

## ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕССА ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПНОГО СОСТАВА УРАНА КОДОМ MGAU С ПОМОЩЬЮ СТАТИСТИЧЕСКИХ МЕТОДОВ

**В.И. Бойко, М.Е. Силаев, Ю.В. Недбайло**

*Национальный исследовательский Томский политехнический университет,  
г. Томск*



Приведен статистический анализ результатов определения изотопного состава урана, полученных с помощью программы MGAU. В качестве статистического метода выбран многофакторный дисперсионный анализ. По результатам проведенного анализа составлены рекомендации по использованию данного программного кода в сочетании с низкоэнергетическим планарным детектором, позволяющие оптимизировать процесс измерения изотопного состава урана.

**Ключевые слова:** обогащение урана, расчетный код MGAU, спектрометрический анализ, германиевый детектор, погрешность, многофакторный анализ.

**Key words:** uranium enrichment, program code MGAU, spectroscopy analysis, germanium detector, multivariate analysis.

Определение степени обогащения урана является сложной задачей. Прежде всего это связано с тем, что интерпретация полученных данных зависит от тщательности калибровки измерительной системы и от того, насколько точно условия измерения воспроизводятся при выполнении анализов. При небольших изменениях в условиях анализа (геометрии системы «детектор-образец», параметров детектирования, гомогенности образца, его химического состава, массы, формы) по отношению к калибровочному стандарту в результаты могут быть внесены значительные погрешности, определение и учет которых является трудоемкой задачей. В связи с этим в области измерения изотопного состава и обогащения используется специализированное программное обеспечение, основанное на унифицированных алгоритмах, позволяющих реализовать сложные математические методики расчетов в автоматическом режиме и обеспечить тем самым приемлемую точность анализа.

Одной из наиболее распространенных программ обработки результатов гамма-спектрометрических измерений и анализа изотопного состава урансодержащих ядерных материалов является программа MGAU. Данная программа широко используется для целей учета и контроля ядерных материалов в производствен-

ных условиях и является одним из основных инструментов для инспекторов МАГАТЭ.

Необходимо отметить, что доступные источники информации, на основании которой проводится анализ и предлагаются практические рекомендации по использованию кода MGAU, являются достаточно ограниченными. Наиболее подробное изложение принципов метода, реализованного в коде MGAU, и рекомендаций по его использованию приведено в работах [1, 2]. Минимум технических сведений, необходимых для выполнения анализов, излагается в материалах, представляемых фирмами-поставщиками оборудования. Часть публикаций является коммерчески доступной [3, 4]. Для доступа к другой части необходимо специальное разрешение или наличие официальной регистрации и доступа к информации на сайтах национальных лабораторий США. Среди статей и отчетов, находящихся в открытом доступе и имеющих отношение к рассматриваемой теме, наиболее значимыми являются [5–7].

На основании приведенных выше литературных источников были сделаны выводы об особенностях и ограничениях программы MGAU. К основным особенностям рассматриваемого кода можно отнести возможность работы с широким набором образцов различного элементного состава и массы; отсутствие требования предварительной калибровки по эффективности и простоту рабочих алгоритмов, а также низкую заявленную погрешность в результатах измерений (в пределах 1–2%) для времени набора спектра, составляющего несколько минут. При этом в литературе и рекомендациях по использованию данного кода не указаны условия проведения измерений по анализу изотопного состава урана для получения малых погрешностей.

Основное ограничение программы MGAU связано с тем, что код является закрытым, т.е. изменить его настройки, связанные с расчетами изотопного состава и калибровкой по энергии, нельзя. Возможно только косвенное влияние на конечные результаты анализов путем внесения изменений в процесс измерений. Учитывая тот факт, что результаты анализов не всегда могут быть удовлетворительными, от оператора требуется знание того, каким образом различные факторы могут повлиять на погрешность в результатах, при каких условиях (время, расстояния, калибровка по энергии) должны проводиться измерения.

Целью выполненной работы являлась оптимизация процесса анализа изотопного состава урана с помощью расчетного кода MGAU. Под оптимизацией подразумевается разработка рекомендаций по практическому и эффективному использованию кода, основанных на многофакторном анализе результатов измерений при различных условиях (факторах) их выполнения.

В качестве условий принимались различные геометрии системы «измеряемый образец – детектор»; время измерений; калибровка спектрометрического тракта по энергии. Влияние калибровки на результаты анализа обусловлены отличиями в уравнениях калибровочных кривых, используемых расчетным кодом, для источников излучения с различным обогащением. Поэтому калибровка должна учитываться как независимое условие, несмотря на то, что ее влияние на конечный результат является незначительным (при правильной настройке коэффициента усиления спектрометрического тракта).

Условия изменялись в ходе выполнения экспериментальной части работы. Поиск закономерностей в результатах анализов выполнялся с помощью статистических методов.

Для проведения экспериментальной части работы использовались образцовые источники урана (ОСО) с обогащением 0,71; 3,6; 21; 36 и 90% одной формы и

размеров, представляющие собой герметические стальные цилиндры диаметром 12 мм и высотой 40 мм. Массы двуокиси урана в каждом образцовом источнике составляли порядка 8 г. Стандартные образцы специально разработаны и изготовлены для анализа изотопного состава урана с учетом «бесконечной толщины» для линий низкоэнергетического рентгеновского и гамма-излучений, используемых в алгоритме расчетного кода (например, для количественного анализа  $^{235}\text{U}$  используется  $\text{ThK}\alpha_2$  линия рентгеновского излучения с энергией 89,954). Поэтому результаты исследований могут быть распространены на образцы большей массы, имеющие аналогичную «бесконечную толщину» ослабления потока фотонов рентгеновского и гамма-излучений.

Все измерения проводились с использованием спектрометрического тракта с  $\text{LeGe}$ -детектором. Данный тип детектора необходим для выполнения анализов с помощью программы MGAU. Детектор был оснащен стандартным коллиматором, изготовленным из сплава тяжелого металла. Коллиматор требуется для уменьшения влияния фонового излучения на результаты анализов.

Экспериментальная часть работы была условно разделена на две серии исследований. Первая серия была предназначена для оценки влияния времени анализа и калибровки спектрометрического тракта на точность определения изотопного состава урана в образцах. Во второй серии экспериментов определялось, каким образом геометрия «измеряемый образец – детектор» влияет на результаты определения обогащения.

Исходя из технических характеристик (размеров) детектора и коллиматора было установлено, что более эффективным является измерение образца при его расположении на оси симметрии детектора, проходящей через его торцевую поверхность.

В первой серии экспериментов спектрометрический тракт калибровался по одному из ОСО. На основании проведенной калибровки выполнялся анализ изотопного состава для ОСО с различным значением обогащения. После этого калибровка выполнялась с ОСО другого обогащения, и вся процедура измерений повторялась. Длительность калибровочного измерения составляла один час. Калибровку по урану 90%-го обогащения выполнить не удалось из-за малой статистики в пиках полного поглощения  $^{234}\text{Th}$ . Каждый анализ включал в себя пять измерений длительностью 300, 600, 900, 1200 и 1500 с. Общее количество измерений в первой серии – 500.

Во второй серии экспериментов ОСО последовательно перемещался вдоль оси соединяющей его предполагаемый геометрический центр с геометрическим центром детектора по направлению от детектора. Измерения были проведены для расстояний 0, 1, 2, 3, 4, 5 см с длительностью измерений от 300 до 1500 с (как и в предыдущем эксперименте). В нескольких случаях выполнить анализ изотопного состава урана не удалось из-за малой статистики в пиках полного поглощения 92 – 93 кэВ, а также в пиках полного поглощения  $^{234}\text{Th}$ . Общее количество измерений во второй серии – 675.

Для определения закономерности влияния условий измерений на точность анализов использовался метод двухфакторного дисперсионного анализа, так как в настоящее время отсутствуют общепринятые методы многофакторного анализа для подобных систем [8]. Данный метод позволяет определить степень влияния каждого фактора в отдельности и совокупности факторов на результаты измерений.

Одним из основных условий при статистической обработке результатов измерений методом многофакторного анализа является нормальность распределения

анализируемых групп данных. Для проверки нормальности распределения были проведены 100 контрольных анализов изотопного состава образца с 36%-ным обогащением, расположенного вплотную к коллиматору детектора (на расстоянии 0 см), и временем набора спектра 300 с. Нормальность анализируемых данных была подтверждена посредством использования критерия Колмогорова.

Двухфакторный анализ основан на расчете дисперсий:

- межгрупповая по фактору А

$$s_1^2 = \frac{\sum_{i=1}^m \left( \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{l \cdot n} - \frac{\left( \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{m \cdot l \cdot n}; \quad (1)$$

- межгрупповая по фактору В

$$s_2^2 = \frac{\sum_{j=1}^l \left( \sum_{i=1}^m \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{m \cdot n} - \frac{\left( \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{m \cdot l \cdot n}; \quad (2)$$

- взаимодействие факторов

$$s_3^2 = \frac{\left( \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{m \cdot l \cdot n} + \frac{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \left( \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{n} - \frac{\sum_{j=1}^l \left( \sum_{i=1}^m \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{m \cdot n} - \frac{\sum_{i=1}^m \left( \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{l \cdot n}; \quad (3)$$

- остаточная

$$s_4^2 = \frac{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \sum_{k=1}^n x_{ijk}^2 - \frac{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^l \left( \sum_{k=1}^n x_{ijk} \right)^2}{n}}{m \cdot l \cdot n - m \cdot l}, \quad (4)$$

где  $m$  – число значений фактора А;  $n$  – число значений фактора В;  $l$  – количество испытаний, проведенных при постоянстве факторов А и В.

Далее выполняется сравнение отношений дисперсий с табличными значениями распределения Фишера–Снедекора.

Если значение вычисленного критерия больше табличного значения, влияние фактора считается существенным (значимым).

При анализе результатов первой серии экспериментов за фактор А была принята длительность измерения, а за фактор В – калибровка спектрометрического тракта. Расчёты проводились для каждого ОСО в отдельности (рис. 1а). Анализ результатов второй серии экспериментов был выполнен для образцов с обогащением 21, 36, 90%, при этом за фактор А было принято время измерения, а за фактор В – расстояние между детектором и образцом (от 1 до 4 см). Результаты расчетов приведены на рис. 1б.

В результате статистического анализа влияния факторов на погрешность измерений был сделан вывод, что влияние калибровки спектрометрического тракта в сочетании со временем измерений является несущественным для проведения анализов. Влияние факторов геометрии измерений в сочетании со временем оказывает существенное влияние на результаты.

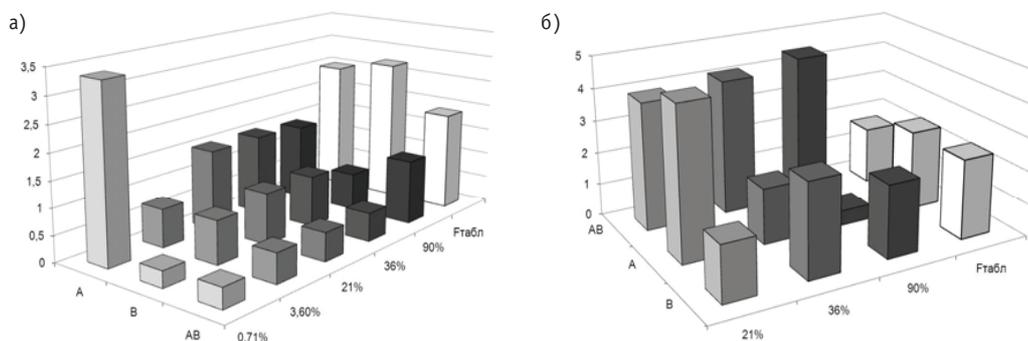


Рис. 1. Результаты многофакторного дисперсионного анализа для первой (а) и второй (б) серий экспериментов: А – оценка влияния фактора А; В – оценка влияния фактора В; АВ – оценка совместного влияния факторов А и В;  $F_{\text{табл}}$  – табличное значение распределения Фишера-Снедекора

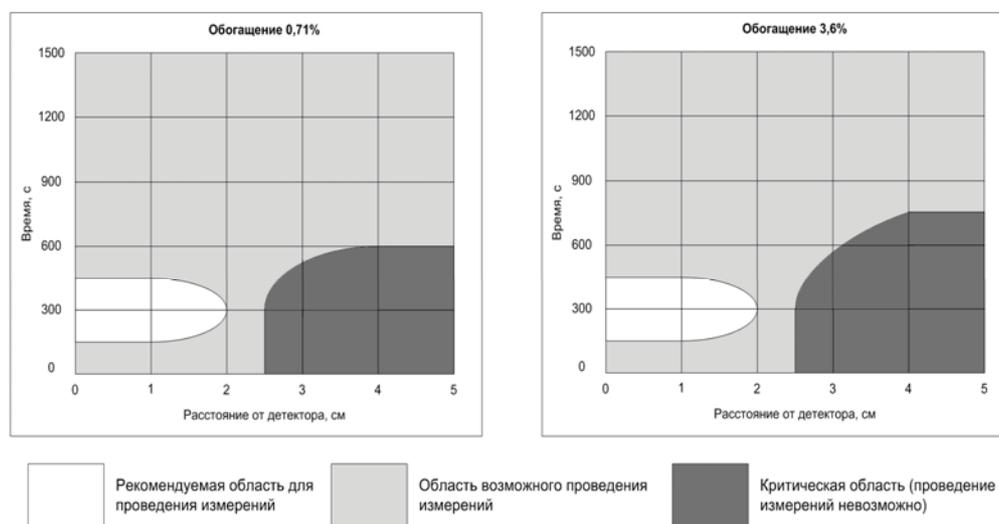


Рис. 2. Области проведения измерений для образцов с обогащением 0,71 и 3,6%

На основании полученных данных были выделены области сочетания факторов, в которых проведение анализов рекомендуется (рис. 2).

По результатам выполненной работы в отношении проведения анализов изотопного состава урана с использованием гамма-спектрометрического комплекса «U-Pu InSpector» с низкоэнергетическим планарным детектором (LeGe) были предложены следующие рекомендации, оптимизирующие указанный процесс:

- калибровка спектрометрического тракта должна выполняться с помощью образцов, содержащих менее 90% изотопа  $^{235}\text{U}$ ;
- 300 с является минимально достаточным временем набора спектра для получения результатов анализа с погрешностью 2–4% (при доверительной вероятности 0,95);
- для образцов с изотопным содержанием  $^{235}\text{U}$  меньше 36% проведение измерений следует проводить на расстоянии не более 1 см от торца коллиматора.

Соблюдение рекомендуемой геометрии системы «образец-детектор» и временного интервала для выполнения измерений позволит сэкономить время, избежать ошибочных данных, достигнуть требуемой точности при проведении экспериментов.

**Литература**

1. Райли Д., Энслин Н. и др. Пассивный неразрушающий анализ ядерных материалов. – М.: Бинном, 2000. – 720 с.
2. Бушуев А.В. Методы измерений ядерных материалов/ Бушуев А.В. – М.: МИФИ, 2001. – 172 с.
3. Abousahl S., Michiels A., Bickel M., Gunnink R. and Verplancke J. Applicability and limits of the MGAU code for the determination of the enrichment of uranium samples// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 1996. – V. 368. – P. 443-448.
4. Berlizov A.N., Gunnink R., Zsigrai J., Nguyen C.T., Tryshyn V.V. Performance testing of the upgraded uranium isotopics multi-group analysis code MGAU// Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, Volume 575, Issue 3, 1 June 2007. – P. 498-506.
5. Gunnink R., Ruhter W.D., Miller P., Goerten J., Swinhoe M., Wagner H., Verplancke J., Bickel M., and Abousahl S. MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitrary Samples // International Nuclear Safeguards 1994, vision for the future: proceedings of a Symposium on International Safeguards. – Vienna: IAEA, 1994. – P. 541-546.
6. Ruhter W., Gunnink R. Measurement of Plutonium and Uranium Isotopic Abundances by Gamma-Ray Spectrometry/ 11<sup>th</sup> International Workshop on Accurate Measurements in Nuclear Spectroscopy. – Sarov, 1996. – P.1-5
7. Berlizov A.N., Tryshyn V.V. Study of the MGAU applicability to accurate isotopic characterization of uranium samples. – IAEA-SM-367/14/05/P.
8. Кремер Н.Ш. Теория вероятностей и математическая статистика. – М.: ЮНИТИ, 2000. – 575 с.

Поступила в редакцию 13.04.2012

The liquid metal coolants including lead containing metallic melts are used in a number of nuclear reactors at present. The impurities being contained in the coolant, primarily oxygen impurity, exert an important effect on its quality. Knowledge of the true values of the thermodynamic activity (TDA) of oxygen in different parts of the circuit enables this quantity to be held in a proper range. This is necessary to prevent slag formation and oxide phase crystallization in the "cold" parts of the circuit and preserve the protective oxide coating on the inner surfaces of structural materials in the "hot" sites. To do this, the OASCR calibration rig capable of reproducing the different modes of oxygen activity in liquid lead is constructed and tested. The OASCR calibration rig is entered in the State List. In SSC RF IPPE the OAA-1 analyzer is developed as well, to measure the oxygen activity in liquid lead and lead-bismuth. The analyzer makes it possible to take continuous remote measurements of the thermodynamic activity of oxygen in molten lead. In 2011 the OAA-1 analyzers were successfully tested using the OASCR test rig.

**УДК 621.039.51**

*Optimization of Isotopic Composition Identification by Program Code MGAU using Statistical Methods* \ V.I. Boyko, M.E. Silaev, Y.V. Nedbaylo; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 6 pages, 2 illustrations. – References, 8 titles.

This paper includes statistical analysis of isotopic composition results that were got with program MGAU. Multivariate analysis was chosen as suitable statistical method. In accordance with results of analysis the recommendations were made for using of this program code in combination with Low Energy Germanium Detector. These recommendations give opportunity to optimize of measurement process of uranium isotopic composition.

**УДК 621.039.51**

*IRT Research Reactor Burnup Calculation for the Analysis of Conversion to Low Enrichment Uranium Fuel* \ S.V. Ivakhin, A.I. Radaev, G.V. Tikhomirov, M.V. Shchurovskaya; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 10 pages, 5 tables, 4 illustrations. – References, 8 titles.

Neutronic characteristics of IRT-3M fuel assembly with dioxide high enrichment uranium (HEU) fuel and uranium-molybdenum low enrichment uranium (LEU) fuel are considered. Results of calculation of irradiated fuel isotope composition are presented. Test problems for IRT cells with HEU and LEU fuel calculated by MCU and MCNP codes are proposed.

**УДК 621.311.25.004.7**

*Creation and Application of Multidimensional Information Models of NPP Unit for Decommissioning* \ B.K. Bylkin, V.L. Tikhonovsky, D.V. Chuyko; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 11 pages, 3 illustrations. – References, 10 titles.

Basic principles of the imitational modeling application for the nuclear power plant decommissioning planning have been described.

**УДК 532.546**

*The comparison of Two Approaches for Calculation of the Force Interaction of the Two-Phase Flow with Tube Bundle* \ V.G. Asmolov, V.N. Blinkov, V.I. Melikhov, O.I. Melikhov, A.A. Nerovnov, Y.V. Parfenov; Editorial board of journal «Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika» (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) – Obninsk, 2012. – 6 pages, 2 illustrations. – References, 10 titles.

The comparison of the two different approaches for simulation of the force interaction of the two-phase flow with the external surfaces is presented in the paper. The two-velocity two-phase flow model was developed for calculation of the two-phase pressure drop for the cross flow across tube bundle. The pressure drops across tube bundle were calculated with this model using two different approaches for simulation of the two-phase flow drag with the tube bundle. The calculated results