні, ширина піка, яка за формулою (3.9) має залежність $\sigma \propto \sqrt{E}$, практично не змінюється вздовж усього діапазону. Тому апроксимація будується саме за нормованими амплітудами, які визначаються переважно ефективністю реєстрації детектора:

$$f_i \frac{h_i}{Br_i} \propto \varepsilon E \quad (3.14)$$

де h_i – амплітуда піка, Br_i – коефіцієнт розгалуження відповідного γ -лінії.

Апроксимація виконується за значеннями f_i п'яти центральних піків ізотопу ^{235}U (Рис. 3.5).

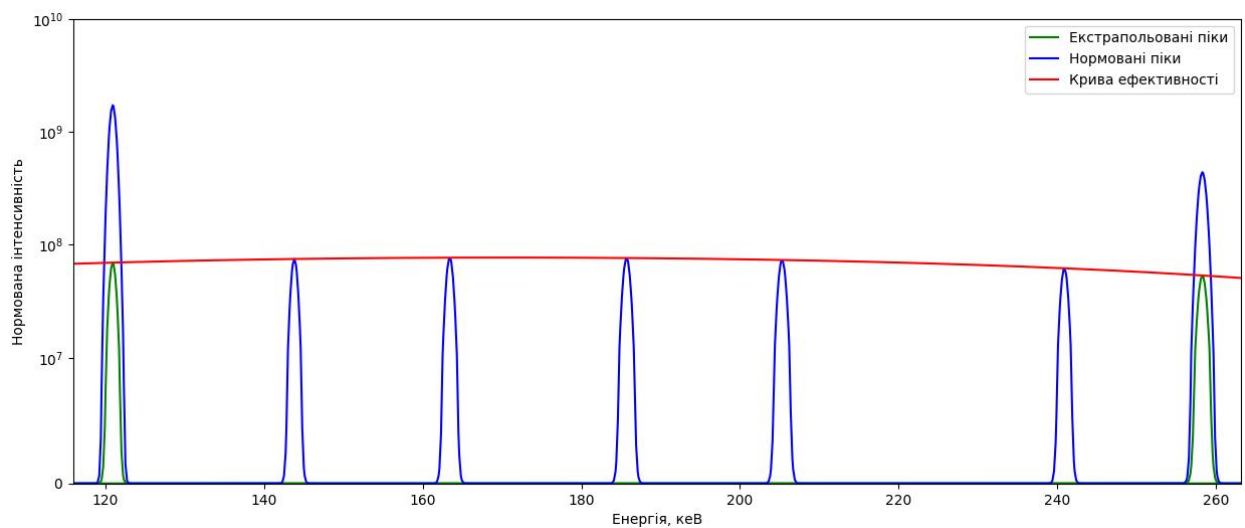


Рис. 3.5. Апроксимація за вершинами спектральних піків ізотопу ^{235}U

Для побудови графіка використовуються відновлені гауссіани з урахуванням нормування на відповідні коефіцієнти розгалуження. Такий підхід використовується для візуалізації результатів, але не є необхідним, оскільки апроксимація може бути побудована безпосередньо за значеннями нормованих амплітуд.

Отримані значення f_i для п'яти піків ізотопу ^{235}U апроксимуються параболічною функцією:

$$\varepsilon = E - aE^2 - bE + c \quad (3.15)$$

де параметри a , b та c знаходяться методом найменших квадратів (3.11) з урахуванням похибок вимірювання площ піків.

Параболічна форма апроксимації обумовлена характерною залежністю ефективності детектора від енергії γ -квантів. При низьких енергіях суттєво впливають процеси поглинання випромінювання у матеріалах перед кристалом детектора, а при високих енергіях зменшується ймовірність взаємодії γ -квантів із самим кристалом детектора. Внаслідок цих ефектів максимум параболічної функції припадає саме на розглянутий енергетичний діапазон 120-260 кеВ.

3.5. Екстраполяція отриманої кривої ефективності

Побудована крива ефективності $\varepsilon = E$ використовується для оцінки очікуваних нормованих амплітуд у точках, що відповідають енергіям γ -ліній ^{234}U (120.9 кеВ) та ^{238}U (258.3 кеВ). Оскільки ці значення енергій знаходяться поза межами діапазону, в якому була побудована апроксимація (143.8 – 240.9 кеВ), необхідні значення отримуються шляхом екстраполяції параболічної функції (3.15).

Відношення вимірної нормованої амплітуди піка до екстрапольованого значення кривої ефективності і є шуканим відношенням активності ізотопів до активності ^{235}U :

$$\frac{h_i}{f} \cdot \frac{Br_i}{E_i} = \frac{A_i}{A_{235}} \cdot R_i \quad (3.16)$$

Таким чином, величини R_{234} та R_{238} фактично відповідають значенням відношення активностей A_{234}/A_{235} та A_{238}/A_{235} відповідно. Це дозволяє безпосередньо підставити отримані значення у формулу (3.6):

$$q_{235} = \frac{\dots}{\dots -4 \cdot R_{234} \cdot R_{238}} \cdot \quad (3.17)$$

Отримане значення q_{235} є остаточним результатом вимірювання відсоткового вмісту ^{235}U в досліджуваному зразку. Таким чином, запропонований метод дозволяє визначити збагачення зразку, спираючись виключно на внутрішню калібровку за піками ^{235}U . Дану формулу можна застосувати для визначення складу інших ізотопів урану, що буде детальніше описано в розділі 3.7.

3.6. Оцінка похибок вимірювання

У даній роботі основними джерелами похибок є статистична похибка підгонки параметрів окремих спектральних піків та похибка апроксимації кривої ефективності детектора.

Змінні параметри спектрального піка, тобто висота h та ширина гауссіана σ , визначаються методом найменших квадратів (3.11). Похибки цих параметрів δh та $\delta \sigma$ отримуються з діагональних елементів матриці коваріацій, що є стандартним результатом МНК. Оскільки площа піка за формулою (3.12) залежить лише від двох параметрів, то її відносна похибка визначається за типовою формулою для добутку двох незалежних величин:

$$\frac{\delta C}{C} = \sqrt{\left(\frac{\delta A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\delta B}{B}\right)^2} \quad (3.18)$$

Однак параметри h та σ безпосередньо залежать один від одного, тому слід також враховувати кореляцію між цими величинами. Відповідно похибка площі містить додатковий коваріаційний член:

$$\frac{\delta S}{S} = \sqrt{\left(\frac{\delta h}{h}\right)^2 + \left(\frac{\delta \sigma}{\sigma}\right)^2 + \frac{2 \cdot \text{cov } h \sigma}{h \cdot \sigma}} \quad (3.19)$$

де $\text{cov } h \sigma$ – коваріація між параметрами h і σ . Оскільки експериментальні дані жорстко обмежують площу піка, то збільшення одного параметру повинно компенсуватись зменшенням другого. Внаслідок цього ці параметри є антикорельованими, відповідно член $\text{cov } h \sigma$ є від'ємним, що зменшує загальну похибку площі піка.

Похибка присутня при вимірюванні кожного із спектральних піків, тому внесок кожного з них присутній при побудові апроксимації. Похибка значення кривої ефективності (3.15) для довільних значень енергії визначається похибками коефіцієнтів апроксимації δa , δb та δc , які також отримуються з матриці коваріацій МНК. Оскільки $f(E)$ є функцією трьох змінних, її абсолютна похибка обчислюється за законом поширення похибок з урахуванням коваріацій між параметрами МНК:

$$(\delta f(E))^2 = \sum_i \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \delta x_i \right)^2 + 2 \sum_{i < j} \frac{\partial f}{\partial x_i} \cdot \frac{\partial f}{\partial x_j} \text{cov}(x_i, x_j) \quad (3.20)$$

Слід зазначити, що чим далі точка екстраполяції знаходиться від діапазону апроксимації, тим більше буде невизначеність значення кривої. Однією з переваг роботи у вузькому діапазоні є те, що відстань від крайніх точок екстраполяції до необхідного діапазону є відносно невеликою порівняно з шириною самого діапазону, що мінімізує внесок відхилень в кінцеві результати.

Зрештою, похибка відношень активностей R_{234} та R_{238} обчислюється аналогічно до формули (3.18) для двох величин:

$$\frac{\delta R_i}{R_i} = \sqrt{\left(\frac{\delta S_i}{S_i} \right)^2 + \left(\frac{\delta f(E_i)}{f(E_i)} \right)^2} \quad (3.21)$$

Аналогічно, остаточна похибка кінцевого значення збагачення зразку δq_{235} визначається згідно з формулою (3.17) наступним чином:

$$\frac{\delta q_{235}}{q_{235}} = \sqrt{\frac{k_1 \delta R_{234}^2}{k_1 R_{234}} + \frac{k_2 \delta R_{238}^2}{k_2 R_{238}}} \quad (3.22)$$

Таким чином, основний внесок у похибку δq_{235} визначається точністю вимірювання піків ^{234}U та ^{238}U , оскільки саме для цих піків похибка площі та екстраполяції спричиняє найбільше відхилення.

3.7. Визначення вмісту ізотопів ^{234}U та ^{238}U

Після визначення ступеня збагачення зразка за ізотопом ^{235}U можна оцінити вміст інших основних ізотопів урану. Аналогічно до формули (3.1) відсотковий вміст ізотопів ^{234}U та ^{238}U визначається як:

$$q_i = \frac{m_i}{m_{234} m_{235} m_{238}} \cdot \quad (3.23)$$

Оскільки масова частка ізотопу ^{235}U вже відома, зручно переписати вираз (3.23), нормуючи чисельник і знаменник на масу m_{235} :

$$q_i = \frac{m_{235}}{m_{234} m_{235} m_{238}} \cdot \frac{m_i}{m_{235}} \cdot \quad (3.24)$$

$$q_i = q_{235} \cdot \frac{m_i}{m_{235}} = q_{235} \cdot k_i \cdot R_i \quad (3.25)$$

де k_i – константа з формули (3.5), R_i – відношення активностей з формули (3.16) для відповідного ізотопу. Таким чином, вміст ізотопів ^{234}U та ^{238}U визначається через ті самі відношення активностей, що використовувались для обчислення збагачення, тому проводити додаткові вимірювання не потрібно.

Відоме значення збагачення q_{235} згідно з формулою (3.6) є функцією від двох відношень активностей $q_{235} = f(R_{234}, R_{238})$. Тому похибки отриманих значень вмісту ізотопів обчислюються через часткові похідні:

$$\delta q_i = \sqrt{\left(\frac{\partial q_i}{\partial R_{234}} \cdot \delta R_{234}\right)^2 + \left(\frac{\partial q_i}{\partial R_{238}} \cdot \delta R_{238}\right)^2} \quad (3.26)$$

В результаті обчислення повного ізотопного складу зразка зводиться до вимірювання двох відношень активностей R_{234} та R_{238} , з яких одночасно визначаються концентрації всіх трьох ізотопів та їх відповідні похибки.

3.8. Програмне забезпечення

Для обробки спектрометричних даних було розроблено програмне забезпечення з відкритим кодом мовою Python. Вхідні дані отримуються з текстового файлу формату *dat*, який є стандартним результатом експорту з програми Genie 2000. З файлу витягуються масиви значень енергії (кеВ) та

кількості зафіксованих імпульсів у відповідних каналах, а також коефіцієнти калібрування B_0 та B_1 , які використовуються для початкової оцінки ширини піків згідно з формулами (3.8-3.9).

Оскільки мінімальний крок між сусідніми значеннями енергій в отриманому спектрі може набувати — кеВ, точне значення енергії певної γ -лінії може бути відсутнім в масиві даних. Тому програма автоматично шукає найближчу точку спектра до заданої енергії та визначає максимальну амплітуду в околі цієї точки. Побудова апроксимації спектрального піка відбувається в області σ навколо максимуму цього піка.

В деяких випадках поблизу γ -ліній можуть знаходитись додаткові сусідні піки (Рис. 3.4 (б)), які перекривають основний пік та спотворюють його форму. Для врахування можливих сусідніх піків в програмі створено алгоритм ітеративного розширення області побудови апроксимації. Алгоритм використовує функцію *find peaks* бібліотеки *scipy signal*, яка знаходить локальні максимуми, що перевищують заданий поріг чутливості. Якщо в поточному діапазоні σ виявляється додатковий пік достатньої інтенсивності, його параметри додаються до моделі (3.10), межі діапазону розширюються, і цикл повторюється. Процес зупиняється, якщо алгоритм більше не виявляє додаткові піки в оновлених межах.

Апроксимація отриманої моделі (3.10) виконується за допомогою функції *curve fit* бібліотеки *scipy optimize*, яка використовує метод найменших квадратів з урахуванням статистичних ваг $\sigma'_i = \sqrt{N_{exp i}}$ згідно з формулою (3.11). Функція повертає одночасно два масиви значень – вектор оптимальних параметрів *ropt* та матрицю коваріацій *pcov*. Параметри основного піка (висота h та ширина σ) отримуються безпосередньо з масиву *ropt*, а похибки цих параметрів – з діагональних елементів матриці *pcov*:

$$\delta h = \sqrt{pcov_{i_h i_h}} \quad \delta \sigma = \sqrt{pcov_{i_\sigma i_\sigma}} \quad (3.27)$$

Коваріація між параметрами h та σ використовується при обчисленні похибки площі піка (3.19) та обчислюється з відповідного елементу матриці:

$$\text{cov } h \sigma \quad \text{pcov } i_h i_\sigma \quad (3.28)$$

Крива ефективності детектора будується як апроксимація за нормованими амплітудами п'яти γ -ліній ізотопу ^{235}U у вигляді параболічної функції (3.15) також за допомогою функції *curve fit*. На виході функції аналогічно отримуємо вектор оптимальних параметрів *port eff* та матрицю коваріацій *pcov eff*.

Отримана апроксимація є функцією трьох параметрів, кореляцію між якими обов'язково потрібно врахувати. Оскільки функція *curve fit* повертає матрицю коваріацій, це дозволяє переписати формулу (3.20) у компактному матричному вигляді:

$$(\delta f E)^2 = J^T \cdot \text{pcov eff} \cdot J \quad (3.29)$$

де $J = \frac{\partial f}{\partial E} E^T$ – вектор часткових похідних параболічної функції за її коефіцієнтами. При множенні матриці використовується кожен з її елементів, тому такий запис автоматично враховує кореляцію між коефіцієнтами a , b та c .

В програмі також використовується модуль *matplotlib pyplot* для візуалізації результатів, в тому числі для побудови графіків спектральних піків і апроксимації. Отримані графіки застосовуються також у якості ілюстрації в цій роботі.

Кінцеве обчислення збагачення та похибка цієї величини відповідає попередньому методичному опису. Відношення активностей R_{234} та R_{238} обчислюються згідно з формулою (3.16), а остаточне значення збагачення зразка та його похибка визначаються за формулами (3.17) та (3.22) відповідно. Вміст ізотопів ^{234}U та ^{238}U визначається з виразу (3.25), а їх похибки обчислюються за формулою (3.26) з частковими похідними:

$$\begin{aligned} \frac{\partial q_i}{\partial R_i} &= \frac{k_i \cdot \left(\frac{k_j \cdot R_j}{k_{234} R_{234} - k_{238} R_{238}} \right)}{k_{234} R_{234} - k_{238} R_{238}} \\ \frac{\partial q_i}{\partial R_j} &= \frac{-k_i \cdot k_j \cdot R_i}{k_{234} R_{234} - k_{238} R_{238}} \end{aligned} \quad (3.30)$$

де $i \neq j$

3.9. Аналіз та порівняння результатів з програмою Genie 2000

Розроблене програмне забезпечення було застосовано для обробки спектрометричних даних чотирьох зразків урану з різним рівнем збагачення (Таблиця 3.2). Для кожного зразка окремо виконувалась апроксимація спектральних піків, побудова кривої ефективності та визначення ізотопного складу урану згідно з описаною методикою.

Таблиця 3.2. Результати визначення вмісту ізотопів урану в досліджуваних зразках за допомогою власної програми

Файл спектра	Вміст ^{234}U , %	Вміст ^{235}U , %	Вміст ^{238}U , %
2 chem 10072025.dat			
4 chem 27062025.dat			
6 chem 28052025.dat			
10 chem 19052025.dat			

Отримані результати відображають стабільну роботу алгоритму в широкому діапазоні значень збагачення. Для ізотопу ^{235}U абсолютна похибка зростає зі збільшенням його вмісту, тоді як відносна похибка, навпаки, зменшується для зразків з більшим збагаченням. Це пов'язано із зростанням інтенсивності основних γ -ліній ізотопу ^{235}U , внаслідок чого зменшується вплив статистичного шуму на результати апроксимації. Для ізотопів ^{234}U та ^{238}U спостерігається характерна зміна концентрації зі збільшенням рівня збагачення. Вміст ^{234}U зростає при збільшенні ^{235}U , тоді як частка ^{238}U зменшується, що підтверджує коректність отриманих результатів.

Для оцінки коректності розрахунків створеною програмою отримані результати порівнювались з результатами комерційної програми Genie 2000, яка використовує алгоритми MGAU і FRAM для визначення ізотопного складу (таблиця 3.3-3.4).

Таблиця 3.3. Порівняння результатів збагачення власної програми з
MGAU та FRAM

Зразок	Власна програма, %	MGAU, %	Δ (від MGAU), %	FRAM, %	Δ (від FRAM), %
2%			—		—
4%			—		
6%			—		
10%			—		

Таблиця 3.4. Порівняння результатів визначення вмісту ізотопів ^{234}U та ^{238}U
власної програми з MGAU та FRAM

Зразок	Ізотоп	Власна програма, %	MGAU, %	FRAM, %
2%	^{234}U			
	^{238}U			
4%	^{234}U			
	^{238}U			
6%	^{234}U			
	^{238}U			
10%	^{234}U			
	^{238}U			

Результати власної програми в межах похибки добре узгоджуються з результатами алгоритмів MGAU та FRAM для усіх трьох ізотопів урану. Для зразків з більшим рівнем збагачення відносно відхилення ^{235}U не перевищує 1 – 3 %. Найбільше відхилення спостерігається для зразка з найменшим вмістом ^{235}U і становить приблизно 6 – 8 %. Основною причиною є зменшення інтенсивності спектральних піків для γ -ліній ізотопу ^{235}U при низькому збагаченні, внаслідок чого статистичний шум стає більш помітним та

сильніше впливає на точність апроксимації і побудову кривої ефективності детектора.

Для ізотопів ^{234}U та ^{238}U отримані значення також узгоджуються із результатами алгоритмів MGAU та FRAM. При цьому похибки власної програми є помітно більшими за похибки комерційних алгоритмів, що пояснюється необхідністю екстраполяції кривої за межами діапазону апроксимації.

Отримані результати демонструють достатньо високу узгодженість з результатами, отриманим за алгоритмами, що використовує програма Genie 2000 для всіх досліджених зразків з урахуванням простоти використаної моделі. Це підтверджує коректність реалізованого алгоритму та можливість використання розробленого програмного забезпечення для визначення ізотопного складу урановміщуючих зразків методом пікових співвідношень.

Слід відмітити, що відмінності в результатах, отриманих трьома застосунками, можна пояснити тим, що алгоритми MGAU та FRAM використовують підходи, що базуються на іншому наборі γ -ліній та різних моделях розрахунку ефективності детектора. Окрім цього, ці алгоритми мають різні області застосування: MGAU краще підходить для аналізу спектрів з низьким рівнем збагачення, а FRAM універсальний для широкого діапазону збагачення. Тому наявність певної розбіжності в результатах, отриманих трьома методами є очікуваною для розглянутих спектрометричних даних.

ВИСНОВКИ

У даній роботі було розроблено програмне забезпечення мовою програмування Python для визначення ізотопного складу урановміщуючих матеріалів методом пікових співвідношень. Для цього створено алгоритми автоматичного пошуку необхідних спектральних піків та їх подальшої апроксимації з наявним фоновим шумом, що описується лінійною функцією. Програма також включає побудову параболічної кривої відносної ефективності детектора за п'ятьма обраними γ -лініями ізотопу ^{235}U та визначення вмісту ізотопів ^{234}U , ^{235}U та ^{238}U методом пікових співвідношень з урахуванням похибок вимірювання.

Програма була перевірена на чотирьох різних спектрах уранових зразків з рівнями збагачення 2%, 4%, 6% та 10%. Аналіз отриманих результатів свідчить про коректність роботи створеного застосунку при визначенні ізотопного складу урановміщуючих зразків методом пікових співвідношень. У порівнянні з алгоритмами MGAU та FRAM програми Genie 2000 відхилення власних результатів не перевищували 1-3% для зразків з більшим збагаченням та 6-8 % для зразка з найменшим збагаченням. Більше відхилення пояснюється зростанням статистичного шуму при низькій інтенсивності піків.

Розроблене програмне забезпечення може розглядатись як доступна альтернатива комерційній програмі Genie 2000, оскільки отримані результати демонструють стабільність алгоритмів у дослідженому діапазоні збагачення. Відкритий код програми є доступним та надає можливість її подальшого удосконалення.

Матеріали та ключові результати проведених досліджень пройшли успішну наукову апробацію на XXIV Конференції з фізики високих енергій та ядерної фізики, де було представлено доповідь «Determination of uranium isotopic composition via the peak ratio method using high-resolution gamma-ray spectroscopy».

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Pant A. D., Pillai A. S., Krishnan N., Verma A. K. Assessment of ^{235}U and ^{234}U concentration in confiscated uranium samples by alpha- and gamma-ray spectrometry techniques. *Radiation Protection and Environment*. 2020. Vol. 43. P. 134-139.
2. Lakosi L. [et al.] Gamma spectrometry in the ITWG CMX-4 exercise. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2018. Vol. 315. P. 409-416.
3. Gilmore G. R. *Practical Gamma-ray Spectrometry*. 2nd Edition. Chichester: John Wiley & Sons. 2008.
4. Dufour N., Dumazert J., Barat E. [et al.] Measurement of low-activity uranium contamination by gamma-ray spectrometry for nuclear decommissioning. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A* (2019), DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.162976>.
5. Берлізов А. М., Тришин В. В. Дослідження факторів, що впливають на точність визначення рівня збагачення урану методом багатогрупового аналізу (MGAU). *Атомна енергетика*. 2000. Т. 1. № 2. С. 86-101. DOI: <https://doi.org/10.15407/jnpae2000.02.086>
6. Apostol A. I., Maliuk I. Uranium isotopic composition analysis using gamma spectrometry: applications in nuclear forensics. *Romanian Report in Physics*. 2016. Vol. 68. No. 2. P. 822-831.
7. Sampson T. E., Nelson G. W., Kelley T. A. FRAM: A Versatile Code for Analyzing the Isotopic Composition of Plutonium from Gamma-Ray Pulse Height Spectra. Los Alamos National Laboratory report LA-11720-MS. 1989.
8. Elsayed A. F. [et al.] Signature Verification of $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ Activity Ratio for Ores and Natural Samples using γ -Spectrometry and a Derived Equation. *Radiochemistry*. 2021. Vol. 63. P. 627-634. DOI: <https://doi.org/10.1134/S1066362221050118>

9. Loat B. V. [et al.] Experimental determination of enrichment of uranium material by gamma-spectroscopic technique. VNU Journal of Mathematics – Physics. 2013. Vol. 29. No 2. P. 33-39.