ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ, 2024, том 15, № 3, с. 211–217

БЕЗОПАСНОЕ ОБРАЩЕНИЕ С ЯДЕРНЫМИ МАТЕРИАЛАМИ

УДК 536.911, 539.17, 004.94

НЕЙТРОННЫЕ МЕТОДЫ ОБНАРУЖЕНИЯ ОБОГАЩЕННОГО УРАНА В ОБРАЗЦЕ

© 2024 г. Н. О. Блохин[a], *, Е. В. Рябева[a], Р. Ф. Ибрагимов[a], О. В. Чакилев[a]

[a] *Национальный исследовательский ядерный университет МИФИ, Москва, 115409 Россия*

*****E-mail: Blohinnikitka@yandex.ru*

Поступила в редакцию 23.05.2023 г.
После доработки 23.05.2023 г.
Принята к публикации 05.06.2023 г.

В работе рассмотрены основные пассивные и активные нейтронные методы обнаружения делящегося вещества в образце, применяемые, например, в досмотровых установках и при контроле отходов ядерного топливного цикла. Приведены расчеты для оценки возможности использования данных методов при обнаружении обогащенного урана. Подробно рассмотрен метод по анализу времени жизни нейтрона в материалах установки (DDA). Разработана модель для обнаружения наличия ^{235}U в образце DDA методом с использованием инструментов пакета программ Geant4. В разработанной модели предложен и проверен критерий определения массы U^{235}. Предлагаемые модель и критерий могут значительно упростить процесс разработки и оптимизации параметров дорогостоящих устройств по обнаружению делящихся веществ за счет создания цифровой модели

Ключевые слова: DDDA, Geant4, ДВ, моделирование, нейтронные методы

DOI: 10.56304/S2079562923030089

ВВЕДЕНИЕ

Обнаружение делящихся веществ (ДВ) в условии экранирования, в частности обогащенного урана, рентгеновскими методами затруднительно и малоэффективно. Наиболее эффективным для данных целей являются нейтронные методы. Оценить экспериментально эффективность существующих методов обнаружения обогащенного урана ресурсозатратно. Поэтому актуальной задачей является оптимизация на основе моделирования существующих и разрабатываемых установок обнаружения ДВ, например, с использованием инструментов пакета программ Geant4 с последующей оценкой эффективности используемых методов и детекторов для обнаружения обогащенного урана.

Целью настоящей работы было изучение возможности использования существующих нейтронных методов обнаружения обогащенного урана в образце; моделирование временной характеристики числа нейтронов в присутствии различной массы и обогащения образца ^{235}U и без.

ОБЗОР НЕЙТРОННЫХ МЕТОДОВ ДЛЯ ОБНАРУЖЕНИЯ ДВ В ОБРАЗЦЕ.

Нейтронные методы обнаружения ДВ в образце можно разделить на пассивные и активные.

В пассивных методах измеряются быстрые нейтроны спонтанного деления. Поскольку сечения взаимодействия быстрых нейтронов относительно низки для большинства материалов, эти нейтроны не взаимодействуют внутри образца, такие измерения не очень чувствительны к размеру и форме образца.

В активных методах [1] применяется внешний непрерывный или импульсный источник нейтронов. Как правило это d + t или d + d генератор. Активные методы позволяют проводить измерения быстрее пассивных методов, а также не зависят от спонтанных делений испытуемого материала (что позволяет проводить измерения ДВ с низким выходом нейтронов спонтанного деления). Однако проникновение тепловых нейтронов в образец зависит от геометрии образца, плотности и изотопного состава установки и контейнера. Следовательно, необходимы дополнительные расчеты.

На данный момент для обнаружения ДВ в образце применяются следующие методы:

DDAA [1] – Анализ по времени жизни нейтрона в материалах установки.

NAA [2] – Нейтронно-активационный анализ, основанный на регистрации гамма-квантов после облучения образца быстрыми/тепловыми нейтронами.

NCC [3] – Методы, основанные на использовании счетчиков нейтронных совпадений. По сво-

Таблица 1. Характеристики спонтанного деления $U^{235/U238}$

Ядро	Период полураспада, лет	Вероятность спонтанного деления	Выход нейтронов на 1 деление	Поток нейтронов (SF), $г^{-1}\,с^{-1}$
U^{235}	$7.04 \cdot 10^{8}$	$2.0 \cdot 10^{-9}$	1.86	$\mathbf{3.0 \cdot 10^{-4}}$
U^{238}	$4.47 \cdot 10^{9}$	$5.4 \cdot 10^{-7}$	2.07	**0.0136**

Таблица 2. Расчет числа зарегистрированных нейтронов в пассивных установках

	Содержание η, %	$N(SF)$, $\frac{н}{с}$	N(det), $\frac{н}{с}$
U	U^{238} ~ 99.3	0.14	$1.4 \cdot 10^{-4}$
	U^{235} ~ 0.7	$2.10 \cdot 10^{-5}$	$2.1 \cdot 10^{-8}$
U_{en}	U^{238} ~ 95.8	0.13	$1.3 \cdot 10^{-4}$
	U^{235} ~ 4.2	$1.30 \cdot 10^{-4}$	$1.3 \cdot 10^{-7}$

ей сути являются ядром пассивных методов, также применяются в совокупности с другими методами, например, для разделения n и γ-квантов.

SVM [4] – Статистический метод, основанный на известном распределении основных моментов исследуемого вещества. Изначально метод применялся для обнаружения ДВ в пассивных установках, однако на данный момент ведутся исследования возможности использования данного метода в активных установках с небольшой массой ДВ, когда эффектом мультипликативности можно пренебречь.

Идентификация $U^{235(238)}$ пассивными методами затруднительна из-за малого потока нейтронов спонтанного деления (см табл. 1).

Рассмотрим 10 г природного и обогащенного (4.2%) U. Тогда число нейтронов спонтанного деления в секунду можно посчитать по следующей формуле:

$$N(SF) = \sum_{i=235,238} m_u \eta_i SF_i, \ \frac{н}{с}, \qquad (1)$$

где m_u – масса U, η_i – содержание $U^{235/238}$, SF_i – поток нейтронов спонтанного деления.

Истинное же число, которое будет регистрироваться N(det) будет меньше, из-за необходимости учитывать геометрический фактор G и внутреннюю эффективность ε_{in} детекторов. В зависимости от геометрии установки и типа детекторов значение будет разным, но можно приблизительно дать оценку $G\varepsilon_{in} \sim 10^{-3}$.

$$N(\text{det}) = N(SF) G\varepsilon_{\text{in}} = 10^{-3} N(SF). \qquad (2)$$

Число регистрируемых нейтронов мало (см., N(det) табл. 2): сравнимо с фоном/входит в погрешности методов, что делает невозможным определять наличие U в образце пассивными методами, не говоря уже об идентификации массы/обогащения. Таким образом, в дальнейшем в работе рассматривалась возможность использования следующий активных методов: NAA, DDAA.

NAA ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ОБОГАЩЕННОГО U^{235}

Использование нейтронно-активационного анализа для получения информации о наличии U^{235} в образце затруднительно из-за большого периода полураспада U^{236}:

$$U^{235} + n_0^1 \rightarrow U^{236} \xrightarrow{T_{1/2} = 2.3\ г} Th^{232} + \alpha.$$

Теоретически можно измерять наличие Th^{232} (α распад U^{236}) или U^{238} (природный U) в образце данным методом, т.к. период полураспада ядер, образованных в результате захвата нейтрона ~ 23 м [2]:

$$U^{238}(n,\gamma)U^{239} \xrightarrow{\beta^-} Np^{239}(T_{1/2} = 2.35\ д),$$

$$Th^{232}(n,\gamma)Th^{233} \xrightarrow{\beta^-} Pa^{233}(T_{1/2} = 27\ д).$$

При этом идентифицировать наличие можно по пикам полного поглощения (табл. 3).

Естественно, такой метод является малоэффективным, т.к. мы определяем содержание непосредственно изотопа U^{239}, а не U^{235}, т.е., мы теряем информацию о процентном содержании (обогащении) урана в том случае, если не знаем массы образца.

Таблица 3. NAA для обнаружения U

Элемент	Изотоп	$T_{1/2}$	Энергия γ квантов, keV	Квантовый выход, %
U	U^{239}	23.5 м.	**74.6**	48
	Np^{239}	2.35 д.	106.1	27
Th	Th^{233}	22.3 м.	**86.5**	3
	Pa^{233}	27 д.	311.9	39

Таблица 4. Подсчет числа импульсов для U^{238}, Th^{232}

	Сечение реакции $\sigma(n,\gamma)$, бн	Удельная активность $\frac{A}{m}$, $\frac{\gamma}{\text{с г}}$	$\frac{A}{m}G$, $\frac{\text{имп}}{\text{с г}}$
U^{238}	0.30, E_n = 14М эВ	3000	33
	2.72, E_n = 0.025 эВ	225000	**2500**
Th^{232}	0.1, E_n = 14 МэВ	1000	11
	7.33, E_n = 0.025 эВ	58640	**645**

В частности, из табл. 2 видно, что из-за большего периода полураспада регистрация по изотопам Pa^{233} и Np^{239} невозможна в досмотровых условиях.

Также была произведена оценка числа импульсов, зарегистрированных детектором для нейтронно-активационного анализа. Пусть детектор расположен на $h = 20$ см от образца, имеет цилиндрическую форму с $R = 3$ см; источник нейтронов (d + t) $\Phi = 10^8 \frac{\text{н}}{\text{с}}$. Учтем, что время облучения и охлаждения ~$4T_{1/2}$, тогда число вторичных нейтронов в единицу времени (число распадов) можно оценить следующим образом:

$$A = \Phi N \sigma \mu = \Phi \frac{1}{4\pi r^2} \frac{m N_a}{M} \sigma, \qquad (3)$$

где $\sigma = \sigma(n,\gamma)$ сечение реакции для тепловых/быстрых нейтронов.

При этом, число импульсов, зарегистрированных детектором, составит:

$$I = \frac{A}{m} G \varepsilon_{\text{in}} = \frac{A}{m}\left(1 - \frac{h}{\sqrt{h^2 + R^2}}\right)\varepsilon_{\text{in}}. \qquad (4)$$

Реальные же значения на 1–2 порядка меньше, т.к. необходимо учесть еще внутреннюю эффективность детектора и поглощение нейтронов в среде (см. табл. 4).

DDAA ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ОБОГАЩЕННОГО U^{235}

Метод определения наличия ДВ в образце по времени жизни (дифференциальное затухание) нейтрона заключается в следующем [5]:

• Исследуемый образец помещается в установку.

• Быстрые нейтроны, испускаемые импульсным источником, как правило это d-t источник, замедляются в полиэтилене/графите до тепловых скоростей и индуцируют деление в образце. Время замедление зависит от геометрии и используемых материалов в установки.

• Нейтроны, получаемые в результате деления, имеют скорости порядка ~1 МэВ, регистрируются в дальнейшем счетчиками ^{3}He. Регистрация нейтронов происходит через определенное время после окончания импульса, когда быстрые нейтроны импульсного источника замедлились до теплых скоростей. ^{3}He счетчики окружены слоем из кадмия для поглощения термолизированных нейтронов генератора.

• В экспериментах, для повышения набора числа зарегистрированных нейтронов суммируют число частиц за несколько импульсов по каналам. На выходе получается зависимость вида $N(t)$, где t – время после импульса. По форме этой кривой определяет присутствует ли ДВ в образце или нет.

Ожидаемая зависимость логарифма числа нейтронов от времени приведена на рис. 1. Синяя ли-

Рис. 1. Ожидаемая зависимость логарифма числа зарегистрированных нейтронов от времени после окончания импульса источника.

ния описывает поведение быстрых нейтронов генератора, в то время как красная линия показывает временную характеристику “избыточных”, т.е., индуцированных в образце нейтронов.

При проведении экспериментов, ^{3}He счетчики, как правило, начинают регистрировать нейтроны в промежуточной области, когда импульс источника уже завершился и большинство нейтронов генератора термализовалось. Из-за особенностей средств моделирования: запуск нейтронов проводится в один момент времени и следовательно, область 1 становится значительно меньше. Практически сразу можно проводить исследования в промежуточной области.

На основе установок, используемых в работах [6, 7], была разработана модель, реализующая DDAA, с использованием инструментов пакета программ GEANT4 [8]. На рис. 2 приведена схема установки, используемая в модели.

Образец помещался в центр установки; в качестве импульсного генератора использовался d–t; для регистрации нейтронов использовалась модель ^{3}He счетчиков.

Разработанная модель также позволяет регистрировать временную характеристику числа нейтронов с использованием дополнительного слоя из C или Be, имеющие большой коэффициент отражения нейтронов.

АНАЛИЗ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ МАТЕРИАЛОВ С БОЛЬШИМ АЛЬБЕДО В УСТАНОВКАХ

Перед тем как приступить к моделированию временных характеристик для образцов, содержащих различные массы U^{235}, необходимо было определиться с материалом, имеющим большой коэффициент отражения нейтронов, с целью повысить

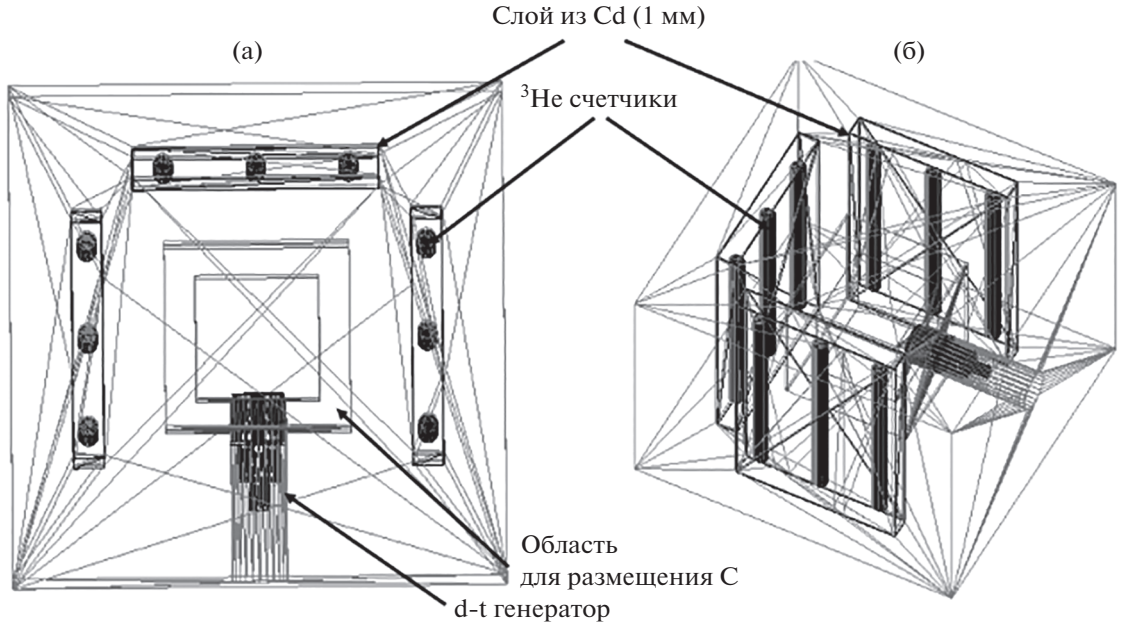

Рис. 2. Вид модели с использованием инструментов среды GEANT4: (а) вид сверху; (б) вид сбоку.

эффективность использования нейтрона в установке (вероятность индуцировать деление в образце).

При моделировании, непосредственно с использованием среды GEANT4 необходимо было учитывать не только сам коэффициент отражение и его влияние на число регистрируемых/индуцированных нейтронов, но и время, которое программа будет тратить для расчета

Всего было проведено шесть расчетов (число запускаемых нейтронов = $1 \cdot 10^7$): по два расчета (в присутствии U^{235} и без) с использованием Be, C и без использования материалов с большим альбедо. В табл. 5 представлены результаты расчетов.

Видно, что использованием в установках Be дает наилучшее превышение регистрируемых нейтронов над “фоном” (число нейтронов, зарегистрированных при отсутствии в образце U^{235}). Однако, если при добавлении слоя из C время, затраченное на моделирование, меняется не сильно, то при использовании Be затраченное время увеличилось в 2.5 раза, из-за чего в дальнейшем было принято решение моделировать регистрацию нейтронов с использованием C.

Для экспериментальных установок, исходя из модельных данных, использование дополнительного слоя из Be приведет к возможности увеличить число регистрируемых нейтронов, что может позволить снизить порог обнаружения (минимальную массу), однако бериллиевые зеркала достаточно дорогие.

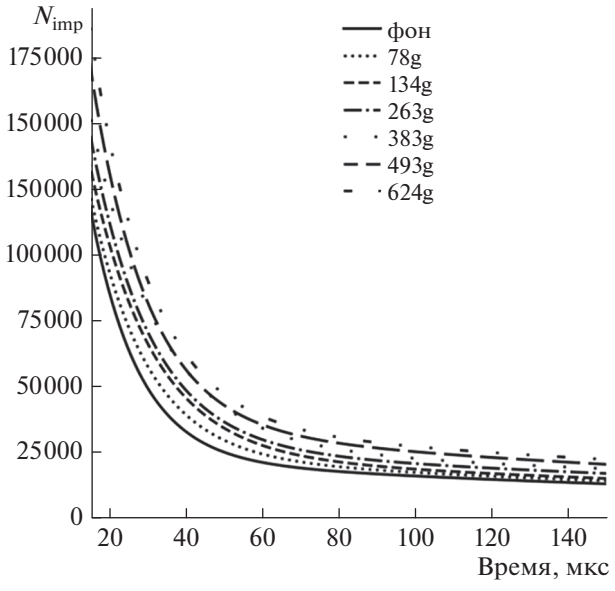

Рис. 3. Зависимость числа нейтронов, зарегистрированных ^{3}He счетчиками от времени.

МОДЕЛИРОВАНИЕ ЗАВИСИМОСТИ ЧИСЛА ЗАРЕГИСТРИРОВАННЫХ НЕЙТРОНОВ ОТ ВРЕМЕНИ

Число запускаемых нейтронов составляло $2.2 \cdot 10^8$. На рис. 3 представлены временные характеристики для различных масс U^{235} в образце. Регистрация происходила после 15 мкс. Полученные зависимости из GEANT4 аппроксимировались суммой экспонент.

Из-за особенности, связанной с запуском нейтронов в единый момент времени, вклад экспоненты нейтронов от источника (область 1) мал. На рис. 4 представлены временные характеристики в логарифмическом масштабе, вид полученных зависимостей совпадает с видом, приведенном на рис. 1: четко видна разность в зависимостях для измерения с ДВ и фоновой.

МОДЕЛИРУЕМЫЙ КРИТЕРИЙ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ МАССЫ ОБРАЗЦА ДВ

Для проверки разработанной модели был разработан критерий, позволяющий определить массу неизвестного образца с использованием временной характеристики образца известной массы.

Очевидно, что превышение числа нейтронов над фоном пропорционально массе U^{235} в образце, тогда выбирая стабильный участок временной характеристики, когда регистрируется преимущественно индуцированные нейтроны, можно

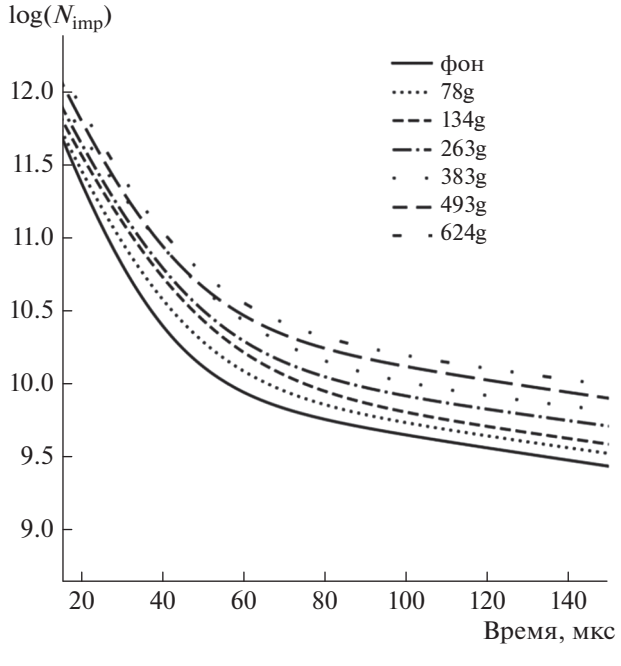

Рис. 4. Временная характеристика числа нейтронов в логарифмическом масштабе для измерения фона и с наличием ДВ.

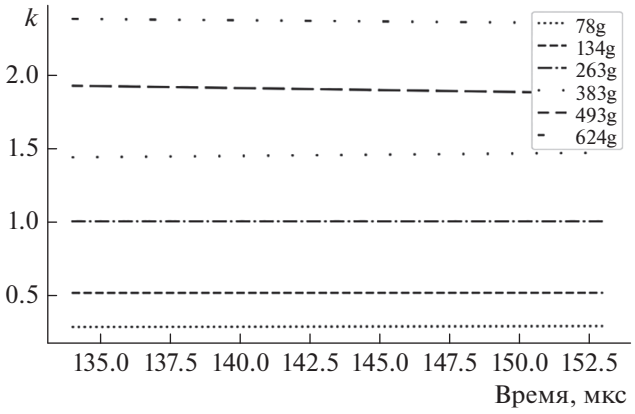

Рис. 5. *k*-критерий для определения образца с неизвестной массой U^{235} в зависимости от времени для разных масс ДВ.

определить массу, имея калибровочную (известную) временную характеристику:

$$k = \frac{AVG(\mathrm{MNK}(N_{\text{неизвст}} - N_{\text{без_урана}}))}{AVG(\mathrm{MNK}(N_{\text{калибровочный}} - N_{\text{без_урана}}))}, \quad (5)$$

где MNK – линейная аппроксимация данных на исследуемом интервала, AVG – среднее значение зарегистрированных нейтронов за исследуемый интервал. На рис. 5 представлен исследуемых интервал.

В табл. 6 представлены результаты моделирования для проверки использования критерия для определения массы U^{235}. Моделирование проводилось для известной $m_{\text{ист}}$, затем оценивался k и по нему определялась $m_{\text{оц}}$ и разница Δ между истинным значение и оцененным значением массы (абсолютная погрешность). Дополнительно оценивалась масса образца U^{235} больших масс ~1.2 кг.

Для всех образцов U, за исключением m ~ 1.2 кг, с помощью разработанного критерия удается идентифицировать массу неизвестного образца с относительной погрешностью не более чем 3%. Мы понимаем, что определение больших масс U^{235} (например, в таблице ~ 1.2 кг) с помощью данного критерия не даст ожидаемого результата, так как возникает эффект самоэкранировки и вероятность деления под вторичными нейтронами (эффект мультипликативности).

Таблица 5. Исследование влияние материалов с большим альбедо на регистрируемое число нейтронов в каналах

Время после запуска частиц, мкс	$N_{U235} - N_{\text{фон}}$, Без материала	$N_{U235} - N_{\text{фон}}$, С использованием С	$N_{U235} - N_{\text{фон}}$, С использованием Be
15	1095	1802	4791
20	253	900	2539
25	526	800	2526
30	430	794	2448
35	264	650	1509
40	387	600	1347
45	422	480	1179

Таблица 6. Определение неизвестной массы с использованием критерия (5)

$m_{\text{ист}}$, g	k	$m_{\text{оц}}$, g	Δ, g
78.0	0.3	75.4	2.6
134.0	0.5	135.5	–1.5
263.0	1.0	263.0	—
383.0	1.4	381.2	1.8
493.0	1.9	497.9	–4.9
624	2.4	620.4	3.6
1218	4.4	1147.1	70.9

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной статье рассматривалось возможность использования существующих нейтронных методов, для обнаружения обогащенного урана в образце. Теоретически оценена возможность использования данных методов для обнаружения образцов урана, обогащенному по U^{235}.

С использованием пакета программ Geant4 была смоделирована установка, реализующую DDA метод. На основе модельных данных было показано, что использование дополнительно в качестве отражающего слоя материала Be позволяет увеличить число регистрируемых нейтронов, однако значительно увеличивает время моделирования.

Были смоделированы временные характеристики числа нейтронов в присутствии и без образца U^{235} для модели с использование дополнительного слоя из графита. Полученные результаты совпали с ожидаемыми. Для проверки разработанной модели был предложен и обоснован критерий для определения массы U^{235}, по калибровочной зависимости. Значения критерия могут быть смоделированы средствами GEANT4. Проверка применимости критерия проведен с массами от 78 до 624 г. Погрешность определения массы с использованием критерия не превысила 3%.

Использование существующих средств моделирования, позволяет изучать процессы, экспериментальное изучение которых которые ресурсоемко (время, финансы, радиационная опасность). В будущем, с увеличением вычислительной способности машин, для оптимизации конструктивных параметров установок (например, слоев отражателей) проводить модельные эксперименты с помощью Geant4 будут быстрее, безопаснее и дешевле.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. *Martinik T.* Development of Differential Die-Away Instrument for Characterization of Swedish Spent Nuclear Fuel. Дис. на соискание степени лиценциата. Швеция. 2015.
2. *Vichaidid T. et al.* // Kasetsart J. Nat. Sci. 2008. V. 42. P. 333.
3. *Ritter S.* // arXiv: 2110.11506. 2021.
4. *Dubi C. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2017. V. 875. P. 125.
5. *Martinik T. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2016. V. 821. P. 55.
6. *Batyaev V.F., Bochkarev O.V., Sklyarov S.V.* Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2014. V. 27. P. 1460130.
7. *Israelashvili I. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2015. V. 785. P. 14.
8. *Geant4 Collab.* Introduction to GEANT4 User Documentation. 2010.
9. *Tushar Roy et al.* // Proc. DAE-BRNS Symp. Nucl. Phys. 2016. P. 61.

Neutron Methods for Detecting Enriched Uranium in a Sample

N. O. Blokhin[1], *, E. V. Ryabeva[1], R. F. Ibragimov[1], and O. V. Chakilev[1]

[1]National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

**e-mail: Blohinnikitka@yandex.ru*

Received May 23, 2023; revised May 23, 2023; accepted June 5, 2023

Abstract—We considered the main passive and active neutron methods for detecting fissile material in a sample which are used for example, in inspection installations and in the control of waste from the nuclear fuel cycle. Calculations are presented to assess the possibilities of using these methods to detect enriched uranium. The Differential die away analysis is considered in detail. A model has been developed for detecting the presence of U^{235} in a sample by using DDAA with Geant4 [1] software package. In the developed model, a criterion for determining the mass of U^{235} is proposed and verified. The proposed model and criterion can significantly simplify the process of developing and optimizing the parameters of expensive devices for detecting fissile substances by creating a digital model.

Keywords: DDDA, Geant4, DV, modeling, neutron methods