

Павлов Андрей Михайлович

**ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ КОНТРОЛЬ  
ИЗОТОПНОГО СОСТАВА ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО  
ПЛУТОНИЯ В ПРОЦЕССЕ ЕГО ПРОИЗВОДСТВА,  
ХРАНЕНИЯ И ПРИМЕНЕНИЯ В ЯЭУ**

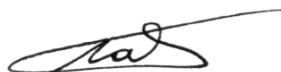
05.14.03 – «Ядерные энергетические установки,  
включая проектирование, эксплуатацию и вывод из эксплуатации»

**АВТОРЕФЕРАТ**

диссертации на соискание ученой степени

кандидата технических наук

Автор:



Москва 2015

Работа выполнена в федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего профессионального образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ»

Научный руководитель: доктор физико-математических наук, профессор  
Бушуев Анатолий Васильевич, НИЯУ МИФИ

Официальные оппоненты: доктор технических наук, профессор,  
Дмитриев Александр Мефодиевич, Частное учреждение  
Госкорпорации «Росатом» «Инновационно-  
технологический центр проекта «ПРОРЫВ»

кандидат технических наук, старший научный сотрудник  
Тимошин Валентин Иванович, ОАО «Высокотехнологический научно-исследовательский институт неорганических материалов им. А.А.Бочвара»

Ведущая организация: ФГУП «Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л.Духова»

Защита диссертации состоится «25» марта 2015 года в 16 часов 30 минут на заседании диссертационного совета Д 212.130.04 НИЯУ МИФИ по адресу: 115409, Москва, Каширское шоссе, д.31

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте НИЯУ МИФИ

Автореферат разослан «    » февраля 2015 года

Просим принять участие в работе совета или прислать отзыв в двух экземплярах, заверенных печатью организации.

Ученый секретарь диссертационного совета,  
д. ф.-м. н., профессор



И.И.Чернов

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

**Актуальность проблемы.** В настоящее время в ядерной энергетике основным видом топлива является диоксид урана. Данные о запасах урана в России и темпах развития уранодобывающей отрасли указывают на отсутствие баланса между планируемым ростом мощностей АЭС и возможностью их топливообеспечения в средне- и долгосрочной перспективе. В процессе выгорания ядерного топлива в нем накапливаются изотопы плутония. В современных реакторах на тепловых нейтронах за счет деления плутония вырабатывается около 30% энергии.

Согласно стратегии развития ядерной энергетики России накопленный плутоний планируется использовать для производства смешанного уран-плутониевого топлива на базе диоксидов (МОХ-топлива) или нитридов. Вовлечение плутония в ядерный топливный цикл позволит снизить потребление обогащенного урана и использовать накопленный обедненный уран, а также решить проблему утилизации нарабатывающегося в энергетических реакторах плутония. В связи с этим в последние годы интенсифицируются НИР и ОКР, связанные со спецификой использования плутония в качестве топлива ядерных реакторов.

Таким образом, вовлечение в топливный цикл плутония, накопленного за время эксплуатации энергетических реакторов, является одной из крупномасштабных и актуальных задач, решение которой обеспечит дальнейшее развитие ядерной энергетики.

С 1977 года в России на ПО «Маяк» (г. Озерск) работает завод РТ-1, перерабатывающий отработавшее топливо ядерных реакторов (ОЯТ). Одним из основных конечных продуктов переработки является диоксид плутония. Из-за отсутствия до 2015 года промышленного завода по производству смешанного уран-плутониевого топлива произведенный на РТ-1 диоксид плутония хранится на специально оборудованном складе, упакованный в контейнеры, каждый из которых вмещает около 3 кг плутония.

В 2014 году состоялся энергетический пуск реактора БН-800 на Белоярской АЭС. В качестве начальной загрузки использована гибридная зона, состоящая из уранового топлива высокого обогащения и 106 ТВС, содержащих смешанное уран-плутониевое топливо. По предварительным оценкам после выхода на полную загрузку смешанным топливом потребление плутония составит 2 т/год. Следовательно, для обеспечения его топливом потребуется ежегодно использовать более 650 контейнеров с диоксидом плутония, произведенным на РТ-1.

Накопленный на РТ-1 плутоний извлечен из топлива разных типов реакторов, с различной глубиной выгорания и временем выдержки. В связи с этим изотопный состав плутония изменяется в широком диапазоне, что в свою очередь усложняет задачу его использования для фабрикации топлива с заданными характеристиками. При комплектовании партии контейнеров для отправки на завод по фабрикации топлива необходимо проводить контрольные измерения изотопного состава плутония в каждом контейнере с требуемой точностью и достаточно высокой производительностью,

что требует разработки методики для обеспечения массовых измерений больших объемов плутония (в том числе негетогенных).

При паспортизации наработанного плутония для определения его изотопного состава на РТ-1 применяется масс-спектрометрия, которая является наиболее распространенным разрушающим методом определения изотопного состава плутония. Данный метод может обеспечить высокую точность результатов, но имеет некоторые серьезные недостатки. К их числу относятся необходимость отбора представительной пробы и ее специальная химическая подготовка (растворение и очистка от интерферирующих примесей). Изотопный состав плутония в анализируемой пробе массой несколько миллиграмм должен соответствовать среднему составу в образце массой несколько килограмм.

Альтернативным методом определения изотопного состава плутония может являться гамма-спектрометрия с детекторами высокого разрешения. Этот метод обладает рядом преимуществ по сравнению с масс-спектрометрией:

- измерения могут осуществляться без вскрытия контейнеров, т.е. нет необходимости отбора представительной пробы и ее химической подготовки;
- стоимость гамма-спектрометрической установки примерно в 10 раз ниже, чем современный масс-спектрометр для изотопного анализа плутония;
- существенно ниже затраты времени на выполнение анализа.

Таким образом, в связи с ближайшими перспективами использования плутония со склада РТ-1 для фабрикации смешанного уран-плутониевого топлива, разработка методики определения изотопного состава плутония с использованием неразрушающего гамма-спектрометрического метода, позволяющего проводить измерения с меньшими экономическими и временными затратами, вместо традиционно применяемого разрушающего масс-спектрометрического метода, является важной и весьма актуальной.

**Целью работы** явилось обоснование возможности гамма-спектрометрического определения изотопного состава энергетического плутония в условиях производства завода РТ-1 для обеспечения изготовления смешанного уран-плутониевого топлива.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие задачи.

1. Исследовать особенности спектров излучения образцов плутония завода РТ-1 для обоснования выбора рабочего энергетического диапазона в зависимости от изотопного состава, массы образца, геометрии измерений и др.

2. Разработать гамма-спектрометрические системы, оптимальные для измерений изотопного состава плутония в пробах и контейнерах.

3. Исследовать факторы, искажающие результаты определения изотопного состава плутония, и минимизировать их влияние на результаты анализа.

4. Исследовать степень неравномерности изотопного состава плутония в партиях продукта и в объемах отдельных контейнеров и оценить ее влияние на результат измерений изотопного состава гамма-спектрометрическим методом.

5. Разработать корреляционную формулу для расчета массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  в плутонии завода РТ-1.

6. Оценить достижимую точность результатов гамма-спектрометрических анализов изотопного состава плутония для выбранных оптимальных условий измерений.

7. Проанализировать возможность замены используемого на РТ-1 масс-спектрометрического метода определения изотопного состава плутония на гамма-спектрометрический метод.

#### **Научная новизна.**

1. Впервые установлено, что при гамма-спектрометрическом определении изотопного состава больших образцов плутония наиболее достоверные результаты можно получить путем анализа высокоэнергетического диапазона спектра программой FRAM.

2. Разработан новый набор параметров программы FRAM, учитывающий особенности гамма-спектров плутония, выделенного из ОЯТ российских энергетических реакторов.

3. Установлена новая корреляционная зависимость определения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  с учетом специфики изотопного состава энергетического плутония, хранящегося на РТ-1.

#### **Практическая ценность работы.**

1. Обосновано применение и развит метод неразрушающего контроля изотопного состава плутония на РТ-1;

2. Разработана, аттестована и внедрена на РТ-1 методика определения изотопного состава плутония в контейнерах, которая позволит решать следующие задачи:

– осуществлять контрольные неразрушающие измерения изотопного состава плутония в контейнерах при комплектовании партии перед отправкой на завод по фабрикации смешанного уран-плутониевого топлива;

– проводить неразрушающие измерения изотопного состава плутония в рамках системы государственного учета и контроля ядерных материалов на заводе РТ-1;

– определять изотопный состав плутония в контейнерах, заполненных в период с 1990 г. по 2000 г., в течение которого не выполнялись масс-спектрометрические измерения, с целью отбора контейнеров с высоким содержанием  $^{241}\text{Am}$  для изотопного производства и входного контроля для обеспечения ядерной безопасности перед загрузкой диоксида плутония в технологические цепочки, на которые установлено ограничение по содержанию массовой доли  $^{240}\text{Pu}$ .

По результатам диссертационной работы на РТ-1 построена измерительная система, оптимизированная для проведения гамма-спектрометрических измерений изотопного состава энергетического плутония в контейнерах. Методика внедрена на РТ-1 ПО «Маяк» приказом по предприятию от 24.10.2012 № 193/764-П, что позволяет

осуществлять измерения изотопного состава плутония с приемлемой точностью и с меньшими затратами по сравнению с применяемым на РТ-1 масс-спектрометрическим анализом.

**Основные положения, выносимые на защиту.**

1. Гамма-спектрометрическая система для неразрушающего контроля изотопного состава энергетического плутония массой до 3 кг, упакованного в контейнеры.

2. Разработанный новый набор параметров программы FRAM, учитывающий особенности спектра гамма-излучения контейнеров с энергетическим плутонием на РТ-1.

3. Аттестованная «Методика измерений массовой доли изотопов плутония в контейнере с диоксидом плутония гамма-спектрометрическим методом с применением программы FRAM 4.4» МВИ 223.0109/01.00258/2012.

4. Результаты исследований неоднородности изотопного состава в партиях и отдельных контейнерах  $\text{PuO}_2$ , произведенных на РТ-1.

5. Корреляционная формула для определения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  в энергетическом плутонии.

**Достоверность результатов и выводов обеспечивается следующим:**

– результаты проведенных гамма-спектрометрических анализов воспроизводимы и согласуются с данными, полученными с применением других аттестованных методик;

– заявленные метрологические характеристики разработанной методики определены на основе многократных измерений стандартных образцов различной массы, изотопного состава и времени хранения плутония;

– корреляционная формула разработана на основе паспортных данных о более 6 тыс. партий диоксида плутония с разными изотопными составами, полученных с помощью масс-спектрометрического метода.

**Личный вклад соискателя** заключается в постановке задачи, проведении экспериментальных исследований по разработке гамма-спектрометрической методики определения изотопного состава плутония, произведенного на заводе РТ-1 и упакованного в контейнеры, интерпретации результатов анализа спектров и модификации набора параметров для программы FRAM. В рамках диссертационной работы соискателем проведены обширные экспериментальные исследования неоднородности изотопного состава плутония, произведенного на РТ-1.

**Структура и объем работы.** Диссертация состоит из введения, 8 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений, словаря терминов, списка использованной литературы, списка иллюстративного материала, 3 приложений. Материалы диссертации изложены на 182 страницах, содержат 74 таблицы, 73 рисунка, список цитируемой литературы из 37 наименований и включают 3 приложения на 26 страницах.

**Апробация результатов.** Основные результаты диссертационного исследования докладывались и обсуждались на Международном семинаре по методам измере-

ний, стандартным образцам и оборудованию для разрушающего и неразрушающего анализа ФГУП «ВНИИА», научных сессиях НИЯУ МИФИ-2011, НИЯУ МИФИ-2012 и научной школе-семинаре «Волга-2014».

**Публикации.** По теме диссертации опубликовано 5 работ, включая 3 статьи в журналах, рекомендованных ВАК.

## ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во введении** обоснована актуальность исследований, направленных на применение гамма-спектрометрии для контроля изотопного состава энергетического плутония на различных этапах обращения с ним. Сформулированы цель работы и решаемые задачи, указаны научная новизна и практическая ценность, изложены основные положения, выносимые на защиту.

**В первой главе** проведен анализ условий производства, хранения и проведения измерений плутония на заводе РТ-1. Рассмотрены технология производства диоксида плутония, его характеристики и конструкция контейнеров, в которых осуществляется хранение диоксида плутония на РТ-1. Контейнеры с диоксидом плутония являются мощными источниками гамма- и нейтронного излучения, так как масса энергетического плутония в них достигает 3 кг и велико содержание четно-четных изотопов. Из-за огромной номенклатуры перерабатываемых отработавших тепловыделяющих сборок (ОТВС) изотопный состав плутония изменяется в широких пределах. Для переработки ОЯТ разных реакторов используется одна технологическая линия, при этом зачистка оборудования после каждой операции переработки не производится. Указанные причины могут вызывать значительную неравномерность изотопного состава плутония в отдельных контейнерах.

Проведен анализ существующей методики определения изотопного состава плутония на РТ-1 с использованием масс-спектрометров модели МИ 1201. Рассмотрены основные стадии проведения анализа, качество выполнения которых напрямую влияет на точность получаемых результатов:

- отбор пробы;
- растворение пробы и очистка раствора от интерферирующих примесей;
- введение подготовленного раствора в источник ионов масс-спектрометра;
- проведение измерения масс-спектра и обработка данных.

Отмечен существенный недостаток применяемой методики – с целью уменьшения количества анализов производится смешивание проб, отобранных из разных контейнеров, тем самым паспортизация диоксида осуществляется партиями, состоящими из нескольких контейнеров, без подтверждения однородности продукта по изотопному составу. Это вызывает некоторую неопределенность паспортных значений и может в дальнейшем создавать проблемы при комплектации партий для изготовления топлива с необходимыми характеристиками.

**Во второй главе** проведен аналитический обзор современного состояния гамма-спектрометрии изотопного состава плутония с использованием зарубежных и рос-

сийских работ и публикаций. Рассмотрены основные энергетические области гамма-спектра плутония, используемые для определения изотопного состава, отмечены особенности определения числа отсчетов в пиках изотопов плутония.

Рассмотрены две программы (MGA и FRAM), которые применяют для определения изотопного состава плутония по спектрам его гамма-излучения. Обе программы используют метод «внутренней калибровки». Проводится анализ пиков полного поглощения в спектре гамма-излучения образца плутония, полученного с помощью особо чистого германиевого (ОЧГ) детектора. Для анализа используются гамма-пики нуклидов  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{237}\text{U}$ . С целью расчета изотопного состава программы комбинируют данные, полученные из спектра с известными фундаментальными параметрами, такими, как периоды полураспада и квантовые выходы излучений. На основе этих данных строится функция зависимости относительной эффективности регистрации излучений от их энергии. Таким образом, обеспечивается независимость результатов анализа от размеров, формы и химического состава образца, геометрии измерения и параметров контейнера, и, что наиболее важно, не требуется калибровка с помощью стандартных образцов.

Рассмотрены конструкции коаксиальных ОЧГ детекторов р- и п-типа. Обосновано использование детекторов п-типа при измерении больших образцов энергетического плутония, так как допустимый флюенс повреждающих детектор нейтронов на порядок больше, чем для детекторов р-типа.

Рассмотрены преимущества современных цифровых спектрометрических систем над аналоговыми. Использование в анализаторах ЦСП позволяет производить точную оптимизацию параметров системы для получения наилучшего разрешения, а также повышает производительность и стабильность анализатора, что улучшит точность и повторяемость результатов измерения.

Проведен анализ данных о погрешностях результатов определения изотопного состава с использованием программ MGA и FRAM, приведенных в зарубежных публикациях, и методики, применяемой Ростехнадзором во время инспекций. По результатам анализа сделан вывод о том, что потенциальные возможности программ близки, поэтому выбор конкретного гамма-спектрометра и программы для анализа спектров должен быть сделан с учетом особенностей измерений на РТ-1.

**В третьей главе** приведены результаты оптимизации гамма-спектрометрических систем и условий измерения изотопного состава диоксида плутония на заводе РТ-1 для обеспечения минимальной погрешности результатов анализа спектров. По результатам рассмотрения технологии и условий производства диоксида плутония на РТ-1 были выбраны два объекта исследований: пробы диоксида массой от 5 до 20 г и заполненные контейнеры с массой плутония до 3 кг.

Из-за большой разницы в массе выбранных объектов, процесс оптимизации условий измерения для каждого рассматривался как самостоятельная задача, требующая индивидуального подхода. В ходе исследований на РТ-1 построены две гамма-спектрометрические системы, при этом для каждой:

- выбран тип детектора и анализатор импульсов;

- оптимизированы настройки анализатора для получения наилучшего энергетического разрешения при максимально допустимой входной скорости счета;
- подобран поглощающий фильтр, ослабляющий рентгеновское и гамма-излучение в области низких энергий;
- выбрана программа обработки спектров, обеспечивающая наименьшую погрешность определения изотопного состава.

Гамма-спектрометрическая система для проведения измерений проб включает гамма-спектрометр U-Pu InSpector, установленный вплотную к перчаточному боксу, в котором расположены пробы с диоксидом плутония. В боксе имеется окно из коррозионно-стойкой стали толщиной 2 мм для измерения гамма-излучения с энергией менее 100 кэВ.

Для анализа спектров от проб выбрана программа MGA, которая использует для анализа пики рентгеновского и гамма-излучения в области 95 – 105 кэВ со значительно более высокими выходами на распад чем у гамма-излучения в высокоэнергетической области. Самопоглощение гамма-излучения в пробах небольшое, а эффективность регистрации мягкого излучения ОЧГ детекторами имеет максимальное значение. Это позволяет за относительно малое время измерения (10 – 30 мин) набрать хорошую статистику в измеряемом спектре. Для поглощения гамма-излучения  $^{241}\text{Am}$  с энергией 59,54 кэВ устанавливают фильтр из Cd.

С целью выбора детектора и энергетической области анализа для измерений изотопного состава плутония, упакованного в контейнеры, проведены расчеты толщины «видимого» слоя (т.е. слоя вещества, равного 5 средним длинам свободного пробега гамма-квантов, т.к. вклад гамма-квантов, выходящих из такого слоя, в измеренный спектр превышает 99%) диоксида плутония, производимого на РТ-1, в зависимости от энергии гамма-излучения (рис. 1).

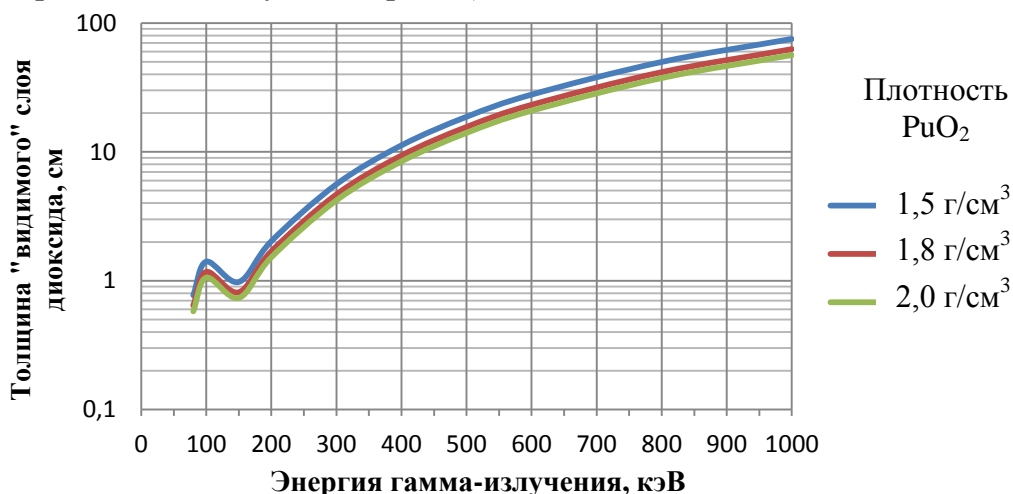


Рис. 1. Зависимость толщины «видимого» слоя  $\text{PuO}_2$  от энергии гамма-излучения

Изучив полученные зависимости, был сделан выбор в пользу коаксиального ОЧГ детектора с анализатором DSPec jr 2.0 и программы FRAM для анализа спектров плутония в области 200 – 1010 кэВ. Такое излучение менее подвержено поглощению

в образце, что дает возможность определять средний изотопный состав плутония в случае его неоднородности в объеме контейнера.

Для оптимизации настроек цифрового анализатора DSPec jr 2.0 экспериментально построены зависимости полной ширины на половине высоты (ПШПВ) пика полного поглощения от значений времени нарастания импульса (RS) и длительности плоской вершины (FT) для различной величины входной загрузки спектрометра. На основе полученных зависимостей было принято решение проводить измерения при следующих настройках: RS = 4,8 мкс, FT = 0,8 мкс. Расстояние между детектором и контейнером подбирали из условия, чтобы мертвое время при измерениях контейнеров с плутонием находилось в диапазоне 40 – 45 %.

Схема гамма-спектрометрической системы для измерения изотопного состава плутония в контейнерах представлена на рис. 2. Система включает коаксиальный ОЧГ детектор n-типа, сосуд Дьюара, цифровой анализатор DSPec jr 2.0. Детектор помещен в защиту от фонового гамма-излучения, закрепленную на роликовой платформе. Платформа перемещается по рельсовым направляющим и имеет возможность фиксироваться в нужных для оператора положениях. На детекторе установлен комбинированный фильтр (1 Cd мм и 5 мм Pb), эффективно поглощающий гамма- и рентгеновское излучение с энергией менее 200 кэВ. Применение фильтра позволяет в несколько раз увеличить скорость счета в пиках в высокоэнергетическом диапазоне, приблизив детектор к измеряемому контейнеру. С целью защиты детектора от радиационного повреждения нейтронами, контейнер помещается в защиту из борированного полиэтилена толщиной 102 мм.

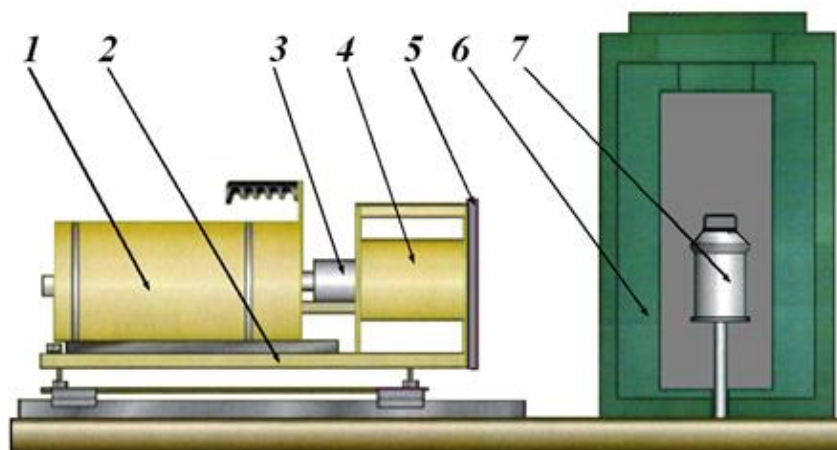


Рис. 2. Гамма-спектрометрическая система для измерения изотопного состава в контейнерах: 1 – сосуд Дьюара; 2 – платформа на роликах; 3 – ОЧГ детектор; 4 – защита детектора от фонового гамма-излучения; 5 – фильтры из кадмия и свинца; 6 – защита от нейтронов из борированного полиэтилена; 7 – контейнер с PuO<sub>2</sub>

**В четвертой главе** представлены основные экспериментальные результаты исследования неоднородности изотопного состава плутония, произведенного на РТ-1, и ее возможного влияния на результаты гамма-спектрометрических измерений.

Однородность является важной характеристикой образца, влияющей на качество измерения. При рассмотрении влияния возможной неоднородности в объеме об-

разцов на результат гамма-спектрометрии необходимо учитывать толщину слоя вещества, из которого гамма-кванты доходят до детектора, избегая поглощения. При измерениях контейнеров с диоксидом плутония для определения его изотопного состава очевидно преимущество использования FRAM и коаксиального детектора.

Особенно сильное влияние неоднородность оказывает на погрешность измерения разрушающих анализов, так как трудность отбора представительной пробы не позволяет реализовать высокую точность методов, которые используются для анализа пробы (масс-спектрометрия).

Для исследований было отобрано три партии плутония, произведенные в периоды перехода от переработки одних типов ОТВС к другим. Выбранные партии состояли из 6 – 7 контейнеров. Оценка однородности проводилась в соответствии с ГОСТ 8.531-2002 на основе многократных гамма-спектрометрических измерений всех контейнеров в выбранных партиях. Результаты оценки однородности изотопного состава плутония для них приведены в таблице 1.

Таблица 1

**Результаты оценки однородности в партиях диоксида плутония**

№ партии	Характеристика	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
1	Среднее относит. отклонение от паспорта, %	11,51	3,83	9,38	12,30
	Относит. погрешность измерения $\delta$ (P=0,99), %	2,9	1,8	4,7	3,5
	<b>Оценка однородности (<math>S_H</math>)</b>	<b>0,171</b>	<b>3,02</b>	<b>1,87</b>	<b>0,919</b>
2	Среднее относит. отклонение от паспорта, %	159,4	16,32	105,8	190,4
	Относит. погрешность измерения $\delta$ (P=0,99), %	3,5	0,5	2,6	5,1
	<b>Оценка однородности (<math>S_H</math>)</b>	<b>1,418</b>	<b>16,25</b>	<b>8,69</b>	<b>4,490</b>
3	Среднее относит. отклонение от паспорта, %	49,24	5,203	28,32	58,69
	Относит. погрешность измерения $\delta$ (P=0,99), %	1,6	0,8	1,7	5,1
	<b>Оценка однородности (<math>S_H</math>)</b>	<b>0,513</b>	<b>5,49</b>	<b>2,76</b>	<b>1,585</b>

Результаты измерения изотопного состава плутония в партиях показали, что в партиях № 2 и № 3 ни один контейнер не соответствует изотопному составу, указанному в паспорте на соответствующую партию (разность между декларированным и измеренным значением превышает погрешность измерения при 99% доверительном интервале). Для партии № 1 результаты измерений 5 из 6 контейнеров так же имеют большие отклонения от состава, приведенного в паспорте. Это указывает на существенную ошибку – проведение смешивания проб, отобранных из нескольких контейнеров, для последующего анализа на масс-спектрометре в периоды перехода переработки от одного вида ОЯТ к другому.

Для оценки однородности продукта в объеме отдельного контейнера был выбран контейнер, заполненный диоксидом плутония в период стабильной переработки ОЯТ ВВЭР-440. Оценку проводили по многократным гамма-спектрометрическим измерениям проб, отобранным в процессе заполнения контейнера диоксидом. На рис. 3

представлено как различались средние по 6-ти измерениям значения массовой доли  $^{239}\text{Pu}$  от пробы к пробе.

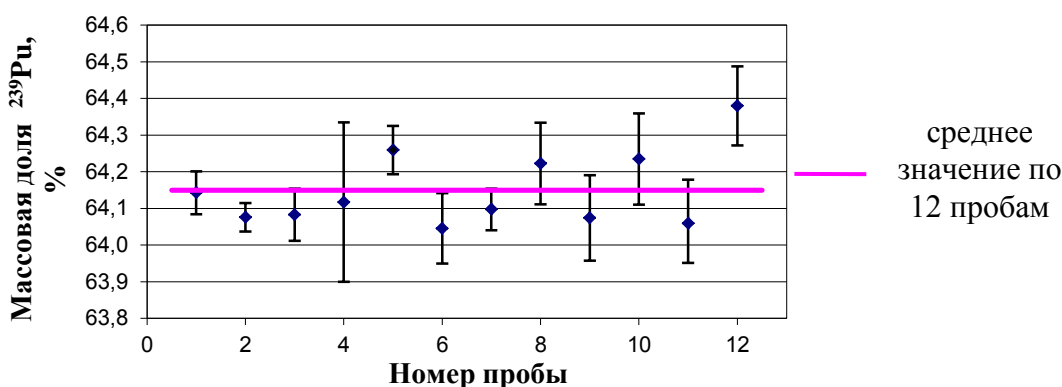


Рис. 3. Средние значения результатов измерений массовой доли  $^{239}\text{Pu}$  для проб (погрешность результата рассчитывалась как СКО среднего)

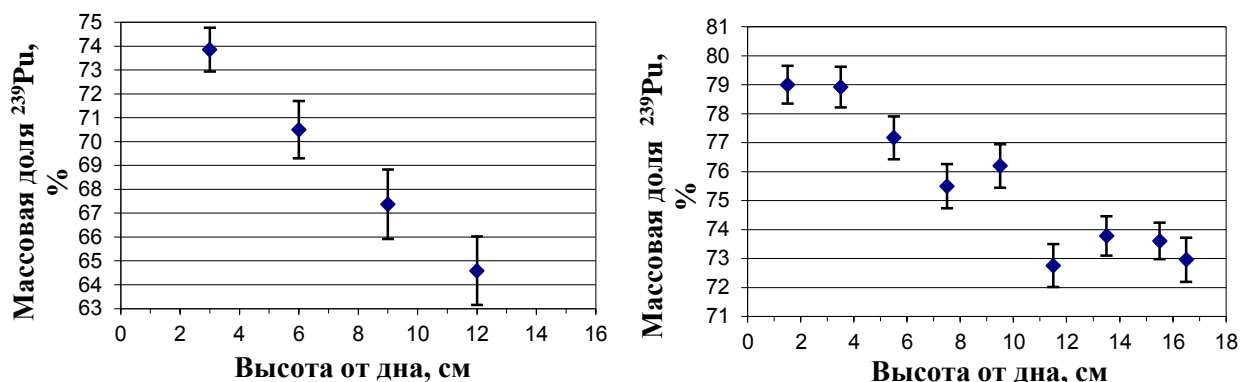
Результаты измерений 9 из 12 проб, с учетом погрешности, совпадают с рассчитанным средним значением по всем пробам. Оценка однородности ( $S_H$ ) для данного контейнера составила 0,006; 0,089; 0,074; 0,027 для  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  соответственно. Для проверки значимости различий дисперсий результатов измерений между пробами и «внутри проб» применен критерий Фишера, который показал, что дисперсии значимо различаются с вероятностью ошибки, превышающей критический уровень 0,05. Этот факт свидетельствует о том, что в данном контейнере различия изотопного состава плутония в пробах значимо не превышает погрешности его определения. Следовательно, изотопный состав плутония в выбранном случайным образом контейнере можно считать однородным.

Таким образом, большинство штатных контейнеров имеют однородный изотопный состав. Однако обнаруженные неоднородные партии указывают на возможность существования неоднородности в объеме контейнера, заполненного в переходные периоды. Неоднородность по объему также ожидаема для контейнеров, заполненных при зачистках технологического оборудования. Поэтому были проведены исследования влияния неоднородности изотопного состава в контейнере на результат анализа при использовании коаксиального детектора.

Для выявления неоднородности изотопного состава в контейнерах проводилось их сканирование по высоте гамма-спектрометром через щелевой коллиматор толщиной 100 мм с шириной щели 10 мм. Для сканирования были отобраны два образца:

- контейнер № 1 (из партии, которая была наработана при переходе с одного вида ОЯТ на другой);
- контейнер № 2 (заполненный плутонием, полученным при зачистке технологического оборудования).

Измерения показали (рис. 4), что массовая доля  $^{239}\text{Pu}$  изменяется от 73 до 79 % и от 64 до 74 % для контейнера № 1 и № 2 соответственно, что указывает на неоднородность изотопного состава по высоте, превышающую погрешность гамма-спектрометрических измерений.



Контeйнер № 1  
Контeйнер № 2  
Рис. 4. Распределение массовой доли  $^{239}\text{Pu}$  по высоте контeйнеров

В таблице 2 приведены отношения среднего изотопного состава рассчитанного по результатам сканирования к результатам измерения контeйнеров без коллимации гамма-излучения на коаксиальном детекторе (FRAM) и к паспортным значениям.

Таблица 2

**Сравнения отношений результатов измерений и паспортных данных**

№ контeйнера	Отношение	$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
1	Без коллиматора / средний по высоте	0,960	0,980	0,918	0,974
	Паспорт / средний по высоте	0,722	1,082	0,769	0,714
	Паспорт / без коллиматора	0,752	1,105	0,837	0,733
2	Без коллиматора / средний по высоте	1,026	1,003	0,983	1,001
	Паспорт / средний по высоте	0,831	1,036	0,911	0,843
	Паспорт / без коллиматора	0,810	1,033	0,926	0,842

Усредненный изотопный состав в пределах погрешностей соответствует результату измерения всего контeйнера без коллиматора. Таким образом, измерения без коллимации гамма-излучения могут применяться для контроля изотопного состава плутония, упакованного в контeйнеры.

В процессе сканирования контeйнера № 1 измерения проводились с двух сторон с целью выявления возможной радиальной неоднородности. Однако в ходе исследований значимой радиальной неоднородности изотопного состава не обнаружено.

**В пятой главе** приведены результаты разработки корреляционной формулы для расчета массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  с использованием результатов масс-спектрометрических анализов партий плутония (более 6000 изотопных составов).

Недостатком гамма-спектрометрии при определении изотопного состава плутония является невозможность прямого измерения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$ . Большой период полураспада изотопа  $^{242}\text{Pu}$  и относительно низкое содержание в плутонии делают его определение с помощью гамма-спектрометрии невозможным. Вместо этого расчет массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  проводится на основе данных о долях других изотопов

плутония. Существование корреляций обусловлено общим происхождением изотопов плутония, образующихся в результате нейтронных реакций и радиоактивных распадов.

Для оценки приемлемой погрешности определения доли  $^{242}\text{Pu}$  был оценен ее вклад в погрешность изотопного состава. Рассмотрены погрешности расчета доли  $^{242}\text{Pu}$  от 5 до 100% (рис. 5).

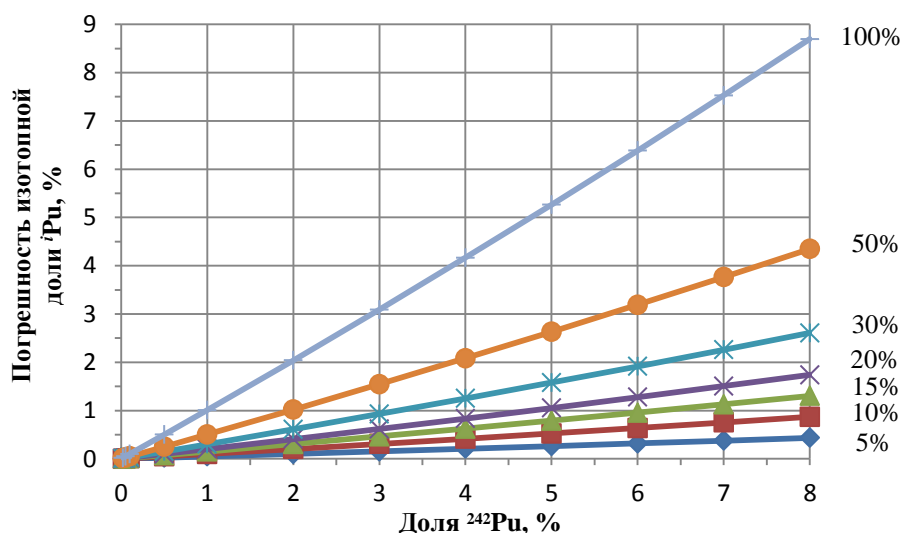


Рис. 5. Вклад погрешности расчета доли  $^{242}\text{Pu}$  в погрешности определения долей других изотопов плутония ( $^i\text{Pu}$  – доля  $i$ -го изотопа плутония, где  $i=238, 239, 240, 241$ )

Как видно из графика, если погрешность определения доли  $^{242}\text{Pu}$  меньше 10%, то погрешность долей других изотопов плутония, обусловленная ошибкой определения  $^{242}\text{Pu}$ , будет менее 1% для любого из представленных изотопных составов. Если доля  $^{242}\text{Pu}$  менее 4,5%, то вклад менее 1% в погрешность других изотопов будет обеспечивать погрешность  $^{242}\text{Pu}$  не более 20%. Если доля  $^{242}\text{Pu}$  менее 1%, то допустимая погрешность  $^{242}\text{Pu}$  может составлять 100%.

Для уменьшения погрешности расчета  $^{242}\text{Pu}$  было принято решение разбить весь диапазон имеющихся значений на два участка, и для каждого использовать свою корреляционную функцию.

В диапазоне изотопного состава  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} > 0,014$  (93% точек) предлагается использовать линейную зависимость:

$$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} = 0,714 \cdot \left( \left( \frac{^{238}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,4} \cdot \left( \frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,7} / \left( \frac{^{241}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,0667} \right) - 0,016 \quad (1)$$

В диапазоне изотопного состава  $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} < 0,014$  (7% точек) предлагается аппроксимировать следующей степенной функцией:

$$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} = 2,1896 \cdot \left( \left( \frac{^{238}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,4} \cdot \left( \frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,7} / \left( \frac{^{241}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}} \right)^{0,0667} \right)^{1,529} \quad (2)$$

Используя данные корреляционные формулы можно определить массовую долю  $^{242}\text{Pu}$  с погрешностью не более 10% для диапазона его содержания в плутонии от 2,5 до 7,5 % и 15% от 0,07 до 2,5% для  $P = 0,95$ .

Для сравнения разработанной корреляционной формулы с алгоритмами, включенными в программы MGA и FRAM, проведены расчеты массовой доли  $^{242}\text{Pu}$ , используя данные об изотопных составах плутония, хранящегося на РТ-1. Средние модули относительных отклонений для MGA, FRAM и разработанных корреляционных формул для РТ-1 приведены в таблице 3.

Таблица 3

**Средний модуль относительных отклонений результатов расчета  $^{242}\text{Pu}$**

Корреляция	Время, прошедшее после выделения плутония		
	0 лет	30 лет	100 лет
MGA	16,1	29,7	46,0
FRAM	13,1	15,6	39,2
Разработанная для РТ-1	5,06	5,06	5,06

Предлагаемые корреляционные формулы (1) и (2) позволяют оценивать массовую долю  $^{242}\text{Pu}$  с наименьшим значением среднего модуля относительных отклонений 5,06%, а также без существенного смещения результатов. Для сравнения: корреляции программ FRAM и MGA ведут к значениям 13,1% и 16,1% соответственно.

При подстановке данных использовались значения, полученные в процессе паспортизации плутония, перед постановкой на склад. Некоторые контейнеры хранятся на РТ-1 более 30 лет. За это время массовая доля  $^{241}\text{Pu}$  уменьшилась примерно в 4 раза, доля  $^{238}\text{Pu}$  более чем на 10%, а доля  $^{242}\text{Pu}$  несколько увеличилась. Поэтому целесообразно, чтобы корреляционные формулы учитывали изменение изотопного состава плутония со временем. Для оценки влияния времени на точность определения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  по корреляционным формулам изотопные составы были пересчитаны с учетом распада и накопления нуклидов за 30 и 100 лет, затем были выполнены аналогичные расчеты (см. таблицу 3).

Корреляционные зависимости, предлагаемые в программах MGA и FRAM, не учитывают изменение изотопного состава плутония со временем. Важная особенность корреляционных формул (1) и (2) – учет распада изотопов плутония со временем. Точность определения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  при хранении плутония в течение 100 лет практически не изменяется (рис. 6).

**В шестой главе** приведены основные результаты измерения изотопного состава плутония в пробах и контейнерах с целью оценки погрешности гамма-спектрометрического метода.

**Измерение изотопного состава плутония в пробах.** В процессе производства порошка диоксида плутония на РТ-1 перед герметизацией упаковок из каждого контейнера отбирается проба и помещается в бюкс. Далее бюксы отправляются в аналитическую лабораторию завода, где производится определение характеристик диоксида. На данном этапе можно использовать гамма-спектрометрический метод с целью

определения изотопного состава плутония в пробах, вместо измерений целых упаковок перед постановкой на склад.

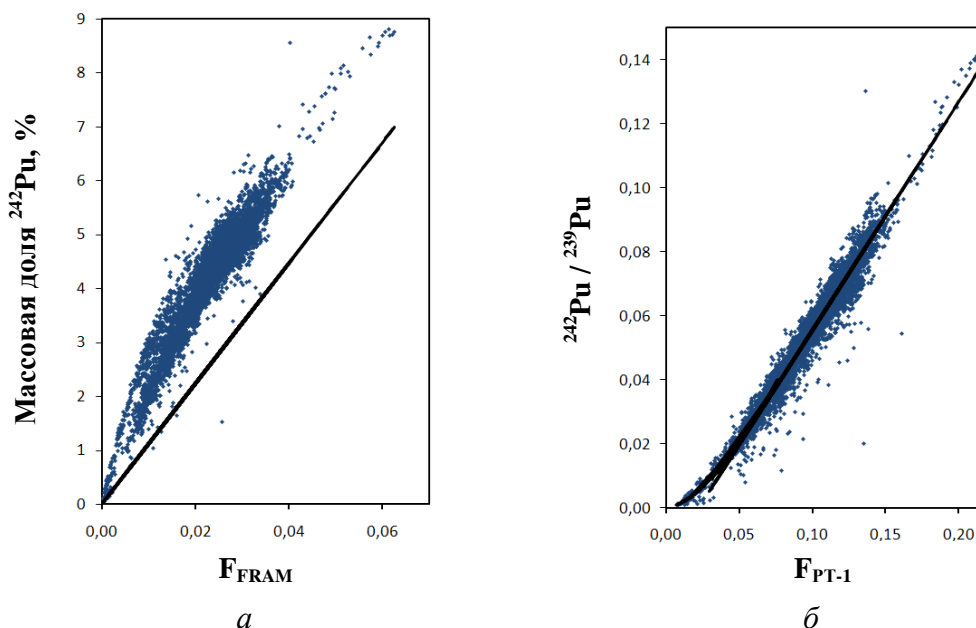


Рис. 6. Отношение массовых долей  $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  через 100 лет после выделения плутония, определяемое по корреляционным формулам: *a* – FRAM, *б* – разработанная для PT-1.

Гамма-спектрометрические измерения проб массой 5 – 20 г имеют ряд преимуществ по сравнению с измерениями контейнеров с массой плутония до 3 кг:

- меньшая радиационная нагрузка на персонал;
- не требуется защита детектора от быстрых нейтронов;
- отношение пик/фон в несколько раз больше, чем в спектре контейнера

(рис. 7).

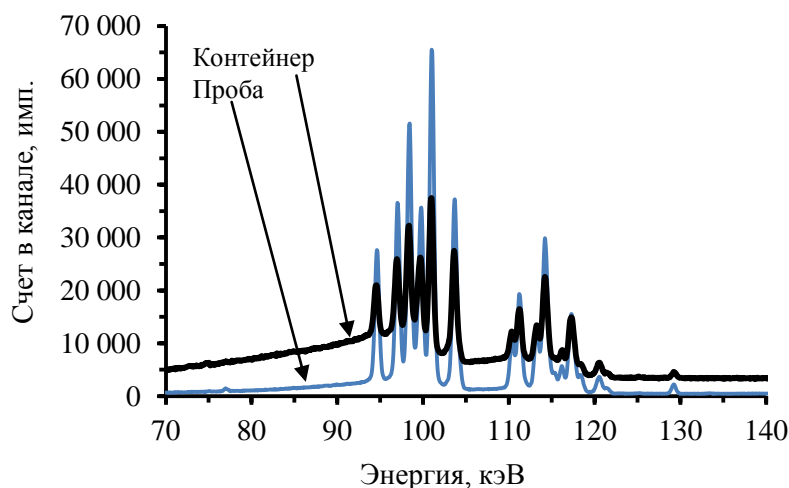


Рис. 7. Гамма-спектр пробы и контейнера с диоксидом плутония

Для проведения исследований был выбран набор из четырех ГСО с массой  $\text{PuO}_2$  3,2 г в каждом. Измерения проводились по «Методике выполнения измерений массовых долей изотопов плутония и изотопа америций-241 в плутонии гамма-спектрометрическим методом с использованием гамма-спектрометра U-Pu InSpector»

МВИ 223.13.17.104/2006 (далее методика MGA), используемая Ростехнадзором в ходе инспекционных проверок. Для каждого ГСО проводилась серия из 15 измерений в условиях повторяемости. Реальное время одного измерения составило 20 мин.

С целью оценки случайной и систематической погрешности, для полученных результатов рассчитаны относительные СКО и средний модуль относительных отклонений от паспортных значений массовых долей изотопов (таблица 4). Рассчитанные СКО и отклонения от паспортных значений не превышают погрешности, указанные в методике MGA. Таким образом, точность результатов анализа MGA спектров измеренных от малых образцов (3,2 г) согласуется с погрешностями, заявленными в методике MGA.

Таблица 4

**Относительные СКО и средний модуль относительных отклонений результатов измерений ГСО**

№ образца	Изотоп	MGA		Отн. погрешность методики MGA (P=0,95), %	Отн. погрешность ГСО (P=0,95), %
		СКО, %	Отн. откл., %		
ГСО-1	<sup>238</sup> Pu	1,31	2,25	39,4	3
	<sup>239</sup> Pu	0,03	0,04	0,2	0,02
	<sup>240</sup> Pu	0,50	0,74	2,7	0,3
	<sup>241</sup> Pu	0,86	2,96	5,7	1,3
ГСО-2	<sup>238</sup> Pu	0,24	0,30	4,8	1,05
	<sup>239</sup> Pu	0,05	0,09	0,2	0,03
	<sup>240</sup> Pu	0,49	0,93	2	0,25
	<sup>241</sup> Pu	0,62	2,13	4,3	1
ГСО-3	<sup>238</sup> Pu	0,36	0,44	2,7	0,8
	<sup>239</sup> Pu	0,05	0,11	0,4	0,025
	<sup>240</sup> Pu	0,29	0,67	1,3	0,13
	<sup>241</sup> Pu	0,45	1,14	4,3	0,65
ГСО-4	<sup>238</sup> Pu	0,35	3,18	4,8	0,9
	<sup>239</sup> Pu	0,05	0,14	0,6	0,05
	<sup>240</sup> Pu	0,21	0,53	1,1	0,2
	<sup>241</sup> Pu	0,39	0,33	4,3	0,4

Параллельно проводились гамма-спектрометрические измерения ГСО с использованием коаксиального детектора, при этом время измерения было увеличено в пять раз. Полученные спектры обрабатывались программой FRAM с использованием четырех разных наборов параметров. В свою очередь, спектры, полученные на гамма-спектрометре U-Pu InSpector, были обработаны программой FRAM с использованием набора параметров, анализирующего энергетический диапазон спектра 120 – 450 кэВ. В обоих случаях полученные отклонения от паспорта и СКО результатов определения изотопного состава превосходят аналогичные показатели, полученные при использо-

вании программы MGA, что подтверждает правильность сделанного выбора в ходе исследований по оптимизаций гамма-спектрометрических систем.

Для проверки применимости выбранного метода проведены гамма-спектрометрические измерения трех проб диоксида плутония, полученного в процессе переработки ОЯТ ВВЭР-440. Данные пробы были отобраны из одного контейнера и измерены на масс-спектрометре. Масса проб составила от 14 до 17 г.

Каждая проба была измерена 6 раз, в условиях повторяемости, на спектрометре U-Pu InSpector. Полученные средние значения относительных СКО и модулей отклонений результатов измерения изотопного состава в пробах в сравнении с погрешностями методики MGA и масс-спектрометрии приведены в таблице 5.

Таблица 5

**Сравнение усредненных СКО и модулей относительных отклонений для результатов измерений трех проб с погрешностью методики MGA и масс-спектрометрии**

Изотоп	MGA		Отн. погрешность методики MGA (P=0,95), %	Отн. погрешность масс-спектрометрии (P=0,95), %
	СКО, %	Отн. откл., %		
<sup>238</sup> Pu	0,80	0,69	1,2	2,1
<sup>239</sup> Pu	0,38	1,02	1,0	0,24
<sup>240</sup> Pu	0,85	2,28	1,1	1,0
<sup>241</sup> Pu	0,75	1,12	3,1	1,6

Полученные отклонения от паспорта для <sup>239</sup>Pu и <sup>240</sup>Pu больше в несколько раз, чем отклонения, полученные при измерениях ГСО. Это связано с тем, что изотопный состав плутония из ОЯТ ВВЭР-440 значительно отличается от изотопного состава в ГСО, в которых он ближе к плутонию из ОЯТ БН. В плутонии из ОЯТ ВВЭР-440 содержание <sup>239</sup>Pu менее 65%, такой состав для анализа MGA более затруднителен, так как гамма-пики <sup>239</sup>Pu, относительно которого определяется содержание остальных изотопов, являются самыми слабыми в спектре. В целом, полученные отклонения при измерениях проб, за исключением изотопа <sup>240</sup>Pu, не превышают относительные погрешности, указанные в методике MGA.

Результаты гамма-спектрометрических измерений образцов малой массы подтвердили метрологические характеристики, приведенные в методике MGA, что указывает на возможность применения U-Pu InSpector и программы MGA для определения изотопного состава плутония в пробах PuO<sub>2</sub>, с приемлемой точностью. Погрешность полученных результатов вполне сопоставима с погрешностью масс-спектрометрии на приборе МИ 1201, а расход времени на измерение в несколько раз меньше.

**Измерение изотопного состава плутония в контейнерах.** Для оценки погрешности результатов определения изотопного состава плутония в контейнерах с помощью FRAM, а также для сравнения с методикой MGA, проведены гамма-спектрометрические измерения восьми стандартных образцов предприятия (СОП), изготовленных и аттестованных на РТ-1. В соответствии с областью применения ме-

тодика MGA может использоваться для проведения измерений образцов плутония массой до 5 кг. Возможность измерения образцов массой 5 кг с такими же метрологическими характеристиками, как и в случае образцов малой массы, вызывает определенные сомнения, так как с увеличением размера образца в спектре ухудшается отношение пик/фон, что влияет на точность результатов.

СОП представляют собой типовые контейнеры, заполненные гомогенизированным диоксидом плутония, с разным изотопным составом. Изотопный состав варьируется в широком диапазоне, в частности по содержаниям  $^{239}\text{Pu}$  от 54,16 до 93,78 %,  $^{240}\text{Pu}$  от 5,32 до 24,33 %. Аттестацию контейнеров в качестве стандартных образцов проводили с помощью масс-спектрометрии.

Измерения проводили на двух гамма-спектрометрических системах: коаксиальном ОЧГ детекторе GMX25P4-A с анализатором DSPEC jr 2.0 и гамма-спектрометре U-Pu InSpector. Каждый образец измерялся 6 раз, реальное время одного измерения составило 5000 с.

Результаты, полученные при обработке MGA спектров гамма-спектрометра U-Pu InSpector, имеют отклонения от аттестованных значений превышающие в несколько раз погрешности измерения, приведенные в методике MGA. Данный факт подтверждает предположение об ухудшении метрологических характеристик при переходе к измерениям больших образцов.

При сопоставлении результатов анализа программой FRAM спектров от коаксиального детектора обнаружено, что MGA уступает по точности FRAM при определении изотопного состава плутония в контейнере. В целом, относительные отклонения от паспорта и СКО в случае MGA выше. Тем не менее, для ряда образцов отклонения от аттестованных значений превышали приемлемый уровень.

Для улучшения показателей точности результатов, получаемых с помощью FRAM, были проанализированы возможные недостатки ее работы и внесены соответствующие корректировки:

- добавлено гамма-излучение  $^{137}\text{Cs}$  (661,65 кэВ), учет которого позволяет избежать неправильной калибровки по энергии и ПППВ;
- изменено положение энергетических диапазонов определения фона в регионе 640 кэВ, что для ряда образцов дает более правильное построение функции фона под пиками в регионе;
- с целью снижения систематической ошибки в расчете массовой доли  $^{241}\text{Pu}$  заменены квантовые выходы гамма-излучения  $^{241}\text{Pu}$  –  $^{237}\text{U}$ .

С учетом перечисленного выше, был создан набор параметров (ShCxWR\_mod). Модификации набора параметров в целом улучшили подгонку пиков при анализе гамма-спектров диоксида плутония программой FRAM.

По результатам обработки спектров проведена оценка метрологических характеристик определения изотопного состава больших образцов диоксида плутония с помощью MGA и FRAM с использованием модифицированного набора параметров. Оценку проводили в соответствии с ОСТ 95 10353-2008. Полученные метрологические характеристики приведены в таблице 6.

**Оцененные характеристики погрешности FRAM и MGA при определении изотопного состава плутония в контейнерах, хранящихся на заводе РТ-1**

Изотоп	Диапазон массовых долей, %	MGA				ShCxWR_mod			
		$\sigma_T$ , %	$\sigma_R$ , %	$\delta_C$ , %	$\pm \delta$ , %	$\sigma_T$ , %	$\sigma_R$ , %	$\delta_C$ , %	$\pm \delta$ , %
<sup>238</sup> Pu	от 0,05 до 0,30	0,90	0,87	14,2	14,34	1,24	1,49	6,48	7,12
	от 0,30 до 1,00	1,76	0,44	4,87	4,94	0,56	0,67	4,92	5,17
	от 1,00 до 3,50	2,08	0,97	4,23	4,77	1,27	1,53	2,93	3,73
<sup>239</sup> Pu	от 54 до 60	1,80	1,17	5,41	5,89	0,39	0,50	0,42	1,09
	от 60 до 80	0,86	0,12	2,63	2,64	0,34	0,41	0,37	0,91
	от 80 до 94	0,27	0,08	1,43	1,44	0,14	0,17	0,37	0,50
<sup>240</sup> Pu	от 5,0 до 6,0	2,06	0,41	10,93	10,97	1,74	2,08	3,76	5,56
	от 6,0 до 12,0	1,92	0,66	12,78	12,87	1,61	1,94	3,56	5,20
	от 12,0 до 24,0	2,84	1,40	10,94	11,46	1,39	1,71	1,65	3,80
<sup>241</sup> Pu	от 0,2 до 0,4	1,26	0,36	8,33	8,38	1,49	1,80	17,86	18,28
	от 0,4 до 4,0	2,12	0,40	6,24	6,33	0,98	1,19	9,73	10,1
	от 4 до 10	2,67	0,84	3,70	4,17	0,53	0,65	1,60	2,30

Проведенные исследования показали, что в методике MGA приведены заниженные погрешности определения массовых долей изотопов плутония для измерения больших образцов (массой около 3 кг). Сравнение результатов, полученных при обработке спектров СОП программами MGA и FRAM, показало преимущество последней, особенно при определении массовой доли <sup>240</sup>Pu.

Созданный набор параметров (ShCxWR\_mod) для FRAM позволяет улучшить точность определения изотопного состава плутония по сравнению со стандартными наборами в несколько раз. В целом, погрешности результатов оказались близки к международным целевым значениям для анализов образцов плутония высокого и низкого выгораний с помощью FRAM. Погрешности определения массовых долей отдельных изотопов соответствуют нормам точности подтверждающих измерений при приемлемом расходе времени.

По результатам проведенных исследований была разработана и аттестована МВИ 223.0109/01.00258/2012 «Методика измерений массовой доли изотопов плутония в контейнере с диоксидом плутония гамма-спектрометрическим методом с применением программы FRAM 4.4».

Для апробации и внедрения аттестованной методики специалистами завода РТ-1 была разработана и утверждена программа проверочных измерений стандартных образцов предприятия от 15.10.2012 № 5.4/1046. После выполнения измерений и обработки результатов составлен протокол от 20.10.2012 № 5.4/1048, подтверждающий метрологические характеристики, заявленные в методике. Протокол утвержден глав-

ным инженером завода РТ-1. По результатам апробации методика внедрена на заводе РТ-1 приказом по предприятию от 24.10.2012 № 193/764-П с 01.11.2012.

**В седьмой главе** представлено сравнение погрешностей используемой на РТ-1 методики масс-спектрометрического анализа плутония с гамма-спектрометрическими: методики МГА применительно к измерениям проб и методики, разработанной в ходе диссертационной работы, применительно к измерениям плутония, упакованного в контейнеры. Во второй части главы приведены результаты экономической оценки проведения измерений изотопного состава плутония.

Точность масс-спектрометрии напрямую зависит от величины массовой доли. Масс-спектрометрический анализ является более точным, чем гамма-спектрометрия только при уровне массовых долей изотопов выше 2%. В остальных случаях по отдельным изотопам у гамма-спектрометрии имеются преимущества, к примеру:

- при массовой доле  $^{238}\text{Pu}$  менее 0,2% погрешность его определения с использованием масс-анализа становится неприемлемой и требуется дополнительный альфа-спектрометрический анализ;

- при массовой доле  $^{238}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$  менее 0,6% погрешность их определения с помощью гамма-спектрометрической методики МГА в два раза ниже, чем при использовании масс-спектрометрии.

В целом, погрешности гамма-спектрометрии при измерениях изотопного состава плутония в контейнерах по методике МВИ 223.0109/01.00258/2012 превышают погрешности при измерении проб с использованием методики МГА. При этом по точности гамма-спектрометрические измерения проб приближаются к результатам, полученным с помощью масс-спектрометра МИ 1201. В частности при измерении плутония от переработки ОЯТ БН погрешности будут близкими. При измерениях плутония из ОЯТ ВВЭР гамма-спектрометрия при измерении проб будет уступать по точности для  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$ .

Необходимо отметить, что при существующей технологии переработки топлива на РТ-1, могут образовываться партии с неоднородностью, превышающей на порядок погрешность масс-спектрометрии. Это вызывает сомнения в достоверности паспортных данных части контейнеров, полученных в течение нескольких десятилетий.

Для экономической оценки проведения измерения изотопного состава плутония, рассмотрена стоимость используемого оборудования и оценены трудозатраты при проведении измерений. Масс-спектрометр, являясь технически более сложным оборудованием, стоит на порядок больше (4 млн. против 42 млн. руб. в ценах 2013 г). При этом масс-спектрометрия относится к разрушающим методам, из-за чего требуется большее количество персонала, что значительно увеличивает трудозатраты.

В результате, по оценкам стоимость одного анализа изотопного состава плутония на масс-спектрометре составит не менее 4 900 руб., что в три раза превосходит стоимость проведения гамма-спектрометрического анализа контейнера с плутонием и на порядок дороже проведения гамма-спектрометрического измерения пробы.

**В восьмой главе** проведен анализ возможности использования гамма-спектрометрического контроля изотопного состава плутония на различных стадиях производства завода РТ-1.

Применение, разработанной в ходе диссертационной работы, гамма-спектрометрической методики экономически оправдано при решении следующих задач:

1) осуществление контрольных неразрушающих измерений контейнеров при комплектовании партии плутония перед отправкой на завод по фабрикации смешанного уран-плутониевого топлива;

2) проведение подтверждающих измерений атрибутивных признаков и для интерпретации результатов счета нейтронных совпадений или калориметрии, при измерениях массы плутония в контейнерах в рамках системы государственного учета и контроля ЯМ;

3) определение изотопного состава плутония в контейнерах, заполненных в период с 1990 г. по 2000 г., в течение которого не выполнялись масс-спектрометрические измерения, с целью:

- отбора контейнеров с высоким содержанием  $^{241}\text{Am}$  для изотопного производства;

- входного контроля для обеспечения ядерной безопасности перед загрузкой диоксида плутония в технологические цепочки, на которые установлено ограничение по содержанию массовой доли  $^{240}\text{Pu}$ ;

Методику MGA, позволяющую проводить быстрые измерения малых образцов с приемлемой точностью, можно успешно применять для:

1) проведения экспресс измерений изотопного состава плутония в пробах, отобранных из контейнеров в процессе упаковки диоксида, перед усреднением пробы для масс-спектрометрического анализа, что позволит выявлять партии со значимой неоднородностью по изотопному составу плутония. В случае обнаружения таких партий, проводить масс-спектрометрические измерения каждой пробы, для снижения влияния неоднородности на точность результатов масс-анализов;

2) проведения измерений изотопного состава плутония в пробах с целью паспортизации партий, в случае неисправности имеющегося масс-спектрометра. Расчет массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  осуществлять по разработанным корреляционным формулам.

## **ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ**

1. На заводе РТ-1 созданы и оптимизированы два измерительных комплекса:  
– для определения изотопного состава плутония в пробах (гамма-спектрометр U-Pu InSpector и программа MGA);

– для определения изотопного состава плутония в контейнерах (коаксиальный ОЧГ детектор n-типа с анализатором DSPEC jr 2.0 и программа FRAM).

2. Показано, что при существующей технологии переработки ОЯТ на заводе РТ-1 в периоды перехода от одних типов ОТВС к другим образуются партии диокси-

да с неоднородностью изотопного состава значительно превышающую погрешность масс-спектрометрического анализа.

3. В контейнерах с диоксидом плутония, заполненных в периоды смены вида перерабатываемого ОЯТ, а так же продуктом, полученным после операций освобождения и зачистки технологического оборудования, обнаружена значимая неоднородность изотопного состава по высоте контейнера.

4. Установлено, что результаты измерений без коллиматора совпадают с усредненным по объему изотопным составом. Таким образом, измерения без коллимации гамма-излучения могут применяться для контроля изотопного состава плутония, упакованного в контейнеры.

5. Выявлено, что большинство штатных контейнеров содержат диоксид плутония с однородным изотопным составом.

6. Разработанная корреляционная формула для определения массовой доли  $^{242}\text{Pu}$  по результатам измерений  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  позволяет в несколько раз повысить точность оценки по сравнению с алгоритмами расчета, применяемыми в программах FRAM и MGA.

7. Показано, что погрешности гамма-спектрометрических анализов проб по методике MGA (за исключением  $^{241}\text{Pu}$ ) близки к погрешностям результатов измерений на масс-спектрометре МИ 1201. При этом стоимость одного анализа изотопного состава плутония на масс-спектрометре на порядок превосходит стоимость проведения гамма-спектрометрического анализа пробы. Данная методика может быть рекомендована для определения изотопного состава проб диоксида плутония массой от 5 до 20 г плутония при его паспортизации для уменьшения затрат на проведение анализов.

8. Установлено, что при измерении образцов с массой плутония более 1 кг погрешность результатов анализа программой MGA значительно возрастает и уступает по точности программе FRAM.

9. Проанализированы факторы, влияющие на результат обработки программой FRAM спектров излучения контейнеров, и создан учитывающий их набор параметров, позволяющий улучшить точность определения изотопного состава в несколько раз.

10. Разработана и аттестована «Методика измерений массовой доли изотопов плутония в контейнере с диоксидом плутония гамма-спектрометрическим методом с применением программы FRAM 4.4» (МВИ 223.0109/01.00258/2012). В целом, погрешности результатов определения изотопного состава оказались близки к международным целевым значениям для анализов образцов плутония высокого и низкого выгораний и соответствуют нормам точности подтверждающих измерений при приемлемом расходе времени.

11. Разработанная методика внедрена на РТ-1 ПО «Маяк» и может быть рекомендована для использования при: комплектации партий диоксида плутония для фабрикации смешанного уран-плутониевого топлива; определении изотопного состава плутония в контейнерах с неизвестным изотопным составом; проведении физических инвентаризаций ядерных материалов.

## ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

1. А.В. Бушуев, А.Ф. Кожин, А.М. Павлов. Исследование неоднородности и определение среднего изотопного состава плутония с помощью гамма-спектрометрии – Ядерная физика и инжиниринг, 2011, т. 2, № 2, с. 115 – 120.
2. А.В. Бушуев, Т.Б. Алеева, А.М. Павлов. Гамма-спектрометрическое определение изотопного состава плутония в контейнерах с помощью программ MGA и FRAM – Атомная энергия, 2012, т. 113, вып. 2, с. 96 – 101.
3. Т.Б. Алеева, А.В.Бушуев, А.М.Павлов. Сравнение корреляционных формул определения относительного содержания  $^{242}\text{Pu}$  в плутонии, наработанном на заводе РТ-1 ПО «Маяк» – Атомная энергия, 2013, т. 114, вып. 4, с. 202 – 205.
4. А.М. Павлов, А.В. Бушуев. Особенности паспортизации и контрольных измерений изотопного состава плутония, производимого и хранящегося на заводе РТ-1 ПО «Маяк» – Анн. Докладов «Научная сессия НИЯУ МИФИ-2012», т. 1, с. 73.
5. А.М. Павлов, А.В. Бушуев, Т.Б. Алеева, А.Ф. Кожин, Е.В. Петрова, В.Н. Зубарев. Сравнение результатов определения изотопного состава плутония в контейнерах, хранящихся на заводе РТ-1 ПО «Маяк», с помощью программ MGA и FRAM – Анн. Докладов «Научная сессия НИЯУ МИФИ-2012», т. 1, с. 73.