

ДОСЛІДЖЕННЯ ФАКТОРІВ, ЩО ВПЛИВАЮТЬ НА ТОЧНІСТЬ ВИЗНАЧЕННЯ РІВНЯ ЗБАГАЧЕННЯ УРАНУ МЕТОДОМ БАГАТОГРУПОВОГО АНАЛІЗУ (MGAU)**А.М. Берлізов, В.В. Тришин**

З використанням еталонів збагачення досліджено статистичні характеристики методики багатогрупового аналізу визначення ізотопного складу зразків урану, реалізованої у вигляді портативного спектрометричного комплексу "U-Pu InSpector" і програмного забезпечення MGAU V.1.0, у діапазоні концентрацій 0.32 - 4.5 % за ^{235}U та 0.004 - 0.036 % за ^{234}U . Вивчено також вплив ряду факторів, що можуть призводити до систематичної похибки вимірювань. Отримані дані вказують на наявність залежності результатів вимірювання збагачення за ^{235}U від ізотопного складу зразків урану, а також геометрії вимірювання. Виявлено систематичне заниження виміряного вмісту ^{234}U , що складає біля 23 % у дослідженому діапазоні концентрацій. Обговорюються можливі джерела виявлених систематичних відхилень, а також даються рекомендації щодо вдосконалення коду MGAU.

1. Вступ

Швидке та точне визначення характеристик ядерних матеріалів, зокрема рівня збагачення зразків урану за ^{235}U , є одною з найбільш важливих проблем при здійсненні вхідного та вихідного контролю, а також контролю технологічних процесів на підприємствах ядерного паливного циклу. Це також є не менш важливим при проведенні міжнародних інспекцій у рамках діяльності із забезпечення гарантій мирного використання ядерних матеріалів.

Постійно зростаючий об'єм вимірювань, а також вимоги щодо їх якості обумовлюють необхідність розробки нових, а також вдосконалення існуючих методів визначення ізотопного складу ядерних матеріалів. Перевага при цьому віддається, насамперед, методам неруйнівного аналізу, які володіють високою експресністю, прийнятною точністю та простотою у використанні. Для визначення збагачення урану найбільше поширення серед неруйнівних методик отримали γ -спектрометричні.

Традиційна γ -спектрометрична методика визначення збагачення урану [1, 2], вперше застосована більше 30 років тому, ґрунтується на вимірюванні інтенсивності γ -лінії 185.7 кеВ ^{235}U за допомогою NaI або напівпровідникового детектора. Поряд із простотою реалізації методика, однак, характеризується також певними недоліками - вона вимагає проведення калібрування для кожного типу зразка та умов вимірювання, має не дуже високу точність і застосовна лише для зразків із товщиною в кілька середніх довжин пробігу γ -квантів 185.7 кеВ. Використання більш складної математичної обробки виміряного спектра [3] дозволяє дещо покращити точність аналізу, проте не позбавляє методику від решти вказаних недоліків.

Більш широкі можливості надають методики, що ґрунтуються на вимірюванні відношень інтенсивностей γ -піків [4, 5], оскільки вони не вимагають використання калібрувальних еталонів і застосовні до аналізу зразків довільної товщини і геометрії. При цьому основні труднощі при їх застосуванні полягають у визначенні відносної ефективності реєстрації γ -квантів у широкому діапазоні енергій, оскільки для аналізу береться пара піків (звичайно 185.7 кеВ ^{235}U і 1001 кеВ ^{238}U та деякі інші), які значно відрізняються за енергією, а використання вузьких енергетичних ділянок спектра пов'язано з необхідністю розкладу груп ліній γ - і рентгенівського випромінювання, що знаходяться в області малих (80 - 120 кеВ) енергій і сильно перекриваються.

Поява планарних HPGe детекторів, що володіють високою енергетичною роздільною здатністю (≤ 700 еВ по лінії 122 кеВ), однак, значно спростило цю ситуацію. На початку 90-х

років розроблено методику багатогрупового аналізу та відповідне програмне забезпечення - MGA (Multi-Group Analysis) [6, 7], які використовують для аналізу ізотопного складу зразків плутонію групи близьких за енергією рентгенівських і γ -лікв, що суттєво перекриваються. Цю ж ідеологію було застосовано пізніше [8, 9] при розробці аналогічної методики і відповідного коду MGAU для визначення ізотопного складу зразків урану.

У роботі [10] вивчались характеристики і межі застосовності MGAU з використанням різних типів зразків урану, що відрізнялись фізичною формою, хімічним складом, масою та рівнем збагачення. Особливу увагу було приділено тестуванню методики в умовах значного екранування зразка стінками контейнера, що має велике практичне значення. Проведені дослідження в цілому підтвердили гарні характеристики і можливості методики. Однак, наведені в [10] дані, а також наш особистий досвід використання MGAU вказують на можливість доволі значних відхилень (до 2 - 4 σ) виміряних рівнів збагачення порівняно з декларованими, навіть при забезпеченні найбільш оптимальних для даної методики умов вимірювання. Це, в свою чергу, вказує на необхідність більш широкого тестування коду MGAU і методики аналізу в цілому, особливо якщо мова йде про застосування методики до проведення прецизійного аналізу ізотопного складу зразків урану з точністю < 1 - 2 %.

У даній роботі проведено дослідження статистичних характеристик методики, а також вивчено й оцінено вплив ряду факторів, що можуть за певних умов призвести до помітної систематичної похибки результатів визначення ізотопного складу зразків урану за допомогою методики багатогрупового аналізу. Наведено стислий огляд методики MGAU та відомих границь її застосування. Представлено результати виконаних досліджень статистичних характеристик та систематичних похибок методики. Обговорюються можливі джерела виникнення тих або інших виявлених систематичних відхилень, підводяться підсумки отриманих результатів, а також сформульовано рекомендації щодо можливих вдосконалень методики MGAU та проведення її подальшого тестування.

2. MGAU – принципи побудови

Методика MGAU основана на вимірюванні інтенсивностей близьких за енергією ліній γ - і рентгенівського випромінювання ^{235}U і ^{238}U в енергетичній області 89 - 100 кеВ спектра випромінювання урану (рис. 1). У цьому діапазоні продукти розпаду ^{238}U випромінюють дві практично однакових за енергією γ -ліній, 92.38 і 92.80 кеВ, що належать ^{234}Th . У даній області також присутні лінії рентгенівського характеристичного випромінювання Th, 93.35 кеВ ($\text{ThK}\alpha_1$) і 89.96 кеВ ($\text{ThK}\alpha_2$), що випромінюються безпосередньо в розпаді $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$, а також менш інтенсивні рентгенівські лінії Pa, 95.86 кеВ ($\text{PaK}\alpha_1$) і 92.28 кеВ ($\text{PaK}\alpha_2$), із β -розпаду $^{231}\text{Th} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. Також невеликий внесок дають γ -ліній 96.09 кеВ (^{235}U), 89.95 і 99.28 кеВ (^{231}Th), що разом із зазначеними рентгенівськими лініями визначають внесок ^{235}U в дану область спектра. Крім цього, одними з найбільш інтенсивних ліній на даній ділянці спектра є лінії рентгенівської флуоресценції урану, 98.43 кеВ ($\text{UK}\alpha_1$) і 94.65 кеВ ($\text{UK}\alpha_2$), що індукуються власним γ -випромінюванням зразка і разом з відповідними лініями K β -серії завжди присутні в спектрі.

Наявність такої великої кількості ліній на вузькій ділянці спектра вимагає застосування процедури розкладання сильно накладених піків. Висока ефективність реалізованого в MGAU ітераційного процесу розкладання досягається завдяки використанню ідеології функції відгуку, яку було успішно застосовано при розробці методики багатогрупового аналізу зразків плутонію та відповідного коду MGA. Суть її полягає в тому, що для кожного ізотопу будується функція відгуку, яка описує його внесок в дану область спектра. При цьому максимальним чином використовується наявна апіорна інформація про положення ліній у спектрі випромінювання даного ізотопу і продуктів його розпаду та їх відносні інтенсивності. За рахунок цього досягається суттєве зменшення кількості параметрів, що визначаються в результаті підгонки, та значно зростає швидкість обробки

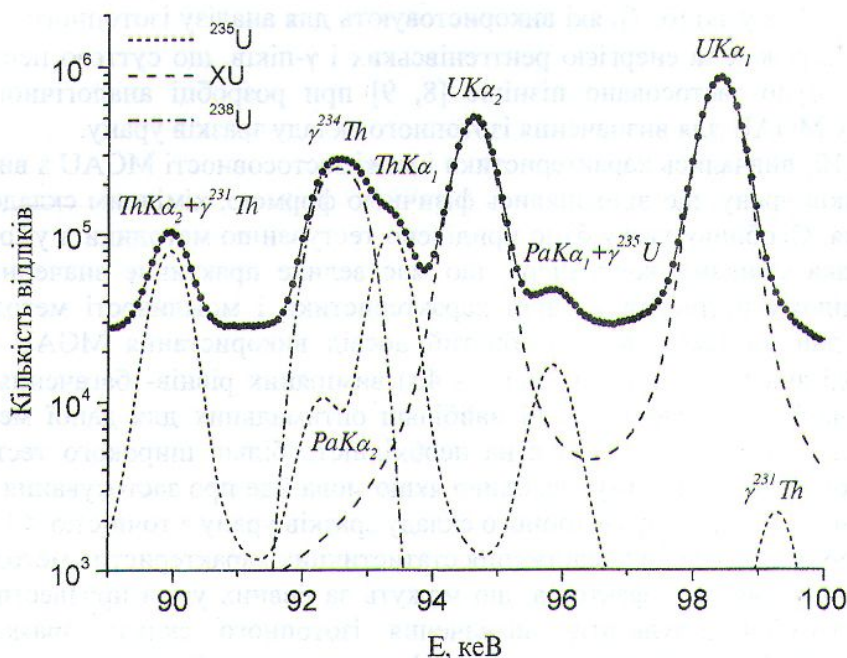


Рис. 1. Робоча ділянка спектра MGAU і окремі функції відгуку, що використовуються для її апроксимації, на прикладі реального спектра випромінювання зразка урану із збагаченням 4.46 % за ^{235}U .

складної ділянки спектра. При побудові функцій відгуку належним чином враховується різниця у формі рентгенівських і γ -ліній, параметри описання яких оцінюються по одиночним інтенсивним лініям 98.43 keV ($\text{UK}\alpha_1$) і 185.71 keV ($\gamma^{235}\text{U}$). Ці ж лінії використовуються для оцінки енергетичної шкали спектра. Таким чином, MGAU проводить підгонку нормалізованих функцій відгуку на ділянці 89 - 100 keV спектра і за отриманими інтенсивностями відгуків розраховує відношення вмісту ^{235}U і ^{238}U . Вміст ^{234}U також визначається програмою при обробці одиночної лінії 120.9 keV.

Незважаючи на те, що піки є досить близькими за енергією, коректне визначення їх відносних інтенсивностей потребує знання відносної ефективності реєстрації. Для її знаходження MGAU використовує процедуру внутрішнього калібрування, яка полягає у визначенні параметрів кривої ефективності за відомими лініями, що присутні в тому ж самому спектрі. Для цього додатково проводиться розшифровка і підгонка складної області спектра 104 - 116 keV, в якій розташовуються $\text{K}\beta$ -лінії рентгенівського випромінювання Pa, Th і U, а параметри кривої ефективності оцінюються, виходячи з відомих відношень інтенсивностей $\text{K}\alpha$ і $\text{K}\beta$ -ліній рентгенівської флуоресценції урану.

Застосування повністю автоматизованих процедур внутрішнього калібрування значно спрощує роботу з MGAU і дозволяє практично позбавитися від впливу поглинання випромінювання зразком і стінками контейнера, а також ефектів матриці. Це дозволяє застосовувати методику для експресного і точного визначення збагачення зразків урану довільного складу і геометрії у багатьох практично важливих ситуаціях. Відомо, однак, ряд випадків, коли застосування методики MGAU є неефективним або зовсім неможливим, а саме:

вимірювання в умовах сильного екранування (5 - 10 мм сталі) зразка, що призводить до суттєвого погіршення статистичної точності аналізу через сильне ослаблення випромінювання в низькоенергетичній області 89 - 100 keV;

точність аналізу також сильно погіршується при дуже великих (> 90 %) або дуже малих (< 0.71 %) рівнях збагачення зразків урану за ^{235}U . Оптимальним збагаченням для

МGAU вважається близько 10 %, при якому площі найбільш інтенсивних ліній ^{235}U і ^{238}U , що розташовані в робочій області спектра, є майже однаковими;

методика не застосовна до зразків, в яких ^{238}U і ^{234}Th не знаходяться у рівновазі. Через довгий час життя ^{234}Th , що складає 24.1 дня, це обмеження становить значну проблему при аналізі зразків, в яких рівновагу було нещодавно порушено (при збагаченні або хімічному розділенні ізотопів);

обмеження у зв'язку з вимірюванням циліндрів з UF_6 , яке полягає в тому, що радіоактивні ізотопи торію можуть утримуватись на внутрішній поверхні циліндрів і при їх наступному використанні даватимуть додатковий внесок у спектр випромінювання нового зразка.

3. Результати досліджень

Дослідження методики проведено з використанням портативної спектрометричної системи "U-Pu InSpector" [11] виробництва фірми Canberra, створеного на базі планарного германієвого детектора GL0515R з площею активної поверхні 500 мм^2 і товщиною чутливого шару 15 мм, розташованого в багатоорієнтаційному криостаті MAC-2.5. Енергетична роздільна здатність спектрометра становила 610 еВ за лінією 122 кеВ. Детектор обладнано внутрішнім багатошаровим захистом, який оптимізовано для області 100 кеВ енергій γ -випромінювання, а також коліматором $\text{Ø}25 \times 10$ мм. Товщина шару алюмінію з боку вхідного вікна детектора становить 0.5 мм. Обробка сигналів та накопичення спектрів здійснювались переносною спектрометричною робочою станцією InSpector Model 1200UPU у парі з комп'ютером IBM ThinkPad під керуванням програмного забезпечення Genie-PC (OS/2). Визначення ізотопного складу урану проводилось при обробці вимірних спектрів за допомогою коду MGAU V.1.0.

При тестуванні використовувався набір стандартних еталонів збагачення урану NBS-116 SRM 969, ізотопний склад яких наведено в табл. 1. До складу набору входить п'ять зразків, що містять по 200 г стандартизованого матеріалу U_3O_8 у вигляді порошку густиною 2.5 г/см^3 з номінальними рівнями збагачення 0.31, 0.71, 1.94, 2.95 і 4.46 % мас. за ^{235}U , упакованого в контейнери з алюмінію, що виготовлені із суворим дотриманням заданих специфікацій. Розмір внутрішнього об'єму контейнерів, що містить стандартизований радіоактивний матеріал, становить $\text{Ø}70 \times 21$ мм, а товщина стінки робочої поверхні - 2 мм. Сертифікацію еталонів проведено Національним бюро стандартів США з використанням методів термоіонізаційної мас-спектрометрії, мас-спектрометрії гексафториду урану UF_6 , а також γ -спектрометрії. Сумарна стандартна похибка збагачення $^{235}\text{U}/\text{U}$ для кожного еталону, згідно сертифікату, становить 0.07 %, що включає похибки вимірювання ізотопних відношень методом мас-спектрометрії, похибку, пов'язану з неомогенністю матеріалу, а також консервативний допуск на інші можливі невраховані похибки вимірювань. Слід зазначити, що поряд з ^{234}U , ^{235}U і ^{238}U , еталони містять незначну кількість ^{236}U , що належним

Таблиця 1. Сертифікований ізотопний склад еталонів збагачення урану NBS-116 SRM 969

| Ізотоп | Еталон | | | | | |
|------------------|---------------|---------|----------|---------|---------|---------|
| | 031 | 071 | 194 | 295 | 446 | |
| ^{234}U | % мас. | 0.0020 | 0.0052 | 0.0171 | 0.0279 | 0.0359 |
| | $\pm 2\sigma$ | 0.0002 | 0.0002 | 0.0002 | 0.0004 | 0.0003 |
| ^{235}U | % мас. | 0.3166 | 0.7119 | 1.9420 | 2.9492 | 4.4623 |
| | $\pm 1\sigma$ | 0.0002 | 0.0005 | 0.0014 | 0.0021 | 0.0032 |
| ^{236}U | % мас. | 0.0146 | <0.00002 | 0.0003 | 0.0033 | 0.0068 |
| | $\pm 2\sigma$ | 0.0003 | | 0.0001 | 0.0002 | 0.0002 |
| ^{238}U | % мас. | 99.6668 | 99.2828 | 98.0406 | 97.0196 | 95.4950 |
| | $\pm 2\sigma$ | 0.0004 | 0.0004 | 0.0018 | 0.0029 | 0.0032 |

Таблиця 2. Сертифікований відносний вміст мікродомішок ізотопів урану, які можуть впливати на точність γ -спектрометричного аналізу еталонів NBS-116 SRM 969

| Домішка | Еталон | | | | |
|---|---------------------|------------------------|----------------------|----------------------|---------------------|
| | 031 | 071 | 194 | 295 | 446 |
| $^{232}\text{U} / ^{235}\text{U}$ | $8 \cdot 10^{-10}$ | $< 0.3 \cdot 10^{-10}$ | $0.3 \cdot 10^{-10}$ | $0.1 \cdot 10^{-10}$ | $1 \cdot 10^{-10}$ |
| $^{233}\text{U} / ^{235}\text{U}$ | $< 5 \cdot 10^{-5}$ | $< 5 \cdot 10^{-5}$ | $< 5 \cdot 10^{-5}$ | $< 5 \cdot 10^{-5}$ | $< 5 \cdot 10^{-5}$ |
| $(^{237}\text{U} + ^{237}\text{Np}) / ^{235}\text{U}$ | $< 3 \cdot 10^{-6}$ | $< 3 \cdot 10^{-6}$ | $< 3 \cdot 10^{-6}$ | $< 3 \cdot 10^{-6}$ | $< 3 \cdot 10^{-6}$ |

чином враховувалось при порівнянні з результатами тестових вимірювань. У табл. 2 також наведено сертифіковані рівні відносного масового вмісту мікродомішок інших ізотопів урану в еталонах, що можуть впливати на точність γ -спектрометричного аналізу.

У вимірах, результати яких представлено в п. 3.2.2, в якості матеріалу, який досліджувався, було використано таблетку UO_2 ядерного палива реактора ВВЕР-1000 із збагаченням близько 4.4 % мас. за ^{235}U , масою 4.63 г, розмірами $\varnothing 7.55 \times 11.2$ мм та діаметром внутрішнього отвору 2.4 мм.

3.1. Дослідження статистичних характеристик методики

Задача полягала у вивченні форми і параметрів статистичного розподілу результатів вимірювання ізотопного складу зразків урану різного рівня збагачення та для різних часів вимірювання спектра. Для цього з кожним із п'яти еталонів проведено по дві серії випробувань, кожна з яких складалась з 200 окремих вимірів ізотопного складу того ж самого еталона, проведених в умовах гарної геометрії. Різниця між серіями полягала у часі накопичення спектрів, який складав $\tau = 100$ с і $\tau = 1000$ с в першій і другій серіях відповідно.

Оскільки сумарний вміст ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U нормований на 100 %, то тільки два з них мають бути дійсно незалежними випадковими величинами. При цьому, виходячи з методики аналізу, слід очікувати, що одною з таких величин буде вміст ^{234}U . Проведений кореляційний аналіз даних підтвердив це припущення, а також вказав на наявність жорсткої від'ємної кореляції ($r \approx -1$) між виміряними значеннями вмісту ^{235}U і ^{238}U , що демонструється на рис. 2. Отже, при статистичному аналізі можна обмежитись розглядом властивостей одної з цих випадкових величин (далі - вміст ^{235}U), а також величини вмісту ^{234}U .

При аналізі форми розподілу результатів вимірювання розраховувались вибірккові оцінки для моментів отриманих розподілів, а також проводився аналіз нормальності вимірюваних величин з використанням критерію χ^2 . У табл. 3 наведено отримані вибірккові оцінки для коефіцієнтів асиметрії s та ексцесу γ_2 , а також вказано досягнуті значення χ^2 при апроксимації вимірянних розподілів функцією Гауса та відповідні їм рівні значущості p . У таблиці вказано також оптимальну кількість інтервалів n групування вихідних даних, при якій досягалося найкраще узгодження. На рис. 3 показано деякі з отриманих статистичних розподілів, а також результати їх апроксимації функцією Гауса.

З представлених результатів видно, що для обох часів вимірювання більшість з отриманих вибірккових розподілів є симетрична, характеризується близьким до нуля коефіцієнтом ексцесу і гарно описується функцією нормального розподілу. Значуще відхилення форми розподілів від гаусової спостерігається тільки для випадків вимірювання вмісту ^{234}U з еталонами природного і збідненого урану протягом короткого проміжку часу. Сюди також можна віднести випадок вимірювання вмісту ^{234}U з еталонном збідненого урану протягом $\tau = 1000$ с, де також спостерігається помітна асиметрія розподілу, хоча відхилення його форми від гаусової не є таким істотним. Треба зазначити, що вказані випадки стосуються вимірювань з поганою статистикою, тобто за умов, коли ширина розподілу (тобто похибка вимірювання) стає порівняною або більшою за величину вмісту, яка

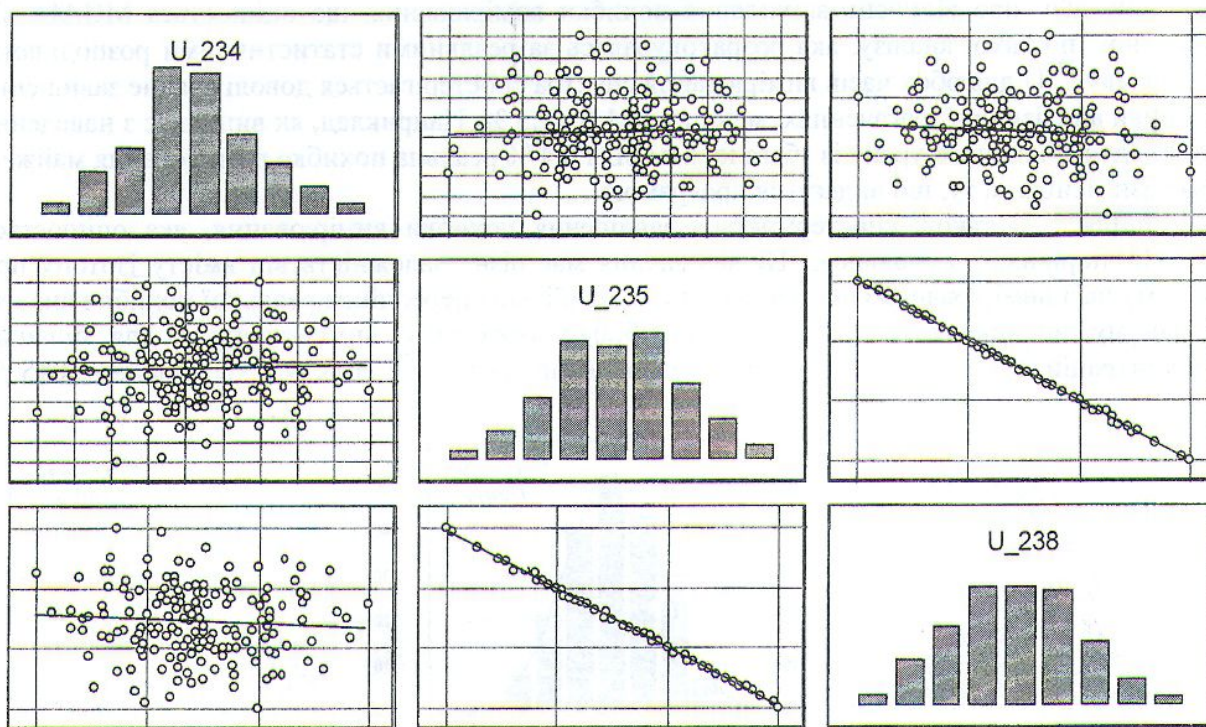


Рис. 2. Приклад кореляційного аналізу результатів вимірювання ізотопного складу урану з використанням методики багатогрупового аналізу (еталон 446, $t = 100$ с).

вимірюється. Саме внаслідок цього розподіли стають помітно асиметричними, а їх форма суттєво відрізняється від гаусової, що добре видно з рис. 3, з, д. Очевидно, що те ж саме буде спостерігатись у випадку ^{235}U , наприклад при меншому часі вимірювання спектра, меншому рівні збагачення зразків або при вимірюванні в умовах їх сильного екранування.

Отримані статистичні розподіли дозволяють також провести порівняння вибіркового стандартного відхилення з похибкою вимірювання, яка оцінюється програмою MGAU при обробці одиночного спектра. Результати такого порівняння представлено на рис. 4, де

Таблиця 3. Характеристики форми статистичних розподілів результатів вимірювання

| Еталон | Параметр | ^{234}U | | ^{235}U | |
|--------|------------------------|----------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| | | $\tau = 100$ с | $\tau = 1000$ с | $\tau = 100$ с | $\tau = 1000$ с |
| 031 | $s \pm 1\sigma$ | 1.087 ± 0.172 | 0.778 ± 0.172 | -0.281 ± 0.172 | 0.012 ± 0.172 |
| | $\gamma_2 \pm 1\sigma$ | 0.62 ± 0.34 | 0.13 ± 0.34 | -0.014 ± 0.342 | 0.08 ± 0.34 |
| | $n/\chi^2/p$ | $11/40.54/3 \cdot 10^{-5}$ | $9/9.83/0.132$ | $7/2.40/0.663$ | $7/0.181/0.996$ |
| 071 | $s \pm 1\sigma$ | 0.97 ± 0.17 | 0.014 ± 0.172 | 0.065 ± 0.172 | 0.034 ± 0.172 |
| | $\gamma_2 \pm 1\sigma$ | 0.39 ± 0.34 | -0.60 ± 0.34 | -0.022 ± 0.342 | 0.64 ± 0.34 |
| | $n/\chi^2/p$ | $9/17.95/0.0064$ | $9/1.44/0.963$ | $11/2.24/0.973$ | $11/1.92/0.983$ |
| 194 | $s \pm 1\sigma$ | -0.04 ± 0.17 | 0.152 ± 0.172 | -0.27 ± 0.17 | 0.051 ± 0.172 |
| | $\gamma_2 \pm 1\sigma$ | -0.29 ± 0.34 | -0.24 ± 0.34 | 0.022 ± 0.342 | -0.27 ± 0.34 |
| | $n/\chi^2/p$ | $11/9.75/0.283$ | $11/1.14/0.997$ | $7/3.28/0.513$ | $7/0.386/0.984$ |
| 295 | $s \pm 1\sigma$ | -0.23 ± 0.17 | -0.020 ± 0.172 | -0.21 ± 0.17 | 0.096 ± 0.172 |
| | $\gamma_2 \pm 1\sigma$ | -0.14 ± 0.34 | 0.77 ± 0.34 | 0.43 ± 0.34 | -0.05 ± 0.34 |
| | $n/\chi^2/p$ | $11/6.58/0.583$ | $7/1.81/0.771$ | $11/1.48/0.993$ | $9/0.784/0.992$ |
| 446 | $s \pm 1\sigma$ | 0.26 ± 0.17 | 0.036 ± 0.172 | 0.019 ± 0.172 | -0.085 ± 0.172 |
| | $\gamma_2 \pm 1\sigma$ | 0.09 ± 0.34 | 0.43 ± 0.34 | -0.23 ± 0.34 | 0.08 ± 0.34 |
| | $n/\chi^2/p$ | $7/5.41/0.248$ | $11/12.5/0.132$ | $9/0.584/0.997$ | $11/2.03/0.980$ |

наведено дані про відносне відхилення похибки вимірювання, що оцінюється МGAU, від "істинної" похибки аналізу, яка розраховувалась за реальними статистичними розподілами. У випадку ^{235}U для обох часів вимірювання спектра спостерігається доволі значне завищення похибки аналізу при збагаченнях, менших за 1.0 - 1.5 %. Наприклад, як впливає з наведених даних, для збідненого урану із збагаченням біля 0.4 % реальна похибка вимірювання майже у два рази менша за ту, що видається програмою.

Для ^{234}U також спостерігається завищення похибки вимірювання, яка оцінюється МGAU, порівняно з реальною. Це завищення має різну залежність від вмісту ізоотопу при різному часі вимірювання спектра. Як видно, найбільша переоцінка реальної похибки аналізу в даному випадку спостерігається при більш тривалому вимірюванні і для більших концентрацій ^{234}U . При малому часі вимірювання спектра і вмісту ^{234}U більше 0.015 %

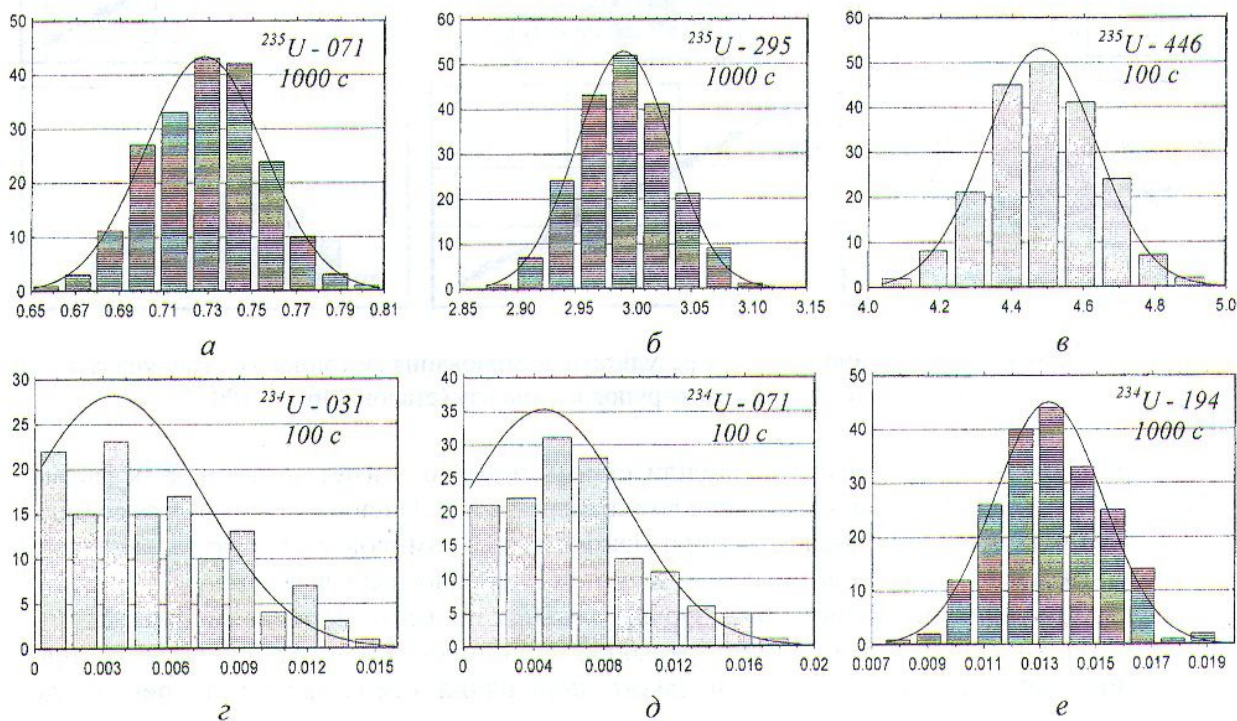


Рис. 3. Приклади статистичних розподілів результатів визначення вмісту ^{234}U і ^{235}U в еталонах різного рівня збагачення та для різних часів вимірювання спектра.

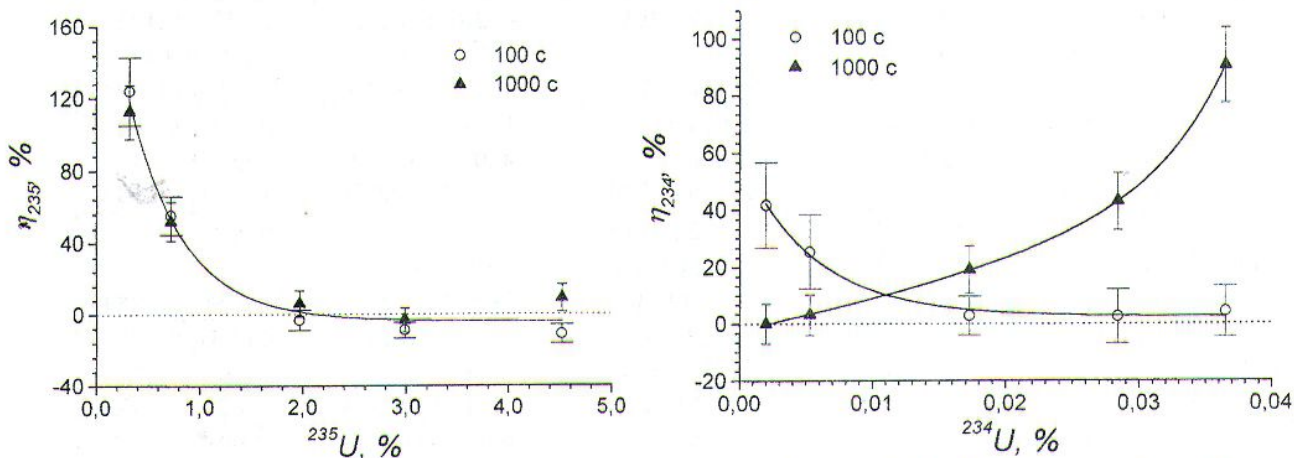


Рис. 4. Відносне відхилення похибки вимірювання, що оцінюється МGAU, від реальної похибки визначення вмісту ^{234}U і ^{235}U залежно від рівня збагачення урану та часу вимірювання спектра.

оцінена похибка аналізу добре узгоджується з вибірковою, а завищення похибки для менших концентрацій ізотопу в даному випадку пов'язане із суттєвим відхиленням форми розподілу результатів аналізу від гаусової.

3.2. Дослідження систематичних похибок методики аналізу

3.2.1. Вивчення систематичної похибки аналізу за допомогою еталонів збагачення

Серії вимірювань з еталонами збагачення, результати яких розглядалися у попередньому пункті при аналізі статистичних властивостей методики, дозволяють також провести тестування методики на наявність систематичних відхилень результатів вимірювання. Для цього можна порівняти середні вибіркові значення вмісту ^{234}U і ^{235}U , розрахованих за вибіркою з 200 вимірювань, з сертифікованими рівнями концентрації цих ізотопів в еталонах (див. табл. 1). При цьому, оскільки ізотопний склад еталонів нормований з урахуванням скінченного вмісту ^{236}U , то для коректного порівняння з результатами MGAU сертифіковані рівні мають бути належним чином перенормовані.

Відносну різницю $\varepsilon_{234,235}$ вибірових і сертифікованих рівнів концентрації ^{234}U і ^{235}U , оцінену за обома серіями вимірювань з $\tau = 100$ і 1000 с, представлено на рис.5, а, б. Наведені

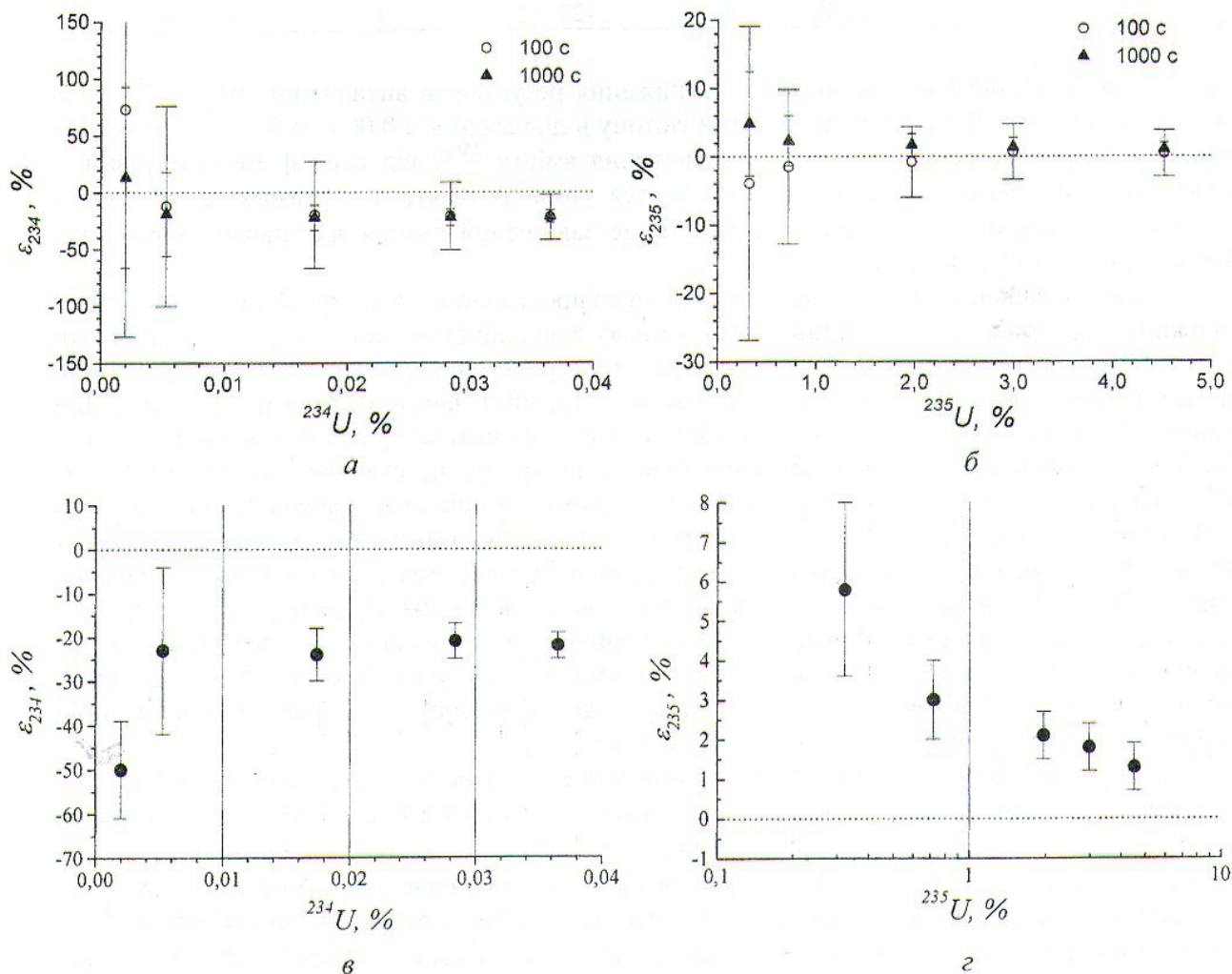


Рис. 5. Відносна систематична похибка визначення вмісту ^{234}U (а, в) і ^{235}U (б, г) залежно від рівня збагачення досліджуваного зразка.

Таблиця 4. Вміст ізотопів урану χ , а також абсолютна Δ і відносна ϵ систематичні похибки аналізу, оцінені в серії довготривалих вимірювань з еталонами різного рівня збагачення

| Еталон | τ , хв | Величина | ^{234}U | ^{235}U |
|--------|-------------|-------------------|----------------------|-------------------|
| 031 | 1073 | χ , % мас. | 0.0010 ± 0.0002 | 0.335 ± 0.007 |
| | | Δ , % мас. | -0.0010 ± 0.0002 | 0.018 ± 0.007 |
| | | ϵ , % | -50 ± 11 | 5.8 ± 2.2 |
| 071 | 931 | χ , % мас. | 0.004 ± 0.001 | 0.733 ± 0.007 |
| | | Δ , % мас. | 0.0012 ± 0.0010 | 0.022 ± 0.007 |
| | | ϵ , % | -23 ± 19 | 3.0 ± 1.0 |
| 194 | 905 | χ , % мас. | 0.013 ± 0.001 | 1.983 ± 0.012 |
| | | Δ , % мас. | 0.0041 ± 0.0010 | 0.041 ± 0.012 |
| | | ϵ , % | -24 ± 6 | 2.1 ± 0.6 |
| 295 | 958 | χ , % мас. | 0.022 ± 0.001 | 3.002 ± 0.018 |
| | | Δ , % мас. | -0.0048 ± 0.0011 | 0.053 ± 0.018 |
| | | ϵ , % | -21 ± 4 | 1.8 ± 0.6 |
| 446 | 924 | χ , % мас. | 0.028 ± 0.001 | 4.521 ± 0.026 |
| | | Δ , % мас. | -0.0079 ± 0.0011 | 0.058 ± 0.026 |
| | | ϵ , % | -22 ± 3 | 1.3 ± 0.6 |

дані вказують на помітне систематичне заниження результатів визначення вмісту ^{234}U , що складає приблизно 22 % для концентрацій ізотопу в діапазоні від 0.005 до 0.036 %. У той же час подібного відхилення результатів визначення вмісту ^{235}U від сертифікованих рівнів у межах похибки вимірювань не спостерігається, хоча результати, отримані за вибіркою з $\tau = 1000$ с, вказують на можливе систематичне завищення вимірних значень збагачення порівняно з сертифікованими.

Для покращення точності дослідження було проведено по одному додатковому виміру з кожним з еталонів протягом тривалого проміжку часу, що становив 15 - 18 год. Результати цієї додаткової серії наведено у табл. 4, а також на рис.5, 6, 7 у графічному вигляді. Вони якісно і кількісно підтверджують висновок про значиме заниження вимірної величини вмісту ^{234}U , а також підтверджують наявність систематичного зсуву вимірюваного вмісту ^{235}U у бік більших значень із зменшенням рівня збагачення урану, що становить близько 6 % для збідненого і 1 - 2 % для збагаченого урану. При цьому, як впливає з абсолютних відхилень (див. табл. 4), недооцінка вмісту ^{234}U не пояснює переоцінку вмісту ^{235}U , яка спостерігається на досліді. Виходячи з цього, можна стверджувати, що систематичні похибки визначення вмісту ^{234}U і ^{235}U мають різне походження. Зокрема, похибка аналізу вмісту ^{234}U може бути пов'язана з недосконалістю процедури внутрішнього калібрування за ефективністю, що використовується в MGAU, тоді як завищення вмісту ^{235}U може бути пов'язане з деякими неточностями в оцінці внеску різних ізотопів урану в інтенсивність рентгенівських ліній випромінювання в енергетичній області 89 - 100 кеВ.

Зокрема, джерелом цього розходження може бути наявність додаткового внеску в інтенсивність випромінювання $K\alpha$ рентгенівських квантів Th з боку інших ізотопів урану, що входять до складу зразка. Оскільки $K\alpha$ -лінії торію безпосередньо використовується для визначення відносного вмісту ^{235}U , то цей внесок, якщо його належним чином не врахувати, повинен завищувати вимірне значення збагачення, особливо при малих концентраціях ^{235}U , що і спостерігається на досліді. Далі для визначеності будемо говорити про $K\alpha_1$ -лінію рентгенівського випромінювання Th. Тоді відносну похибку аналізу можна подати як суму парціальних внесків в інтенсивність випромінювання цієї лінії:

$$\varepsilon = \sum_i \beta_i \frac{\chi_i}{\chi_{235}}, \quad \text{де } \beta_i = \frac{\eta_i \lambda_i}{\eta_{235} \lambda_{235}},$$

χ_i , η_i та λ_i – відповідно відносний вміст, вихід $K\alpha_1$ -квантів та стала розпаду i -го ізотопу урану, розпад якого супроводжується випромінюванням характеристичних $K\alpha$ -квантів торію.

Безпосереднє випромінювання рентгенівських характеристичних квантів торію можливе лише для α -активних ізотопів урану. Його виникнення пов'язане з утворенням вакансій на глибоких атомних підоболонках продукту α -розпаду, яким є в даному випадку один з ізотопів торію. Основним процесом утворення вакансій є внутрішня конверсія γ -променів, що виникають при електромагнітному розпаді збуджених ядерних станів продукту α -розпаду. У табл. 5 для ряду найбільш важливих ізотопів урану наведено енергії та інтенсивності γ -переходів, які дають основний внесок в утворення вакансій на K -оболонці відповідних ізотопів торію. Також вказано величини коефіцієнтів внутрішньої конверсії (КБК) на K -оболонці для цих переходів, експериментальних або розрахованих за допомогою програми ХІСС 2.0 [12] з використанням найбільш сучасних даних бібліотеки ENSDF. Крім того, для кожного переходу наведено розраховані за тією ж програмою кількості вакансій на K -оболонці та виходи рентгенівських $K\alpha_1$ -квантів.

У табл. 6 наведено загальне число K -вакансій і повні виходи рентгенівських квантів з урахуванням внеску від усіх γ -переходів, а також розраховані з використанням цих даних коефіцієнти β_i . Також для кожного ізотопу наведено оцінку відносного вмісту, при якому систематична похибка вимірювання збагачення ^{235}U через неврахований додатковий внесок в інтенсивність $K\alpha$ -ліній торію становитиме 1 %. З цих даних видно, що методика вимірювання є досить чутливою до ізотопного складу зразків урану як на макро- так і мікрокомпонентному рівнях. Зокрема, внесок ^{238}U , що зростає при зменшенні рівня збагачення, досягає 1 % для збідненого урану із збагаченням близько 0.3 %. Внесок ^{234}U вже для природного урану ($\chi_{234}/\chi_{235} \approx 0.0076$) становить близько 1.5 %, а при підвищенні рівня збагачення ще збільшуватиметься разом із зростанням відношення χ_{234}/χ_{235} , яке для палива із

Таблиця 5. Характеристики γ -переходів, які дають основний внесок у вихід рентгенівського $K\alpha$ -випромінювання торію при розпаді α -активних ізотопів урану

| α -розпад | E_γ , keV | γ -квантів на 10^4 розпадів | КБК на K -оболонці | K -вакансій на 10^4 розпадів | $K\alpha_1$ -квантів на 10^4 розпадів |
|--|------------------|--------------------------------------|----------------------|----------------------------------|---|
| $^{232}\text{U} \rightarrow ^{228}\text{Th}$ | 129.08 | 6.85 (4) | 0.269 (7) | 1.84 (5) | 0.852 (28) |
| $^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$ | 118.97 | 0.406 (4) | 0.256 (6) | 0.1038 (24) | 0.0481 (15) |
| | 146.34 | 0.657 (6) | 0.154 (4) | 0.1012 (28) | 0.0469 (16) |
| | 245.34 | 0.362 (3) | 1.25 (3) | 0.453 (11) | 0.210 (7) |
| | 248.73 | 0.143 (21) | 1.20 (3) | 0.172 (25) | 0.080 (12) |
| | 278.11 | 0.108 (17) | 0.879 (22) | 0.095 (15) | 0.044 (7) |
| | 291.35 | 0.537 (5) | 0.773 (19) | 0.415 (11) | 0.192 (6) |
| | 317.16 | 0.776 (7) | 0.613 (15) | 0.476 (12) | 0.220 (7) |
| | 320.54 | 0.290 (3) | 0.595 (15) | 0.173 (5) | 0.080 (28) |
| $^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th}$ | 120.90 | 3.42 (5) | 0.261 (7) | 0.893 (13) | 0.413 (10) |
| $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$ | 143.76 | 1096 (8) | 0.163 (4) | 179 (5) | 82.9 (28) |
| | 150.93 | 7.6 (10) | 4.87 (12) | 37 (5) | 17.1 (23) |
| | 163.36 | 508 (4) | 0.121 (3) | 61.5 (16) | 28.5 (9) |
| | 182.52 | 34 (2) | 2.84 (7) | 97 (6) | 44.9 (29) |
| | 185.71 | 5720 (50) | 0.0895 (22) | 512 (13) | 237 (7) |
| | 202.11 | 108 (2) | 2.14 (5) | 231 (7) | 107 (4) |
| | 205.31 | 501 (5) | 0.0708 (18) | 35.5 (10) | 16.4 (6) |
| $^{236}\text{U} \rightarrow ^{232}\text{Th}$ | 112.75 | 1.90 (20) | 0.233 (6) | 0.44 (5) | 0.204 (22) |
| $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th}$ | 113.50 | 1.02 (15) | 0.236 (6) | 0.24 (4) | 0.111 (16) |

Таблиця 6. Загальне число вакансій на К-оболонці та повні виходи рентгенівських К α -квантів торію при розпаді α -активних ізотопів урану. Розраховані величини коефіцієнтів β_i та відносний вміст ізотопів, що дає 1 %-ну систематичну похибку вимірювання збагачення

| α -розпад | $T_{1/2}$, років | К-вакансій на 10^4 розпадів | К α_1 -квантів на 10^4 розпадів | β | $(\chi_i/\chi_{235})_{1\%}$ |
|--|--------------------|-------------------------------|--|-------------------------|-----------------------------|
| $^{232}\text{U} \rightarrow ^{228}\text{Th}$ | 68.9 | 1.86 (5) | 0.861 (28) | $1.52 (6) \cdot 10^4$ | $6.6 \cdot 10^{-7}$ |
| $^{233}\text{U} \rightarrow ^{229}\text{Th}$ | $1.592 \cdot 10^5$ | 2.75 (4) | 1.27 (3) | 9.9 (3) | 0.0010 |
| $^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th}$ | $2.455 \cdot 10^5$ | 0.895 (13) | 0.414 (10) | 2.09 (7) | 0.0048 |
| $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Th}$ | $7.038 \cdot 10^8$ | 1233 (10) | 567 (12) | – | – |
| $^{236}\text{U} \rightarrow ^{232}\text{Th}$ | $2.342 \cdot 10^7$ | 0.44 (5) | 0.204 (22) | 0.0108 (11) | 0.93 |
| $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th}$ | $4.468 \cdot 10^9$ | 0.24 (4) | 0.111 (16) | $3.1 (4) \cdot 10^{-5}$ | 323 |

Таблиця 7. Оцінки відносної систематичної похибки ϵ (%) вимірювання вмісту ^{235}U у разі нехтування внеском у інтенсивність К α -квантів торію з боку інших α -активних ізотопів урану, що входять до складу еталонів NBS-116 SRM 969

| Ізотоп | Еталон | | | | |
|------------------|---------------------|-----------------------|------------------------|--------------------------|--------------------------|
| | 031 | 071 | 194 | 295 | 446 |
| ^{232}U | $1.2 \cdot 10^{-3}$ | $< 4.6 \cdot 10^{-5}$ | $4.6 \cdot 10^{-5}$ | $1.5 \cdot 10^{-5}$ | $1.5 \cdot 10^{-4}$ |
| ^{233}U | < 0.05 | < 0.05 | < 0.05 | < 0.05 | < 0.05 |
| ^{234}U | 1.32 (14) | 1.53 (8) | 1.84 (7) | 1.98 (7) | 1.68 (6) |
| ^{236}U | 0.050 (5) | $< 3.0 \cdot 10^{-5}$ | $1.7(6) \cdot 10^{-4}$ | $1.21(14) \cdot 10^{-3}$ | $1.65(17) \cdot 10^{-3}$ |
| ^{238}U | 0.98 (13) | 0.43 (6) | 0.151 (20) | 0.102 (13) | 0.066 (9) |
| Всього | 2.35 (19) | 1.96 (10) | 1.99 (7) | 2.08 (7) | 1.75 (6) |

збагаченням 80 – 90 % може досягати значень 0.010 - 0.012 [13]. Внесок з боку ^{236}U буде помітним при концентраціях ізотопу, порівняних з концентрацією ^{235}U , що може мати місце для палива, виготовленого з додаванням регенерованого урану [14]. Спостерігається велика чутливість до наявності мікродомішок ^{232}U , який також завжди присутній у регенерованому урані.

У табл. 7 наведено оцінки внеску окремих ізотопів урану у систематичну похибку вимірювання, які розраховано з використанням даних про ізотопний склад еталонів збагачення (див. табл. 1 і 2) та отриманих величин коефіцієнтів β_i . Основний внесок у похибку вимірювання в даному випадку дають ^{234}U і ^{238}U . Порівняння сумарних величин похибки з результатами вимірювань (див. табл. 4), показує, що для еталонів 194, 295 і 446 проведені оцінки внеску інших ізотопів урану в інтенсивність К α -випромінювання торію повністю пояснюють розбіжність між виміряними і сертифікованими рівнями збагачення. Для еталона 071 ця розбіжність пояснюється на 60 - 70 %, а для еталона 031 - менш, ніж на половину.

Отже, врахування внесків всіх ізотопів урану в інтенсивність рентгенівського К α -випромінювання торію дозволяє пояснити виявлене систематичне завищення вимірюного вмісту ^{235}U для зразків збагаченого урану. Випадок природного і збідненого урану потребує подальшого аналізу із залученням якомога точних експериментальних даних про виходи рентгенівського випромінювання, а також детального опису фізичних наближень, використаних в MGAU.

3.2.2. Вивчення залежності результатів вимірювання від відстані між зразком і детектором

Для дослідження можливої залежності результатів аналізу ізотопного складу зразків урану від відстані між зразком і детектором було проведено дві серії вимірювань збагачення паливної таблетки реактора ВВЕР на відстані 20 мм і впритул до детектора. Кожна серія

Таблиця 8. Результати статистичної обробки серій вимірювань збагачення паливної таблетки на різних відстанях від детектора

| Вміст ізотопу, % мас. | ^{234}U | | ^{235}U | |
|--------------------------|---------------------|---------------------|-------------------|-------------------|
| | 20 мм | впритул | 20 мм | впритул |
| Середній $\pm 1\sigma$ | 0.0312 ± 0.0006 | 0.0314 ± 0.0010 | 4.441 ± 0.020 | 4.362 ± 0.017 |
| Мінімальний | 0.030 | 0.030 | 4.410 | 4.324 |
| Максимальний | 0.032 | 0.033 | 4.471 | 4.384 |

складалась з 10 окремих вимірювань, причому час вимірювання спектрів, 30000 с для першої і 10000 с для другої серії, підбирався таким чином, щоб статистична похибка була приблизно однаковою в обох вибірках. Результати статистичної обробки отриманих результатів представлено в табл. 8 та на рис. 6.

Усереднені за результатами обох серій значення вмісту ^{234}U добре узгоджуються один з одним у межах досягнутої точності вимірювань. Відповідні усереднені значення вмісту ^{235}U , визначені в обох серіях, статистично значимо відрізняються, причому рівень збагачення, виміряний при розташуванні таблетки впритул до детектора, виявляється меншим, ніж при вимірюванні у далекій геометрії.

Така залежність результатів вимірювання від відстані між зразком і детектором є досить типовою для вимірювань із джерелами, що випромінюють каскадне випромінювання. У цьому випадку при вимірах у близькій геометрії суттєву роль може відігравати ефект істинного сумування імпульсів детектора при реєстрації корельованих у часі γ - та рентгенівських квантів. Аналіз схем розпаду ^{235}U і ^{234}Th дозволяє стверджувати, що подібна ситуація може мати місце і в даному випадку.

Дійсно, рентгенівські $K\alpha$ -кванти торію з α -розпаду ^{235}U випромінюються сукупністю сильноконвертованих γ -переходів ^{231}Th . У табл. 5 було зазначено кілька з таких переходів, які, з одного боку, дають найбільш інтенсивні лінії в спектрі γ -випромінювання, а з іншого - більш ніж на 90 % вичерпують інтенсивність рентгенівських $K\alpha$ -ліній. Крім того, як впливає зі схеми розпаду ^{235}U , представленої на рис. 7, а, всі ці переходи входять до складу

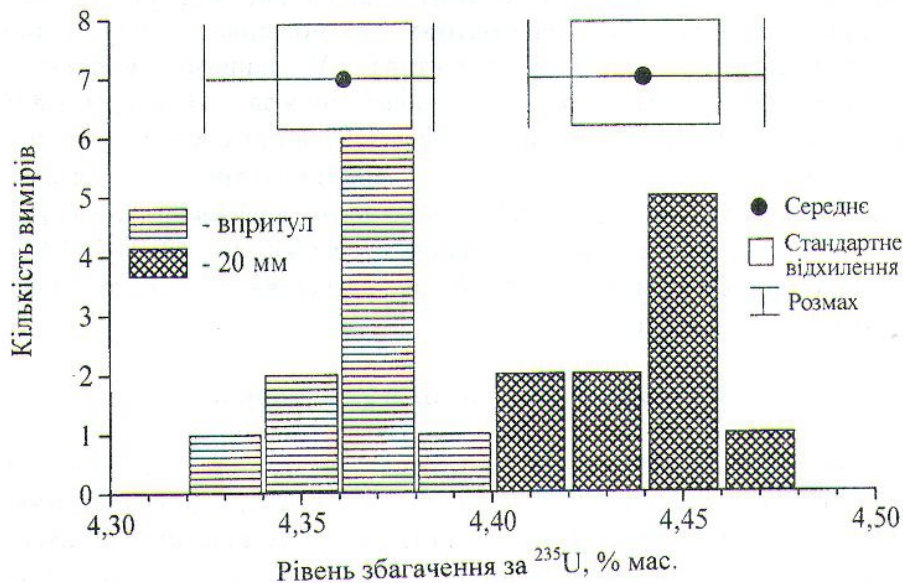


Рис. 6. Розподіли результатів вимірювання рівня збагачення паливної таблетки на різних відстанях від детектора.

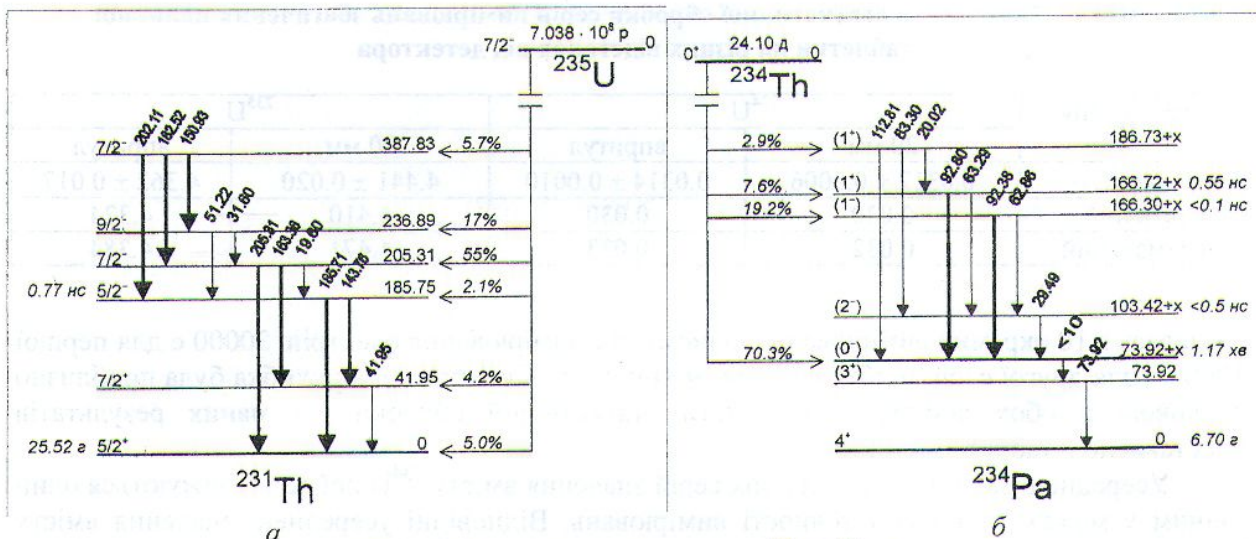


Рис. 7. Фрагменти схем розпаду ^{235}U і ^{234}Th .

каскадів, так що при внутрішній конверсії в одному з них випромінювання рентгенівських квантів буде збігатись у часі з випромінюванням одного або кількох γ -квантів у переходах, що входять до складу відповідного каскаду. Слід зауважити, що для детекторів із тонким вхідним вікном, крім $K\alpha$ - γ -збігів, у зменшення швидкості лічби імпульсів у піку 93.35 keV також можуть давати внесок збіги $K\alpha$ -квантів із рентгенівськими квантами L-серії, що також випромінюються при заповненні вакансії на K-оболонці.

Як впливає зі схеми розпаду, представленої на рис. 7, б, інтенсивність дублета, що відповідає лініям 92.8 і 92.38 keV ^{234}Th , практично не зазнаватиме змін внаслідок ефекту істинного сумування завдяки довгому часу життя ізомерного стану 73.92 keV , а також малим енергіям та інтенсивностям інших γ -переходів. Отже, при зменшенні відстані між зразком і детектором відношення інтенсивностей $K\alpha$ -ліній торію і дублета 92.8 і 92.38 keV ^{234}Th у спектрі випромінювання має зменшуватись. Відповідно зменшуватиметься і виміряна величина збагачення урану за ^{235}U , що і спостерігається на досліді. Величина цього зсуву крім відстані між детектором і зразком залежить також від розмірів чутливого об'єму детектора, наявності чи відсутності коліматора та можливо інших конструкційних особливостей досліджуваного зразка і детектора. У нашому випадку відносний систематичний зсув результату вимірювання рівня збагачення за ^{235}U складає 1.8% .

У випадку ^{234}U також можливий вплив ефекту істинного сумування на швидкість лічби в піку 120.9 keV за рахунок сумування γ - і $LX(\text{Th})$ -квантів. Це пов'язано з тим, що найбільш інтенсивний перехід, 53.2 keV , який має давати переважний внесок у збіги з γ -квантами 120.9 keV , є низькоенергетичним і сильноконвертованим ($KVK = 233(9)$). У нашому випадку ці збіги дуже послаблені через суттєвий спад ефективності реєстрації спектрометра в області рентгенівських ліній L-серії.

4. Обговорення результатів та висновки

Підсумовуючи результати досліджень, можна сказати, що застосування методики багатогрупового аналізу, реалізованої у вигляді коду MGAU V.1.0, до визначення ізотопного складу зразків урану з точністю на рівні $1 - 2\%$ і краще, крім відомих обмежень, потребує врахування ряду факторів, пов'язаних із характеристиками зразка та геометрією вимірювань, що можуть призводити до помітної систематичної похибки результатів аналізу.

Зокрема, методика виявляє чутливість до ізотопного складу зразків урану, що позначається у систематичному завищенні вимірних значень рівня збагачення за ^{235}U , яке

складає від 2 до 6 % для урану із збагаченням від 4.4 до 0.31 %. Оцінки показують, що ця систематична похибка може бути практично повністю пояснена внеском ^{234}U і ^{238}U в інтенсивність $\text{K}\alpha(\text{Th})$ із розпаду ^{235}U . Врахування систематичного відхилення результатів вимірювання, пов'язаного з наявністю цих ізотопів, не повинно викликати труднощів, оскільки вміст ^{234}U і ^{238}U визначається при виконанні стандартних процедур MGAU. Для подальшого тестування методики бажано провести серію вимірів з еталонами збагачення до 90 - 95 % за ^{235}U , де прогнозується збільшення внеску в систематичну похибку вимірювання з боку ^{234}U .

Проведений аналіз вказує на можливість існування значної залежності результатів вимірювання рівня збагачення від наявності в досліджуваному зразку макрокількості ^{236}U та мікродомішок ^{232}U , що може бути суттєвим при аналізі регенованого урану або палива, виготовленого з його додаванням. Помітна систематична похибка вимірювання прогнозується також при наявності в зразку ^{233}U при концентраціях, починаючи з 10^{-3} по відношенню до ^{235}U . Врахування впливу цих ізотопів вимагає більш суттєвої модифікації коду MGAU, що дозволяла б визначати вміст ^{232}U , ^{233}U і ^{236}U при обробці того ж самого спектра. У табл. 9 наведено отримані при обробці спектрів випромінювання еталонів збагачення оцінки нижніх границь визначення вмісту цих ізотопів за лініями 129.08 кеВ (^{232}U), 118.97 кеВ (^{233}U) і 112.75 кеВ (^{236}U), які знаходяться близько до робочої області спектра MGAU. Оцінки показують, що аналіз за вказаними лініями може забезпечити рівень чутливості методики, необхідний для врахування можливого внеску цих ізотопів у систематичну похибку вимірювання. Зазначимо, що лінія 112.75 кеВ ^{236}U інтерферує з дуже інтенсивними лініями $\text{K}\beta$ -серії, що може дещо погіршити розраховані границі визначення для даного ізотопу за рахунок похибки, пов'язаної з розкладанням мультиплету.

Виявлений систематичний зсув вимірюваного вмісту ^{234}U є доволі великим і, скоріше за все, пов'язаний з проблемами внутрішнього калібрування за ефективністю реєстрації. Для вмісту ізотопу в діапазоні від 0.005 до 0.036 % він складає -23 %, і може бути ще більшим для менших концентрацій ^{234}U . Для тестування процедур внутрішнього калібрування бажано провести серію тестових вимірів з еталонами збагачення в умовах сильного екранування, а також для різних товщин і густини сертифікованих зразків урану.

Виявлено систематичне заниження вимірюваної величини збагачення при вимірах у близькій геометрії. Це може пояснюватись впливом ефекту істинного сумування імпульсів детектора при реєстрації рентгенівських і γ -квантів, що випромінюються в каскадах сильноконвертованих переходів ^{231}Th із розпаду ^{235}U . Відносна систематична похибка за рахунок цього ефекту становить 1.8 %. Для детекторів рентгенівського випромінювання з тонким вхідним вікном вона може бути більшою за рахунок сумування $\text{K}\alpha$ -квантів і рентгенівського випромінювання L-серії. Очевидно, що наявність даного ефекту ставить певні обмеження на мінімальну відстань між зразком і детектором, що в багатьох випадках не важко задольнити.

Дослідження статистичних характеристик методики виявило недоліки в оцінці похибок вимірювання. Так, у випадку ^{235}U спостерігається доволі значне завищення реальної похибки

Таблиця 9. Границі визначення відносного вмісту ізотопів ^{232}U , ^{233}U і ^{236}U , оцінені за спектрами еталонів NBS-116 SRM 969

| Границя | Еталон | | | | |
|--|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|---------------------|
| | 031 | 071 | 194 | 295 | 446 |
| $(\chi_{232}/\chi_{235})_{\text{мін}}$ | $3.1 \cdot 10^{-7}$ | $1.3 \cdot 10^{-7}$ | $4.9 \cdot 10^{-8}$ | $3.3 \cdot 10^{-8}$ | $2.3 \cdot 10^{-8}$ |
| $(\chi_{233}/\chi_{235})_{\text{мін}}$ | $1.2 \cdot 10^{-3}$ | $4.9 \cdot 10^{-4}$ | $1.9 \cdot 10^{-4}$ | $1.3 \cdot 10^{-4}$ | $8.7 \cdot 10^{-5}$ |
| $(\chi_{236}/\chi_{235})_{\text{мін}}$ | 0.76 | 0.30 | 0.12 | 0.08 | 0.055 |

при збагаченнях, менших за 1.0 - 1.5 %. Для ^{234}U також спостерігається завищення реальної похибки вимірювання, яке є найбільшим для більш тривалих вимірювань і більших концентрацій даного ізотопу. Для корекції цих недоліків необхідний детальний аналіз процедур, що використовуються в MGAU для розрахунку похибок вимірювання.

Автори висловлюють подяку співробітникам Головної екологічної інспекції України М.Д. Корнієнко і В.С. Булкіну за надання можливості проведення досліджень із використанням спеціалізованого спектрометричного комплексу "U-Pu Inspector", який було отримано в рамках допомоги ПРООН урядові України. Автори також вдячні Г. Оттмару і С. Абузалу з Європейського інституту трансуранових елементів (Карлсруе, Німеччина) за участь в обговоренні окремих результатів цього дослідження, а також особливостей і характеристик коду MGAU.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Reilly T.D., Walton R.B., Parker J.L.* A-1 Progress Report LA-4605-MS, Los-Alamos National Laboratory, 1970, p.19.
2. *Matussek P.* Accurate Determination of the ^{235}U Isotope Abundance by Gamma Spectrometry. Karlsruhe, Institut fur Kernphysik, KfK 3752, Mai 1985.
3. *Gunnink R., Arlt R.* New Ge and NaI Analysis Methods for Measuring ^{235}U Enrichments // Proceedings of 19th ESARDA Annual Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management, Montpellier, France May 13 - 15, 1997, p. 431 - 435.
4. *Harry R.J.S., Aaldijk J.K., Braak J.P.* Gamma-Spectroscopic Determination of Isotopic Composition Without Use of Standards // Proceedings of IAEA Symposium, "Safeguarding Nuclear Materials", Vienna, October 20 - 24, 1975, Vol. II, 1975, p. 235.
5. *Pietruczewski A., Zarnowiecki K., Smagala G.* Microcomputer controlled system for spectrometric determination of U-enrichment with planar/coaxial detectors using $^{234}\text{Th}/^{235}\text{U}$ and $^{234\text{m}}\text{Pa}/^{235}\text{U}$ photopeak ratios // Nuclear Safeguards Technology 1986, Proceedings of the IAEA Symposium, Vienna, Austria, November 10 - 14, 1986, Vol. II, 1986, p. 421 - 425.
6. *Gunnink R.* MGA: A Gamma-Ray Analysis Code for Determining Plutonium Isotopic Abundances // LLNL report: UCRL-LR-103220, April 1990.
7. *Gunnink R.* Introduction to and present status of MGA // Proceedings of International MGA User's Workshop, Geel, Belgium, October 19 - 20, 1994, p. 18 - 36.
8. *Gunnink R., Ruhter W., Miller P. et al.* MGAU: A New Analysis Code for Measuring U-235 Enrichments in Arbitrary Samples // IAEA Symposium on International Safeguards, Vienna, Austria, March 8 - 14, 1994.
9. *Gunnink R.* MGAU: A Brief Review of the Method and some Results // Proceedings of International MGA User's Workshop, Geel, Belgium, October 19 - 20, 1994, p. 179 - 186.
10. *Abousahl S., Michiels A., Bickel M. et al.* Applicability and Limits of the MGAU code for the determination of the enrichment of uranium samples // Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A. - 1996. - Vol. 368. P. 443 - 448.
11. *Verplancke J., Van Dyck P., Tench O.* The U-Pu InSpector System // Proceedings of International MGA User's Workshop, Geel, Belgium, October 19 - 20, 1994, p. 187 - 192.
12. *Firestone R.B.* XICC Version 2.0. Lawrence Berkeley National Laboratory, USA.
13. *Петров Ю.В., Дербин А.В., Егоров А.И. и др.* ^{234}U в высокообогащенном топливе // АЭ. - 1997. - Т.83, вып. 4. - С. 243 - 246.
14. *Синев Н.М., Батуров Б.Б.* Экономика атомной энергетики. - М.: Энергоатомиздат, 1984. - 392 с.

ИССЛЕДОВАНИЕ ФАКТОРОВ, ВЛИЯЮЩИХ НА ТОЧНОСТЬ ОПРЕДЕЛЕНИЯ УРОВНЯ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА МЕТОДОМ МНОГОГРУППОВОГО АНАЛИЗА (MGAU)

А.Н. Берлизов, В.В. Тришин

С использованием эталонов обогащения исследованы статистические характеристики методики многогруппового анализа определения изотопного состава образцов урана, реализованной в виде портативного спектрометрического комплекса "U-Pu InSpector" и программного обеспечения

MGAU V.1.0, в діапазоні концентрацій 0.32 - 4.5 % по ^{235}U і 0.004 - 0.036 % по ^{234}U . Изучено также влияние ряда факторов, которые могут привести к систематическим ошибкам измерений. Полученные данные указывают на наличие зависимости результатов измерения обогащения по ^{235}U от изотопного состава образцов урана, а также геометрии измерения. Обнаружено систематическое занижение измеренного содержания ^{234}U , которое составляет около 23 % в исследованном диапазоне концентраций. Обсуждаются возможные источники выявленных систематических отклонений, а также даются рекомендации по усовершенствованию кода MGAU.

INVESTIGATION OF FACTORS INFLUENCING THE ACCURACY OF URANIUM ENRICHMENT LEVEL DETERMINATION BY MULTI- ANALYSIS METHOD (MGAU)

A.N. Berlizov, V.V. Tryshyn

Statistical characteristics of multi-group analysis technique for isotopic composition determination of uranium samples, realised in the form of portable "U-Pu InSpector" spectrometry system and MGAU V.1.0 code, have been studied with the help of uranium isotopic standard reference materials in the range 0.32 - 4.5 % of ^{235}U and 0.004 - 0.036 % of ^{234}U concentration. The influence of a number of factors that can cause systematic bias of measured values are also studied. Obtained results reveal dependence of measured ^{235}U enrichment level upon isotopic composition of uranium sample and geometry of the measurement. Systematic underestimation of measured ^{234}U content turned out to be of about 23 % in the concentration range. Possible sources of revealed systematic biases are discussed as well as some recommendations for improving of MGAU code are given.