

## ОПРЕДЕЛЕНИЕ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНОВЫХ МАТЕРИАЛОВ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИМИ МЕТОДАМИ

*Д.В. Кутний, Ю.Н. Телегин, Н.П. Одейчук, В.А. Михайлов, В.Е. Товканец*  
*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,*  
*Харьков, Украина*  
*E-mail: d\_kutniy@kipt.kharkov.ua, факс +38(057)335-17-39, тел. +38(057)335-64-02*

Исследовалась суммарная ошибка определения величины обогащения методами гамма-спектрометрии с использованием коммерчески доступных программ анализа гамма-спектров урановых образцов MGAU (LLNL, США) и FRAM (LANL, США). При проведении исследований использовались урановые образцы с обогащением 0,71; 4,46 и 20,1% по  $^{235}\text{U}$ . В качестве детекторов гамма-излучения использовались детекторы на основе германия высокой чистоты: коаксиальный детектор (серии GC) и планарный низкоэнергетический детектор (серии LGe). Показано, что имеющееся в распоряжении ННЦ ХФТИ экспериментальное оборудование и средства математической обработки позволяют измерять неразрушающим методом обогащение урановых образцов с точностью не хуже 2%.

### ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В последнее время в Украине повышенное внимание уделяется проблеме совершенствования системы учета и контроля ядерных материалов (ЯМ), которая состоит из нескольких основных задач: информационной поддержки; обеспечения нормативной документацией; создания, совершенствования и внедрения методик измерений и контроля; создания и обеспечения аппаратурой для измерений и контроля ядерных материалов; обучения персонала современным методам работы [1].

Система учета и контроля ядерных материалов является важной гарантией безопасности деятельности, связанной с использованием ядерных материалов. Основным документом, регулирующим подобный контроль, является Положение о государственной системе учета и контроля ЯМ, утвержденное Постановлением Кабинета Министров Украины № 1525 от 18.12.1996 г. [2]. В соответствии с указанным Положением Государственным комитетом ядерного регулирования Украины были разработаны Правила ведения учета и контроля ядерных материалов на предприятиях, связанных с их использованием, перевозкой, хранением или изготовлением (Приказ ГКЯРУ № 97 от 26.06.2006 г). Необходимость наличия системы учета и контроля на предприятии указывается в особых условиях лицензии на осуществление предприятием деятельности, связанной с использованием, перевозкой, хранением или изготовлением ЯМ. В пункте 6 Постановления КМУ № 1525 особо подчеркивается, что учет и контроль ЯМ является необходимым условием получения предприятием разрешения на осуществление деятельности в сфере использования ядерной энергии.

Кроме того, в соответствии с вышеуказанными нормативными документами ГКЯРУ было разработано Положение о системе измерений ядерных материалов для предприятий, занимающихся хранением, использованием,

изготовлением ЯМ и осуществляющих над ними государственный учет (Приказ ГКЯРУ № 24 от 13.02.2006 г.). В Положении отмечается, что система измерений ядерных материалов является неотъемлемой частью государственной системы учета и контроля и включает в себя соответствующий персонал, процедуры и оборудование, которые используются для определения количества полученного, изготовленного, отгруженного, утерянного или другим образом извлеченного из инвентарного количества ядерного материала, а также для определения самого инвентарного количества материала. Одной из первоочередных задач системы измерений ядерных материалов является получение данных о количественном и изотопном составе плутония, урана, тория, имеющегося, изготовленного, полученного в зоне баланса либо отправленного из нее. В пункте 3 данного Положения определены границы неопределенности результатов измерений (табл. 1), которые должны обеспечивать используемые на предприятии методы разрушающего и неразрушающего анализа ЯМ.

Как уже упоминалось ранее, система учета и контроля ядерных материалов включает в себя ряд организационно-технических мероприятий, в числе которых значимое место занимают гамма-спектрометрические методы неразрушающего контроля.

В подавляющем большинстве случаев методы неразрушающего контроля являются более экспрессными, дешевыми и доступными, чем разрушающий химический анализ, требуют меньшей подготовки персонала, проводящего измерения, и не производят каких-либо значительных изменений в состоянии исследуемого материала [3]. Гамма-спектрометрические методы измеряют вынужденное или спонтанное излучение, испускаемое ядерным материалом, которое, зачастую, является уникальным для исследуемого изотопа, и его интенсивность может быть связана с массой изотопа.

Таблица 1  
Требования ГКЯРУ к точности измерений свойств  
ядерных материалов на предприятиях Украины

Измеряемая величина	Границы неопределенности	
	Разрушающие методы	Неразрушающие методы
Масса урана	0,5% (при пробоотборе)	5%
Содержание урана (твердые отходы)	-	20%
Обогащение урана по $^{235}\text{U}$	0,2%	2%
Изотопный состав урана	0,2% (изотопы $^{235}\text{U}$ , $^{233}\text{U}$ )	2%
Масса плутония	0,2% (при пробоотборе)	2%
Содержание плутония (твердые отходы)	-	15%
Изотопный состав плутония	0,2%	2%
Масса тория	0,5% (при пробоотборе)	5%
Выгорание (ядерное топливо)	-	10%

Измерение обогащения урана по изотопу  $^{235}\text{U}$  является одной из основных задач в системе измерений ядерных материалов. Преобладающая доля таких измерений выполняется с помощью пассивного неразрушающего метода анализа, основанного на регистрации гамма-излучения, которое сопровождается распадом изотопов  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ .

В настоящее время для проведения измерений методом неразрушающего анализа на предприятиях атомной промышленности применяют портативные приборы нескольких типов, созданные как в нашей стране, так и за рубежом. Вместе с тем, из-за отсутствия регламентированной процедуры определения метрологических характеристик этих специализированных приборов, оказывается сложно оценить качество результатов измерений, полученных с их помощью [4].

Учитывая требования ГКЯРУ (Приказ № 24 от 13.02.2006 г.) и проблему оценки качества неразрушающих измерений ядерных материалов в целом, видится актуальным проведение экспериментальных исследований по тестированию измерительного оборудования на предприятиях Украины, связанных с использованием, перевозкой, хранением или изготовлением ЯМ.

Целью данной работы стала оценка возможности использования гамма-спектрометрического оборудования ННЦ ХФТИ в рамках создания системы измерений ядерных материалов на предприятии, а именно: оценка суммарной ошибки определения величины обогащения методами гамма-спектрометрии с использованием

коммерчески доступных программ анализа гамма-спектров урановых образцов MGAU [5] (LLNL, США) и FRAM [6] (LANL, США).

## МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

При проведении исследований использовались три стандартных урановых образца из наборов аттестованных ядерных эталонных материалов CRM 146 и CRM 969 (Certified Reference Material) с обогащением 0,71; 4,46 и 20,1% по  $^{235}\text{U}$ . Эти наборы содержат эталоны урана различного обогащения, аттестованные с точностью лучше  $\pm 0,1\%$ . Наборы изготовлены и аттестованы двумя организациями: CBNM (Гиль, Бельгия) и NBL (Аргонн, США) и представляют собой экземпляр эталонных материалов для неразрушающего контроля, которые имеют международный сертификат. Параметры стандартных образцов приведены в табл. 2.

Таблица 2  
Параметры стандартных образцов

Тип образца	Обогащение по массе $^{235}\text{U}$ , %	Масса $\text{U}_3\text{O}_8$ , г	Толщина образца, мм	Плотность, г/см <sup>3</sup>
CRM 969	0,71	200,1 ± 0,2	20,8 ± 0,5	2,50
CRM 969	4,46	200,1 ± 0,2	15,8 ± 0,5	3,29
CRM 146	20,1	230,05 ± 0,1	18,8 ± 0,5	3,18

В качестве детекторов гамма-излучения использовались два детектора на основе германия высокой чистоты: коаксиальный германиевый детектор (серии GC) и планарный низкоэнергетический германиевый детектор (серии LEGe). Коаксиальный германиевый детектор GC 2018 - характеризуется эффективностью регистрации гамма-излучения на уровне 20% и энергетическим разрешением 1,8 кэВ для энергии 1332 кэВ. Диапазон энергий регистрируемых гамма-квантов от 50 кэВ до 10 МэВ. Размеры HPGe-кристалла  $\varnothing 51,5 \times 48,5$  мм.

Второй используемый детектор – планарный низкоэнергетический германиевый детектор GL 0515R характеризовался энергетическим разрешением 550 эВ для энергии 122 кэВ. Размеры HPGe-кристалла  $\varnothing 25,5 \times 15,0$  мм.

Для обработки сигнала использовался цифровой многоканальный анализатор DSA-1000 (Canberra). В состав анализатора входит цифровой сигнальный процессор на 16000 каналов, стабилизатор спектра, универсальный источник высокого напряжения и память на 16000 каналов спектра. Анализатор соединялся с компьютером по интерфейсам USB и работал под управлением базового программного обеспечения Genie-2000.

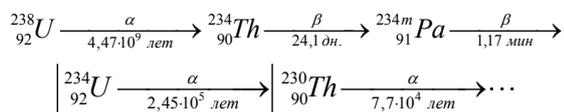
При работе с коаксиальным детектором измерялись гамма-спектры в области энергий 120...1001 кэВ с последующим их анализом

программой FRAM. Для уменьшения фоновой загрузки детектора импульсами от рентгеновских квантов и низкоэнергетических ( $E_\gamma < 100$  кэВ) гамма-квантов непосредственно перед детектором помещался поглотитель  $\sim 1,2$  мм Cd. Расстояние «образец–детектор» для каждого образца выбирали в пределах 20...50 мм, исходя из соображения, чтобы мертвое время регистрирующей системы не превышало 10%.

При работе с низкоэнергетическим (планарным) детектором измерялись гамма-спектры в области энергий 80...205 кэВ с последующим их анализом программами FRAM и MGAU. Образец размещался непосредственно перед окном детектора.

Стандартная длительность экспозиции составляла 30 мин.

Программа MGAU (Multi-Group Analysis for Uranium) является адаптацией пакета анализа плутониевых образцов MGA, разработанного в 1990 г., и предназначена для работы с урановыми образцами [5]. Данный метод анализа основан на измерении интенсивностей близких по энергии линий гамма- и рентгеновского излучений  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в энергетической области 89...100 кэВ. В этом диапазоне излучаются две практически одинаковые по энергии гамма-линии: 92,38 и 92,80 кэВ, которые принадлежат  $^{234}\text{Th}$  (см. далее схему распада). В этой области также присутствуют линии рентгеновского характеристического излучения Th, 93,35 кэВ ( $\text{ThK}\alpha_1$ ) и 89,96 кэВ ( $\text{ThK}\alpha_2$ ), которые испускаются непосредственно в распаде  $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$ , а также менее интенсивные рентгеновские линии Pa: 95,86 кэВ ( $\text{PaK}\alpha_1$ ) и 92,28 кэВ ( $\text{PaK}\alpha_2$ ) из  $\beta$ -распада  $^{231}\text{Th} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$ .



Также небольшой вклад дают гамма-линии 96,09 кэВ ( $^{235}\text{U}$ ); 89,95 и 99,28 кэВ ( $^{231}\text{Th}$ ), которые вместе с указанными рентгеновскими линиями определяют вклад  $^{235}\text{U}$  в данную область спектра. Кроме этого, одними из наиболее интенсивных линий на данном участке спектра являются линии рентгеновской флуоресценции урана: 98,43 кэВ ( $\text{UK}\alpha_1$ ) и 94,65 кэВ ( $\text{UK}\alpha_2$ ), которые индуцируются собственным гамма-излучением образца и вместе с соответствующими линиями  $\text{K}_\beta$ -серии всегда присутствуют в спектре.

Наличие такого большого количества линий на узком участке спектра делает необходимым использование процедуры разложения сильно наложенных пиков. Высокая эффективность реализованного в MGAU итерационного процесса разложения достигается за счет использования идеологии функции отклика. Суть ее состоит в том, что для каждого изотопа строится функция отклика, которая описывает его вклад в данную область спектра. При этом максимальным образом используется имеющаяся

информация о положении линий в спектре излучения данного изотопа и продуктов его распада, а также их интенсивностях [5]. За счет этого достигается существенное уменьшение количества параметров, которые определяются в результате подгонки, и значительно возрастает скорость обработки сложного участка спектра. При построении функций отклика надлежащим образом учитывается разница в форме рентгеновских и  $\gamma$ -линий, параметры которых оцениваются по одиночным интенсивным линиям 98,43 кэВ ( $\text{UK}\alpha_1$ ) и 185,7 кэВ ( $\gamma^{235}\text{U}$ ). Эти же линии используются для оценки энергетической шкалы спектра. Таким образом, MGAU проводит подгонку нормализованных функций отклика на участке 89...100 кэВ спектра и по полученным интенсивностям откликов рассчитывает содержание  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$ . Содержание  $^{234}\text{U}$  также определяется программой при обработке одиночной линии 120,9 кэВ.

Программа FRAM (Fixed-energy Response-function Analysis with Multiple efficiency) [6] была разработана для анализа в первую очередь плутониевых и смешанных уран-плутониевых образцов. Данная программа использует для обработки  $\gamma$ -спектров линии излучения  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  в широком диапазоне энергий 120...1001 кэВ (табл. 3) [7].

Таблица 3  
Энергии, используемые FRAM при анализе изотопного состава урана

$^{234}\text{U}$ , кэВ	$^{235}\text{U}$ , кэВ	$^{238}\text{U}$ , кэВ
120,9	143,8	258,4
	163,4	742,8
	185,7	766,4
	195,0	786,3
	202,1	880,5
	205,3	883,2
		945,9
	1001,0	

FRAM, так же как и MGAU, автоматически проводит обработку измеренного гамма-спектра с использованием идеологии функции отклика. Далее строится внутренняя калибровка по эффективности – отдельно для высокоэнергетической и низкоэнергетической областей спектра. После этого обе калибровки «сшиваются» с использованием нормировки по пику 258 кэВ  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , наличие которого в спектре является критическим с точки зрения возможности проведения анализа. Вообще диапазон 240...260 кэВ для FRAM является очень важным, так как точность определения площади пика 258 кэВ фактически определяет окончательную точность измерения обогащения  $^{235}\text{U}$ , поскольку пики от  $^{238}\text{U}$ , используемые для определения изотопного соотношения, находятся в высокоэнергетической части спектра, а

соответствующие пики от  $^{235}\text{U}$  – в низкоэнергетической.

Определенная таким образом эффективность используется для расчета изотопных отношений в измеряемом образце урана. Аналогично MGAU метод FRAM не нуждается в проведении калибровочных измерений и введении поправок на эффект матрицы и поглощение в образце и стенках контейнера.

В 2005 году авторами пакета программного обеспечения FRAM (LANL, США) была выпущена новая версия продукта v. 4.4. Основные отличия этой версии (применительно к анализу урановых образцов) следующие: добавлена поправка на прогнозируемое количество  $^{236}\text{U}$ ; введена поправка на неравновесное состояние  $^{234}\text{Pa}$ ; добавлена возможность анализа низкоэнергетической части спектра (80...205 кэВ).

## ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

В ходе проведения исследований было измерено около 100  $\gamma$ -спектров стандартных урановых образцов с обогащениями 0,71; 4,46 и 20,1% по  $^{235}\text{U}$  при помощи коаксиального и планарного Ge-детекторов. На рис. 1 и 2 приведены спектры уранового образца с обогащением 4,46% по  $^{235}\text{U}$ , полученные с помощью коаксиального Ge-детектора.

Следует отметить, что при обработке результатов измерений с помощью программы FRAM могут быть использованы  $\gamma$ -спектры, полученные как с помощью коаксиального, так и с помощью планарного Ge-детекторов. Программа обработки  $\gamma$ -спектров MGAU корректно работает при использовании спектров, полученных только с помощью низкоэнергетического планарного Ge-детектора.

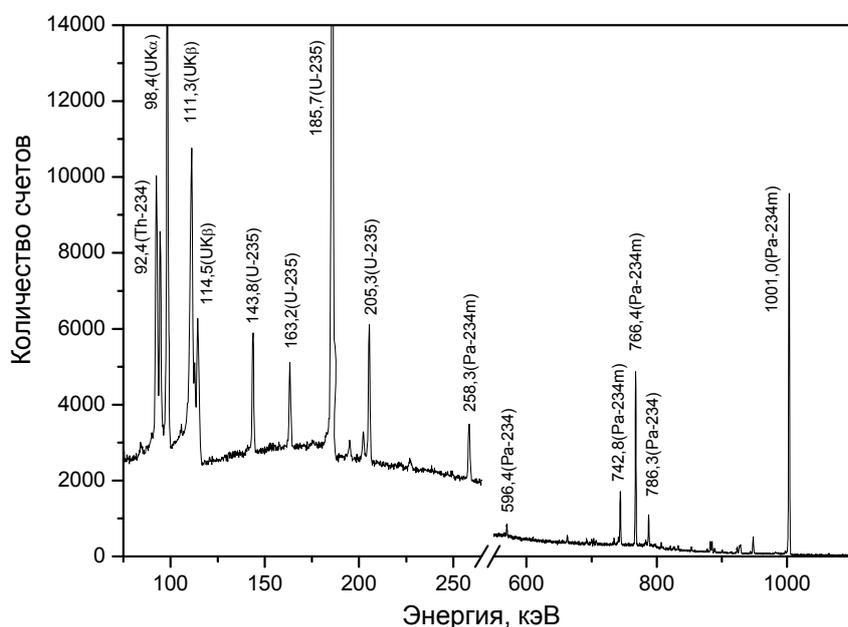


Рис. 1. Гамма-спектр уранового образца с обогащением 4,46% по  $^{235}\text{U}$ , полученный с помощью коаксиального Ge-детектора

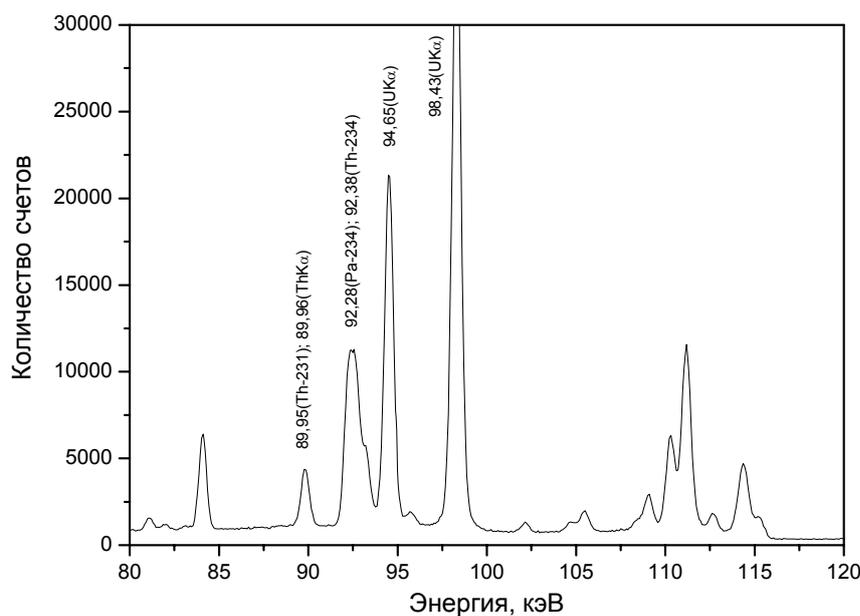


Рис. 2. Участок  $\gamma$ -спектра уранового образца с обогащением 4,46% по  $^{235}\text{U}$ , полученный с помощью планарного Ge-детектора

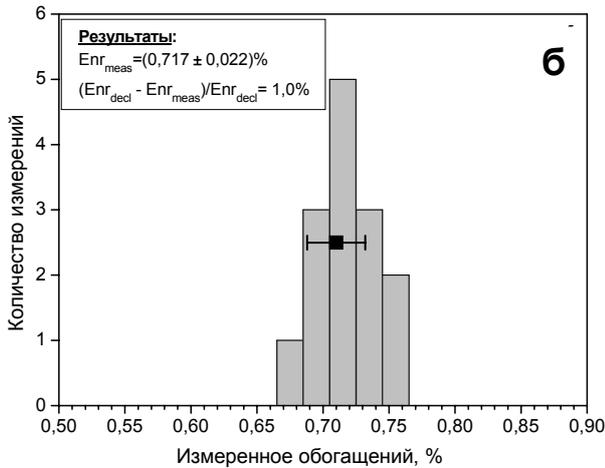
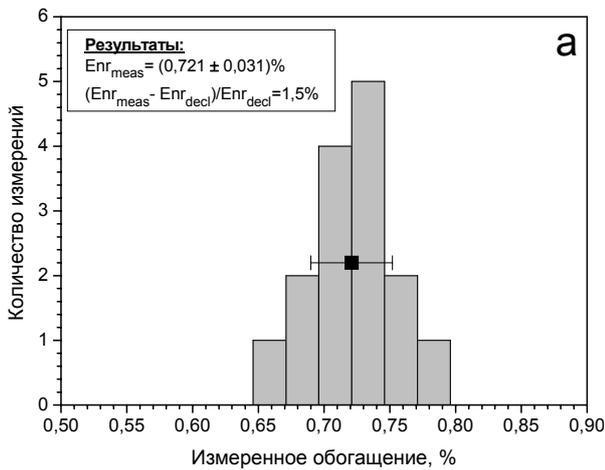


Рис. 3. Статистические распределения результатов измерения обогащения стандартного образца (0,71% по  $^{235}\text{U}$ ): а – коаксиальный детектор; б – планарный детектор

Результаты обработки серии спектров для каждого стандартного уранового образца, измеренные с одинаковой статистикой, подвергались статистической обработке: находились среднее значение обогащения  $\overline{Enr}$  и среднеквадратичное отклонение  $SD$ :

$$\overline{Enr} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n Enr_i,$$

$$SD = \left[ \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (Enr_i - \overline{Enr})^2 \right]^{1/2},$$

где  $n$  – число измерений;  $Enr_i$  – значение обогащения, полученное обработкой  $i$ -го спектра.

На рис. 3, 4 и 5 в виде гистограмм приведены статистические распределения результатов измерений величины обогащения для различных образцов. Точка с интервалом погрешности по оси абсцисс соответствует среднему значению обогащения  $\overline{Enr}$  и среднеквадратичному отклонению  $SD$ , полученным по приведенным ранее формулам.

Кроме того, при проведении измерений с коаксиальным детектором была проведена оценка величины относительного отклонения измеренного

значения обогащения  $Enr_{meas}$  от декларированного значения  $Enr_{decl}$  в зависимости от расстояния «образец-детектор» для образца обогащением 4,46%. Результаты измерений не обнаруживают зависимости величины измеренного обогащения от расстояния «образец-детектор». Таким образом, авторам в новой версии программы FRAM (v. 4.4) удалось должным образом скорректировать вклад «истинных совпадений» от каскадных гамма-квантов, обсуждаемый подробно в работе [6].

Отметим, что на рис. 3, 4 и 5 приведены лишь некоторые результаты обработки экспериментальных спектров с коаксиального детектора – программой FRAM и с планарного детектора – программой MGAU. Отклонения значения обогащения от декларированной величины для остальных результатов обработки лежат в интервале от 1 до 3,8%.

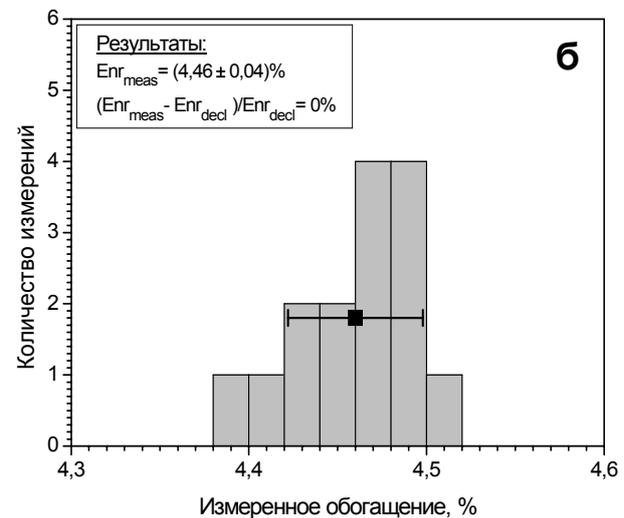
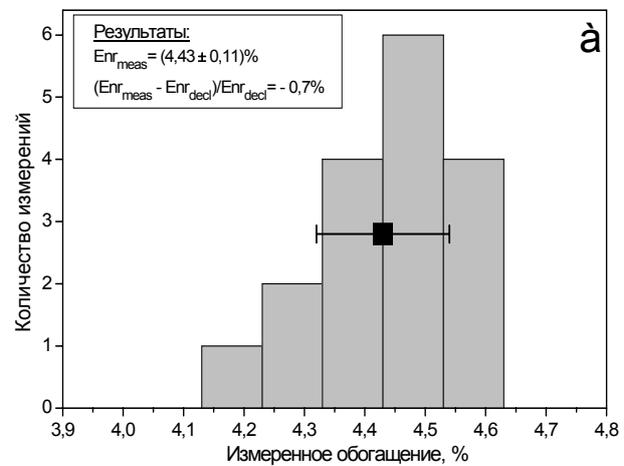


Рис. 4. Статистические распределения результатов измерения обогащения стандартного образца (4,46% по  $^{235}\text{U}$ ): а – коаксиальный детектор; б – планарный детектор

В пакете FRAM в отличие от MGAU предусмотрено несколько различных алгоритмов обработки результатов измерений, использование которых осуществляется посредством выбора необходимого набора параметров с помощью

редактируемого файла. Пакет содержит целый набор рекомендуемых входных файлов, включая отдельные файлы для анализа низкообогащенного урана (менее 10% по  $^{235}\text{U}$ ) и высокообогащенного урана (более 70% по  $^{235}\text{U}$ ). Была проведена обработка измеренных спектров с использованием всего набора с целью нахождения варианта обработки, дающего наилучшее согласие с декларированными величинами обогащения для всех образцов. На рис. 3,а, 4,а и 5,а приведены результаты обработки с использованием файла входных параметров: UCoax\_121\_1001.pst из пакета FRAM.

Из рисунков следует, что максимальное отличие измеренного обогащения от декларированной величины в этом варианте обработки не превышает 1,5%.

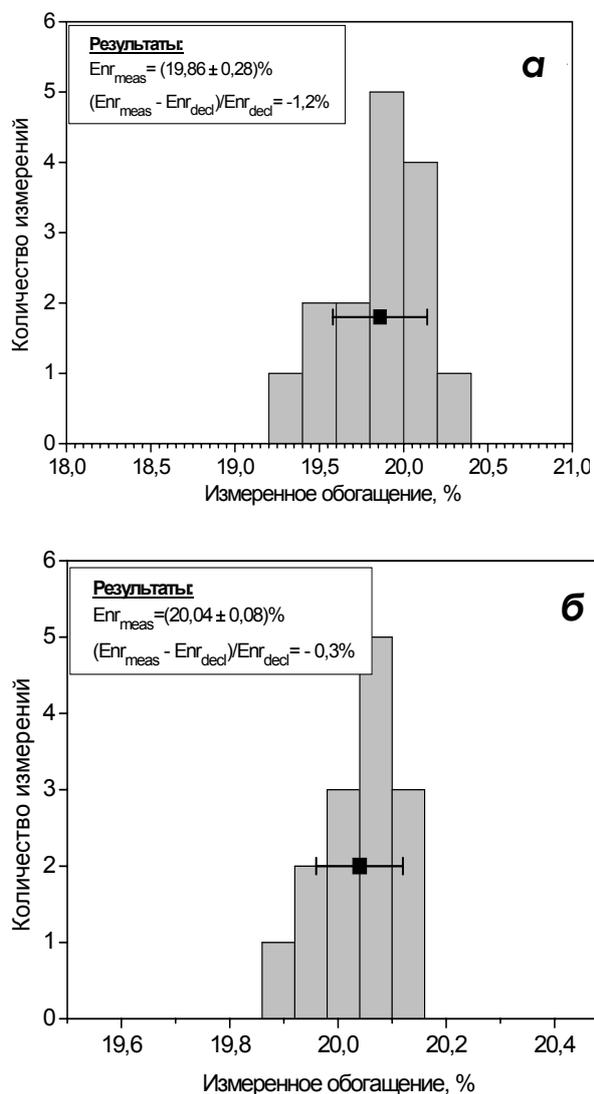


Рис. 5. Статистические распределения результатов измерения обогащения стандартного образца (20,1% по  $^{235}\text{U}$ ): а – коаксиальный детектор; б – планарный детектор

## ВЫВОДЫ

На основе полученных результатов можно сделать следующие выводы:

1. Проведена оценка суммарной ошибки определения величины обогащения методами  $\gamma$ -спектрометрии с использованием программ анализа  $\gamma$ -спектров урановых образцов MGAU и FRAM.

2. Использование коаксиального Ge-детектора и программы обработки  $\gamma$ -спектров FRAM позволяет выполнять измерения обогащения (по  $^{235}\text{U}$ ) урановых материалов с точностью  $\sim 1,5\%$ .

3. Использование планарного Ge-детектора и программы обработки  $\gamma$ -спектров MGAU позволяет выполнять измерения обогащения (по  $^{235}\text{U}$ ) урановых материалов с точностью  $\sim 1\%$ .

4. Таким образом, приведенные результаты свидетельствуют о том, что имеющиеся в распоряжении ННЦ ХФТИ экспериментальное оборудование и средства математической обработки позволяют измерять неразрушающим методом обогащение урановых образцов с точностью не хуже 2%, что удовлетворяет требованиям ГКЯРУ в области создания систем измерений ядерных материалов на предприятиях Украины.

Работа выполнена при поддержке Научно-технического центра Украины, проект P-233A.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Д. Райлли, Н. Энслин, Х. Смит, С. Крайнер. *Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов*. М.: «Бином», 2000, 703 с.

2. Держатомрегулювання України [Електрон. ресурс] / ГКЯРУ. Способ доступа: URL: <http://zakon.rada.gov.ua/>. Загл. с экрана.

3. С. Гуардини, П. Скиллебек, Б. Рязанов и др. Изготовление стандартных образцов для методов неразрушающего контроля для учебно-методического центра по учету и контролю // *Труды Международной конференции по учету и контролю ядерных материалов MPC&A-2000*. Обнинск (Россия), 2000, с. 3.58-3.69.

4. Ю.А. Воробьев. Гамма-спектрометрический анализ в контроле и учете ядерных материалов // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Ядерное приборостроение»*. 2000, в. 1(18), с. 33-39.

5. R. Gunnink, W.D. Ruhter, P. Miller, J. Goerten, M. Swinhoe, et al. *MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitrary Samples*. UCRL-JC-114713, LLNL, Livermore, USA, 1994.

6. D.T. Vo. Uranium Isotopic Analysis with the FRAM Isotopic code / LA 13580, LANL, Los Alamos, USA, 1999.

7. A.N. Berlizov, V.V. Tryshyn. Study of the MGAU applicability to accurate isotopic characterization of uranium samples // *Proceeding of the Symposium on International Safeguards: Verification and Nuclear Material Security, 29 Oct. – 1 Nov., 2001, IAEA, Vienna, Austria*.

Статья поступила в редакцию 23.04.2009 г.

## **ВИЗНАЧЕННЯ ЗБАГАЧЕННЯ УРАНОВИХ МАТЕРІАЛІВ ГАМА-СПЕКТРОМЕТРИЧНИМИ МЕТОДАМИ**

*Д.В. Кутній, Ю.М. Телегін, М.П. Одейчук, В.О. Михайлов, В.Ю. Товканец*

Досліджувалася сумарна помилка визначення величини збагачення методами гама-спектрометрії з використанням комерційно доступних програм аналізу гама-спектрів уранових зразків MGAU (LLNL, США) і FRAM (LANL, США). При проведенні досліджень використовувалися уранові зразки із збагаченням 0,71; 4,46 і 20,1% по  $^{235}\text{U}$ . Як детектори гама-випромінювання використовувалися детектори на основі германію високої чистоти: коаксіальний детектор (серії GC) і планарний низькоенергетичний детектор (серії LEGe). Показано, що експериментальне обладнання, що є у розпорядженні ННЦ ХФТІ, і засоби математичної обробки дозволяють вимірювати неруйнуючим методом збагачення уранових зразків з точністю не гірше 2%.

## **DETERMINATION OF URANIUM ENRICHMENT BY USING GAMMA-SPECTROMETRIC METHODS**

*D.V. Kutniy, Yu.N. Telegin, N.P. Odeychuk, V.A. Mikhaylov, V.E. Tovkanets*

By using commercial analysis programs MGAU (LLNL, USA) and FRAM (LANL, USA) the summary error of gamma-spectrometric uranium enrichment measurements was investigated. Uranium samples with enrichments of 0,71; 4,46 and 20,1 % were measured. The coaxial high purity germanium detector (type GC) and the planar germanium detector (type LEGe) were used as gamma-radiation detectors. It was shown that experimental equipment and mathematical software available in NSC KIPT allow us to measure uranium enrichment by nondestructive method with accuracy of not worse than 2%.