

Сравнительное исследование точности анализа изотопного состава ядерных материалов с использованием программного обеспечения SpectraLine, MGA, MGAU и FRAM для инспекционного контроля в рамках ядерных гарантий МАГАТЭ

МАЙОРОВ В.П., БЕРЛИЗОВ А.Н. МАГАТЭ
КУВЫКИН И.В., ДАНИЛЕНКО В.Н., КОВАЛЬСКИЙ Е.А. ООО ЛСРМ

ППСР- 2019 Казань
07 Октября 2019

Содержание

- Международные требования к точности измерений
- Обработка гамма спектров урана и плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA(U)
- Гамма спектры сертифицированных образцов
- **Сравнение данных обработки:**
- Изотопный состав урана
- Изотопный состав плутония
- Изотопный состав MOX
- Экранированные образцы урана и плутония

Международные требования к точности измерений

Верификация ядерных материалов, находящихся под международными гарантиями должна проводиться в соответствии с утвержденными погрешностями анализа

Таблица 1. Точности анализа изотопного состава плутония [1]

Изотопное отношение	Разрушающий анализ		Инспекция		Лаборатория	
	стат, %	систем, %	стат, %	систем, %	стат, %	систем, %
Pu238/Pu239	1,5	1	1	2	1	1
Pu240/Pu239	0,1	0,05	1	1	0,7	0,7
Pu241/Pu239	0,2	0,2	1	1	0,7	0,7

[1] International Target Values 2010 for Measurement Uncertainties in Safeguards Nuclear Materials, K.Zhao, M.Penkin, C.Norman, et al, ESARDA Bulletin, 48, p.3, Dec. 2012

Обработка гамма спектров урана и плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA(U)

Для обработки спектров необходимы данные:

- Тип детектора (коаксиальный/планарный)
- Тип образца (уран/плутоний/MOX)
- Сценарий обработки или имя файла параметров
- Параметры спектра: эн. шкала, формат данных и т.д.
- Метод вычисления Pu-242/Pu-239 (плутоний, MOX)

Программа SpectraLineUltimate (версия 1.6.1)

Предназначена для прецизионного анализа изотопного состава урана и плутония гамма спектрометрическим методом

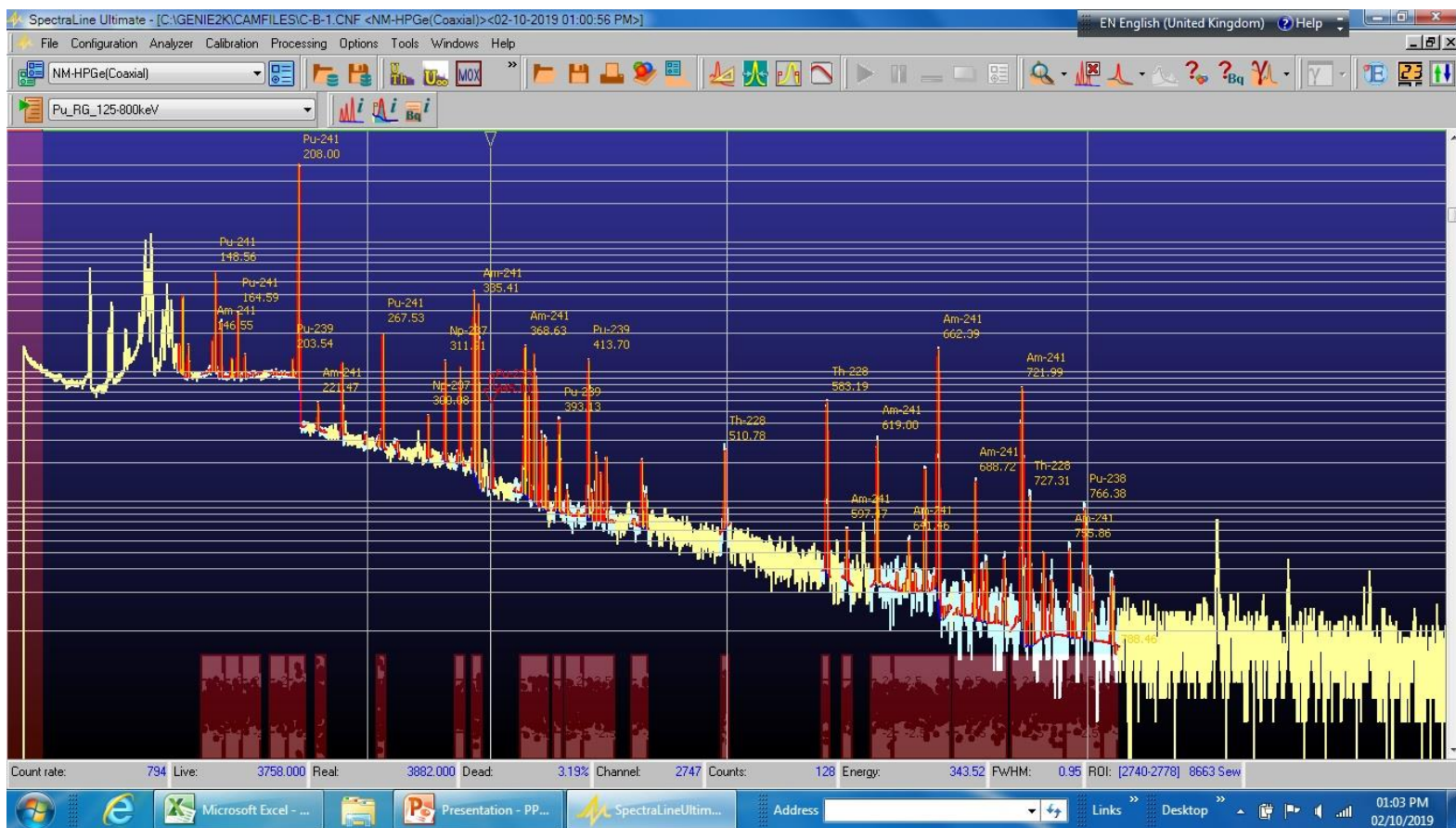
- Использование реальной формы гамма линии
- Учет лоренцова расширения рентгеновских линий
- Учет отношения интенсивностей линий одного нуклида
- Одновременная обработка всех участков спектра
- Перекалибровка эффективности с учетом (само)поглощения

Программы FRAM и MGA(U)

- ✓ Программа FRAM (**F**ixed-energy **R**esponse function **A**nalysis with **M**ultiple efficiency) разработана в Лос Аламосе в начале 90х. Для сравнения с SpectraLine использовалась версия 5.1. В настоящее время в МАГАТЭ поступила новая версия 5.2.
- ✓ Программы MGA(**M**ulti-**G**roup **A**nalysis) и MGAU разработаны в Ливерморе также в 90х. Автор программ Ray Gunnink. Для сравнения с SpectraLine использовалась версия 3.2 для анализа спектров урана и версии 9.63 (включена в Genie 2000) и '06 для анализа спектров плутония и МОХ.
- ✓ Эти программы широко используются в МАГАТЭ и лабораториях сети МАГАТЭ, а также в большинстве ядерных лабораториях во всем мире.

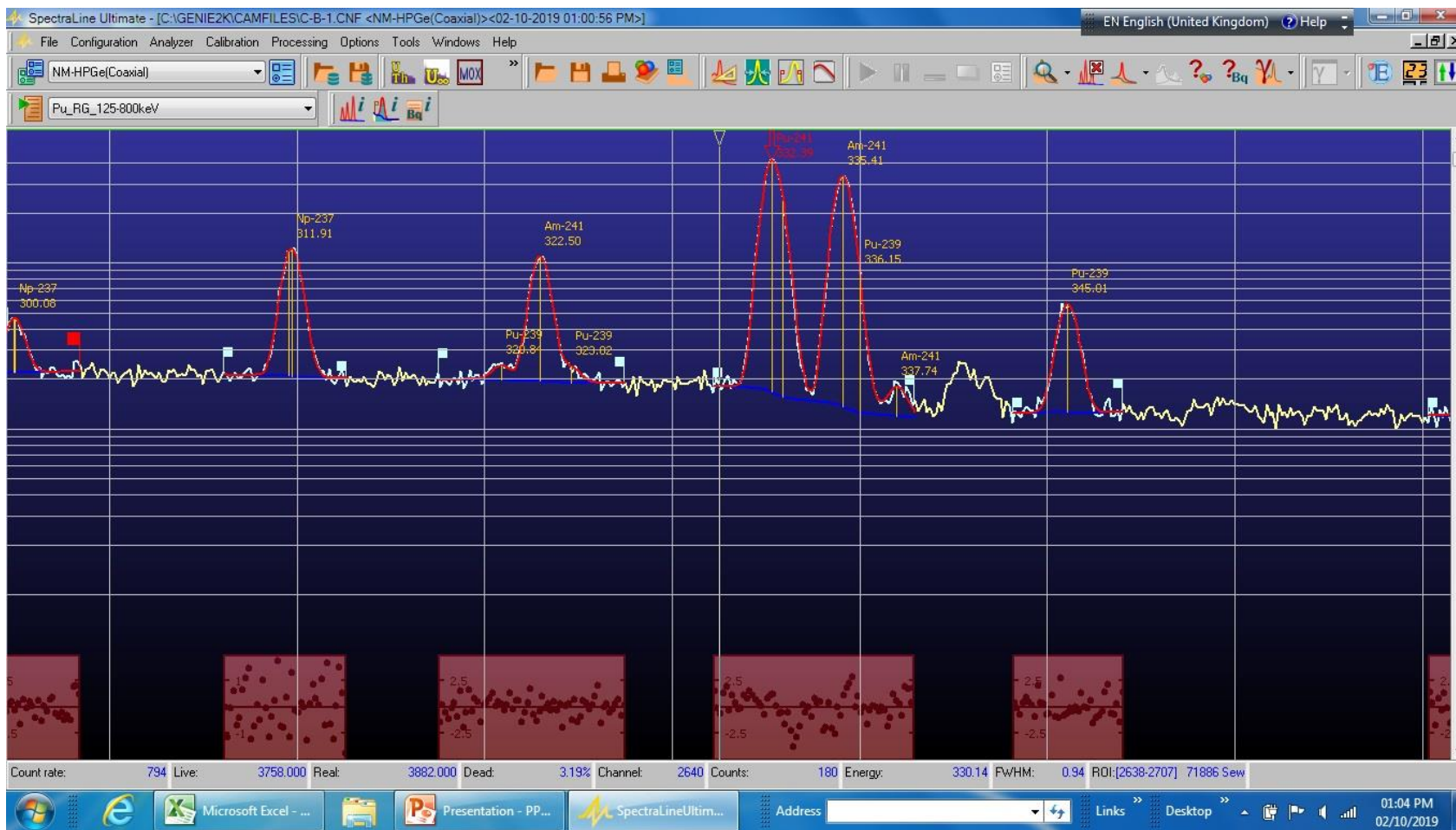
Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

SpectraLine. Обработанный спектр. Внизу указаны отклонения расчетного от измеренного спектра



Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

SpectraLine. Обработанный спектр. Интервал энергий 300-350 кэВ



Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

SpectraLine. Отчет для МАГАТЭ с указанием отклонений измеренного изотопного состава плутония от декларации



Laboratory for Spectrometry and Radiometry (LSRM)
SpectraLine Spectrum Analysis Software
Version 1.6.7905

SPECTRUM ANALYSIS REPORT

Report generated on: 03/10/2019 10:17:21

Spectrum: C-B-1.spe Live time: 3757.86 sec
Acquisition date: 08/06/2000 06:14:56 Real time: 3881.88 sec
Inspector / Evaluator: Dead time: 3.19%
Facility code / MBA: / Total counts: 2.98E+006
Sample ID / Stratum: / Count rate: 7.94E+002 cps
Separation date: 23/06/1978 19:07:47

Configuration: NM-HPGe(Coaxial) Channels No: 8192
Analysis sequence: Pu_RG_125-800keV.lsc Offset (keV): -0.044
Reference date: 08/06/2000 06:14:56 Gain (keV/ch): 1.25E-001
Errors quoted at: 2 sigma FWHM @ 122 (eV): 723.405
Comment:

Isotope	Declaration		Measurement		Difference	
	Content* (wt%)	Relative error (%)	Content* (wt%)	Relative error (%)	Relative** (%)	No of sigma***
Pu-238	1.4352	0.0968	1.3955	15.2852	2.7671	0.1808
Pu-239	61.3043	0.1468	60.7899	10.1850	0.8391	0.0824
Pu-240	26.9010	0.2802	27.4276	24.6344	-1.9575	-0.0795
Pu-241	4.2990	0.4559	4.3265	11.0253	-0.6400	-0.0580
Pu-242	6.0605	0.3300	6.0605	0.3300	0	0
Am-241	8.3437	0.2101	8.0314	3.0481	3.7426	1.2250
Th-228	-	-	1.321E-07	6.5859	-	-
Np-237	-	-	0.1726	6.5259	-	-

Other quantities	Declaration		Measurement		Difference	
	Value (units)	Relative error (%)	Value (units)	Relative error (%)	Relative** (%)	No of sigma***
Pu-240eff fraction (%)	40.6993	0.2006	41.1259	16.4813	-1.0480	-0.0636
Pu-239eff fraction (%)	89.4700	0.1139	89.0643	8.0138	0.4534	0.0566
Specific power (mW/gPu)	20.9156	0.4439	20.3619	6.5742	2.6473	0.4018
Days since separation	8228.4682	0.3099	8004.0279	3.1843	2.7276	0.8525

* Isotope content relative to U total mass expressed in weight percent: Isotope_Mass / U_mass * 100%
** Relative difference = (Declaration - Measurement) / Declaration * 100%
*** No of sigma = Relative difference / SQRT((Declaration_Error^2 + Measurement_Error^2))

Изотоп	Декларация	SpectraLine	Отклонение, %
Pu-238, wt%	1.4352	1.3955	-2.76
Pu-239, wt%	61.3043	60.7899	-0.84
Pu-240, wt%	26.9010	27.4276	1.96
Pu-241, wt%	4.2990	4.3265	0.64
Pu-242, wt%	6.0605	6.0605	
Am-241, wt%	8.3437	8.0314	-3.74

Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

FRAM. Отчет по обработке спектра

```
*****
PC FRAM (5.1)      Isotopic Analysis      02-Oct-2019 12:55:40
(Fixed energy Response function Analysis with Multiple efficiencies)
Operator ID:
```

```
spectrum source:  C:\GENIE2K\CAMFILES\C-B-1.CNF
spectrum date:    08-Jun-2000 13:14:56
live time:       3758 s
true time:      3882 s
num channels:   8192
```

```
parameter set:   Pu_Cx_180-1010 (2011.05.10 16:43)
                 Pu Coax, Equilibrium, 180-1010keV
                 Physical Efficiency, Gain 0.125 keV/ch, Offset 0 keV
```

```
comment:
*****
*****
diagnostics passed.
```

```

                                     (OpEntry) %Am241/Pu
mass%      Pu238    Pu239    Pu240    Pu241    Pu242    Am241
          1.4808   67.2232  20.8843  4.3512   6.0605   8.7247
sigma      0.2130   6.2973   7.4076   0.4157   0.5685   0.8223
%RSD       14.38%   9.37%    35.47%   9.55%    9.38%    9.42%

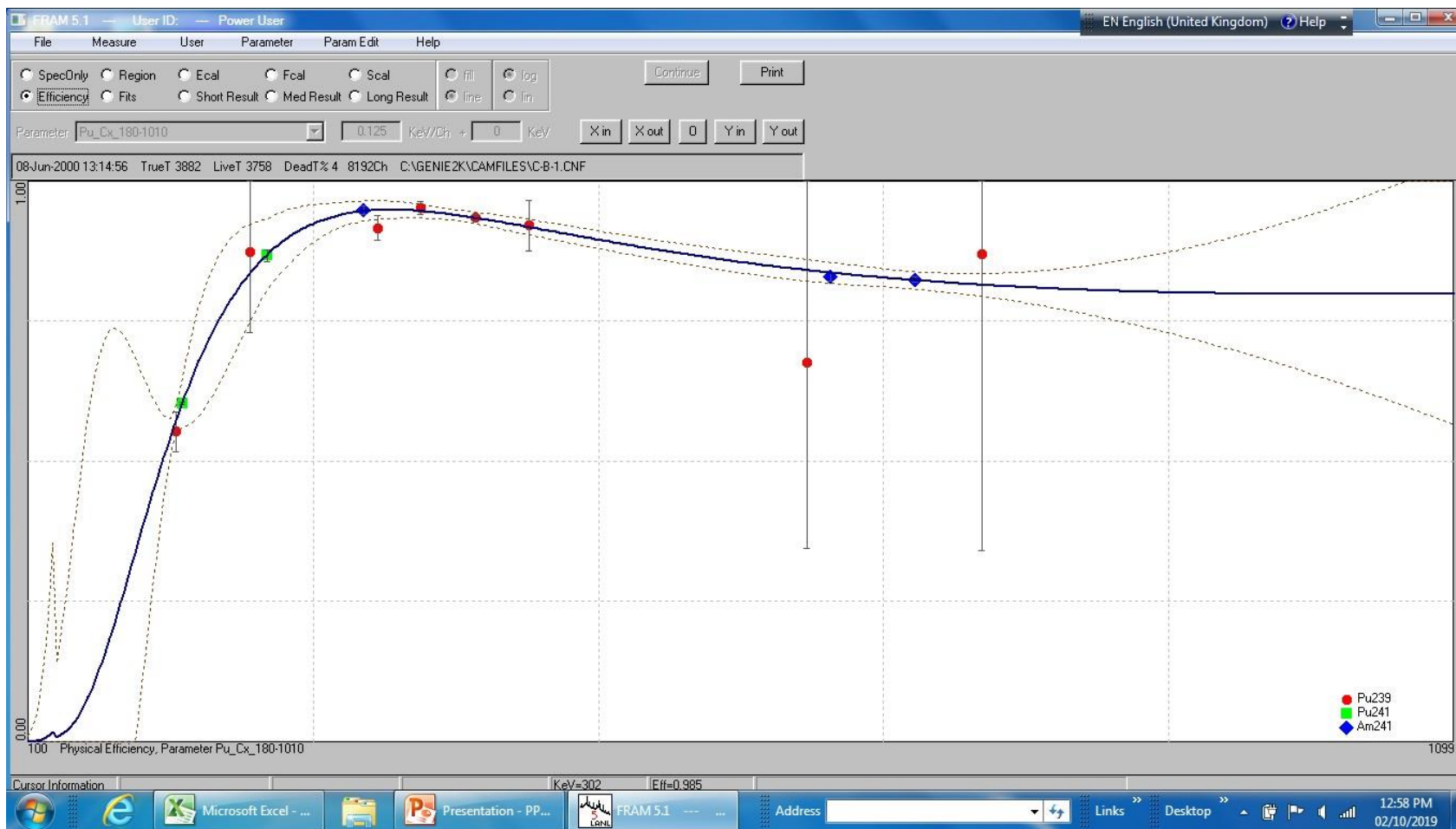
%TotPwr    39.46    6.09     6.94     0.70     0.03     46.78

Specific Power (W/gPu):  ( 21.2999 +/- 1.6226)e-003 ( 7.62%)
Effective Pu240 fraction: ( 34.7976 +/- 7.4881)e-002 ( 21.52%)
Time since chemical separation: 8429.1 +/- 110.5 days ( 1.31%)
```

Изотоп	Декларация	FRAM	Отклонение,%
Pu-238, wt%	1.4352	1.4808	3.179
Pu-239, wt%	61.3043	67.2232	9.655
Pu-240, wt%	26.9010	20.8843	-22.366
Pu-241, wt%	4.2990	4.3512	1.214
Pu-242, wt%	6.0605	6.0605	
Am-241, wt%	8.3437	8.7247	4.566

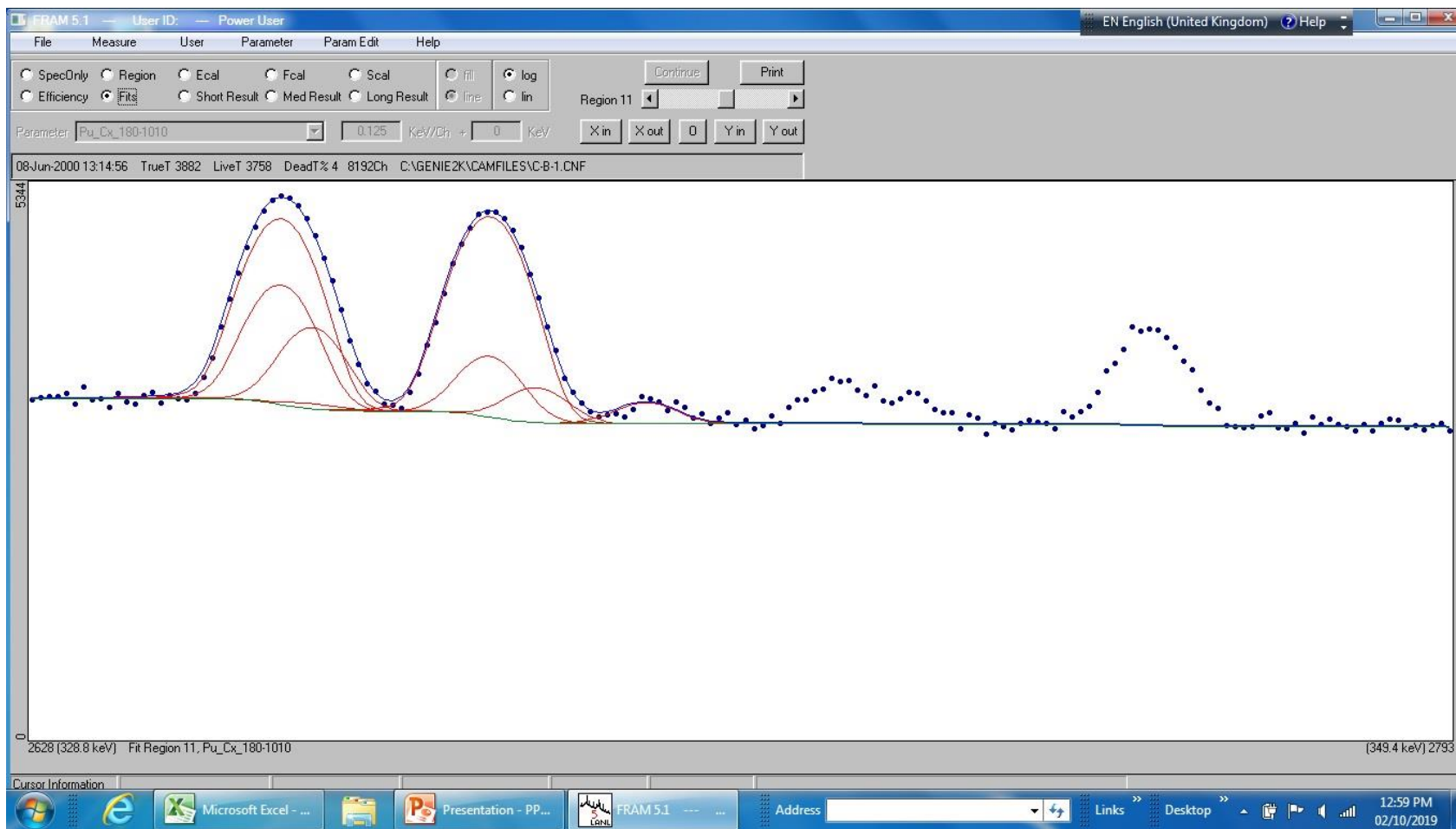
Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

FRAM. Эффективность как функция энергии (опция)



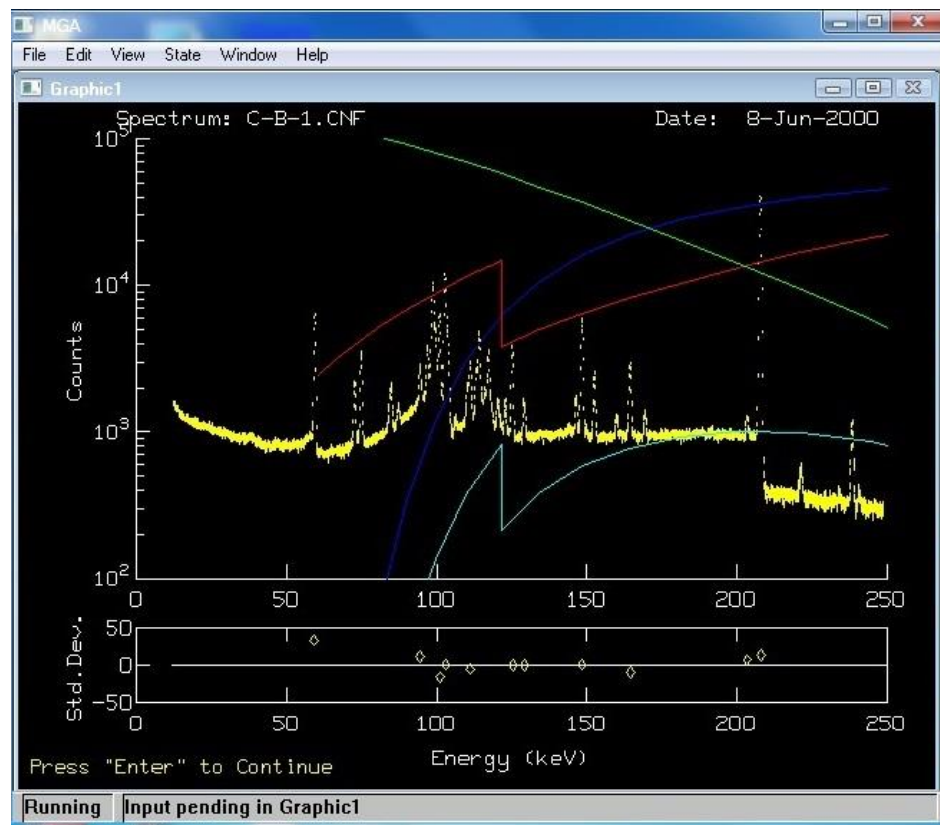
Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

FRAM. Участок спектра в области 300-350 кэВ с данными подгонки



Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

MGA. Исходный спектр с функциями поглощения и эффективности



Cd+ Fe

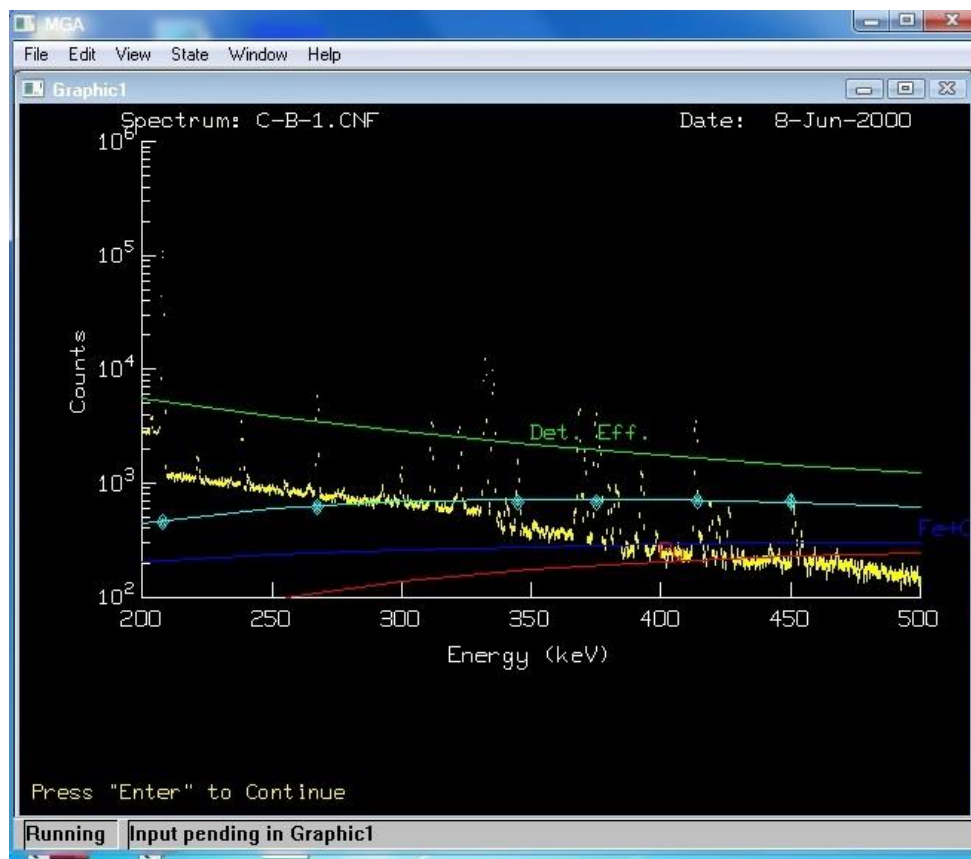
Pu

Эффективность
детектора

Полная
эффективность

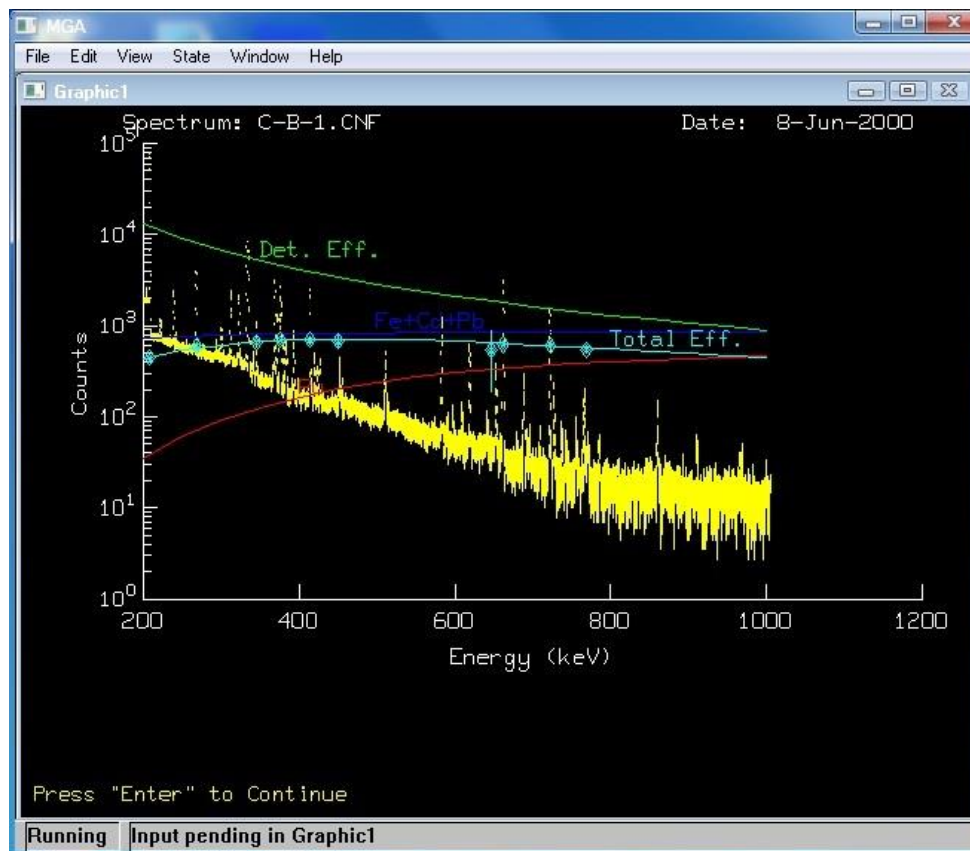
Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

MGA. Спектр функции эффективности в области энергий 200-500кэВ



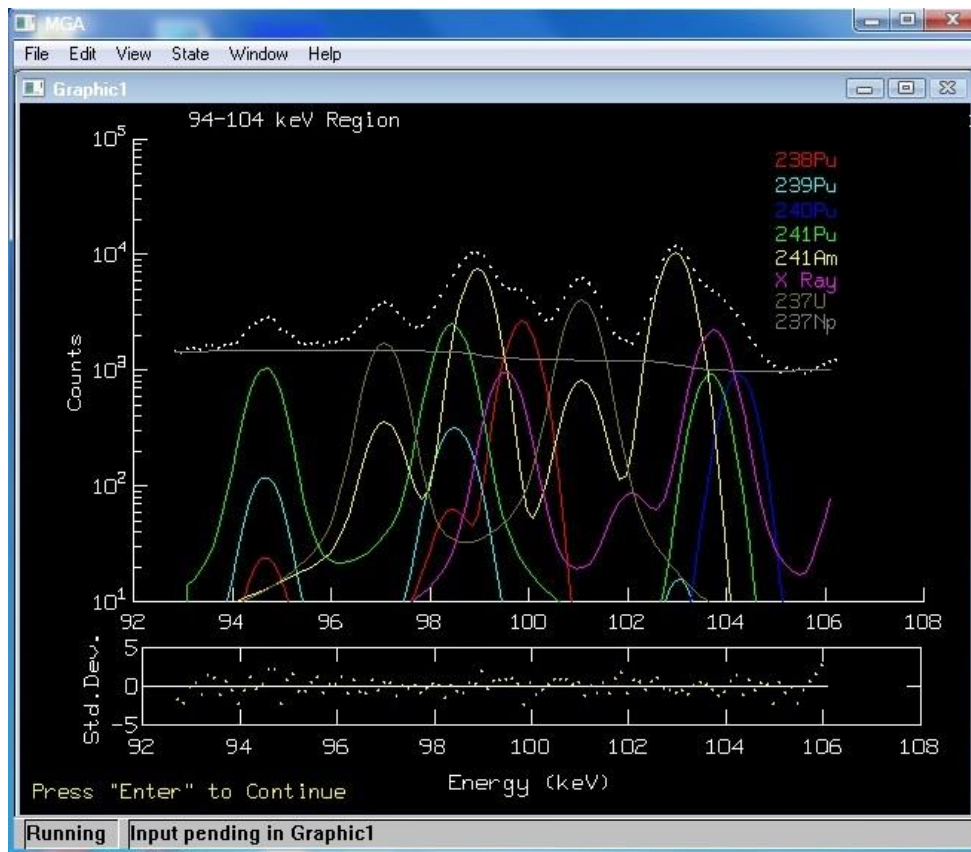
Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

MGA. Спектр функции эффективности в области энергий 200-1000кэВ



Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

MGA. Спектр с подгонкой пиков в области энергий 90-110кэВ



Сравнение обработки гамма спектра плутония по программам SpectraLine, FRAM и MGA

MGA. Отчет по обработке спектра. Дано сравнение с сертификатом.

```

MGA
File Edit View State Window Help
Graphic1

Spec. ID: C-B-1.CNF          LT: 62.6 Mins DT: 3%
Sample ID: C-B-1           Detector:      Total Counts: 2.985E+06

PU g/cm2 = 0.6881   CD thickness = 1.69          FWHM at 122 keV = 720 eV
QFIT = 1.26        Gain =125.054 eV/ch                    at 208 keV = 814 eV
NQFIT= 1.021
ISOTOPIC ANALYSIS AT
RELATIVE  %  %*  MEAS. DATE  DECLARED DATE  SPECIFIC POWER
ABUNDANCE ERR  ERR  WT.PCT.  %ERR  WT.PCT.  %ERR  (MILLIWATTS/GM)
Pu238 = 0.024464  1.7  2.1  1.48144  1.93  1.48144  1.93  8.40823
Pu239 = 1.000000  1.3  0.0  60.55595  1.24  60.55595  1.24  1.16800
Pu240 = 0.453889  4.2  4.3  27.48566  3.08  27.48566  3.08  1.94664
Pu241 = 0.072932  1.9  2.2  4.41646  2.15  4.41646  2.15  0.15069
Pu242 = (Declared) 6.0605  ( 1)  6.0605  ( 1)  0.00695
Am241 = 0.133915  0.7  1.2  8.10935  1.36  8.10935  1.36  9.26088
Np237 = 0.1778  3.34
*=Error in Ratio (1 Sigma Error) TOTAL= 20.941 +/-1.09%
Thorium activity detected.

237U Separated > 10 Days before Measurement.
241Am Separated About 21.647 +/-0.354 Years before Measurement.

Pu-240 effective = 41.40 (at meas. date) 41.40(at Decl. date) +/- 2.21%

Press "Enter" to Continue
Running Input pending in Graphic1
    
```

Изотоп	Декларация	MGA	Отклонение, %
Pu-238, wt%	1.4352	1.48144	3.22
Pu-239, wt%	61.3043	60.55595	-1.22
Pu-240, wt%	26.9010	27.48566	2.17
Pu-241, wt%	4.2990	4.41646	2.73
Pu-242, wt%	6.0605	6.0605	
Am-241, wt%	8.3437	8.10935	-2.81

Гамма спектры сертифицированных образцов

- ✓ Основным источником спектров являлась библиотека Объединенного исследовательского центра Европейской Комиссии и спектры стандартных образцов МАГАТЭ – всего более 1000
- ✓ Все образцы имеют сертификаты изотопного состава
- ✓ Спектры для тестирования разбиты на группы:
 - Уран - по обогащению: <0.7%, природный, 0.7-2 %, 2-5%, 5-20%, 20-35%, 35-60% и 60-90%, >90%
 - Плутоний - по выгоранию: низкое 70%-90%, среднее 55%-70%, высокое содержание плутония-239 (~99%)
 - МОХ – по отношению уран/плутоний: 1 - 2, 2 - 3, 3 - 4, 4 – 10, 10 – 20

Сравнение результатов обработки спектров урана

- ✓ В таблицах приведены отклонения вычисленных значений от данных сертификата

Планарные детекторы

Программа	U-234		U-235	
	ср откл.,%	ср кв откл, %	ср откл.,%	ср кв откл, %
MGAU	-29.3	37.5	0.1	3.9
SpectraLine	-5.6	18.0	-0.9	3.3
FRAM	-5.5	13.7	1.9	3.4

Коаксиальные детекторы

Программа	U-234		U-235	
	ср откл.,%	ср кв откл, %	ср откл.,%	ср кв откл, %
MGAU	-11.9	25.3	5.3	10.6
SpectraLine	-6.3	14.4	2.4	9.3
FRAM	12.3	24.8	7.1	14.7

Сравнение результатов обработки спектров плутония

Планарные детекторы

Изотоп	SpectraLine		FRAM		MGA	
	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%
Pu-238	0.03	4.87	-8,14	23.98	2.97	18.14
Pu-239	-0.83	1.57	0.44	1.12	-0.05	0.56
Pu-240	-0.606	10.35	-5.99	14.33	3.08	4.83
Pu-241	3.103	2.83	1.64	1.96	1.61	4.47
Am-241	-2.52	2.70	-0.53	1.83	-0.69	1.78

Коаксиальные детекторы

Изотоп	SpectraLine		FRAM		MGA	
	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%
Pu-238	-3.74	3.66	30.37	79.59	-3.22	25.75
Pu-239	-1.24	2.46	1.89	3.70	-0.53	0.94
Pu-240	4.26	9.15	-10.47	24.26	4.80	12.77
Pu-241	1.25	2.78	1.49	6.03	5.71	9.55
Am-241	-2.46	2.98	0.92	4.57	-0.65	2.05

Сравнение результатов обработки спектров МОХ

Планарные детекторы

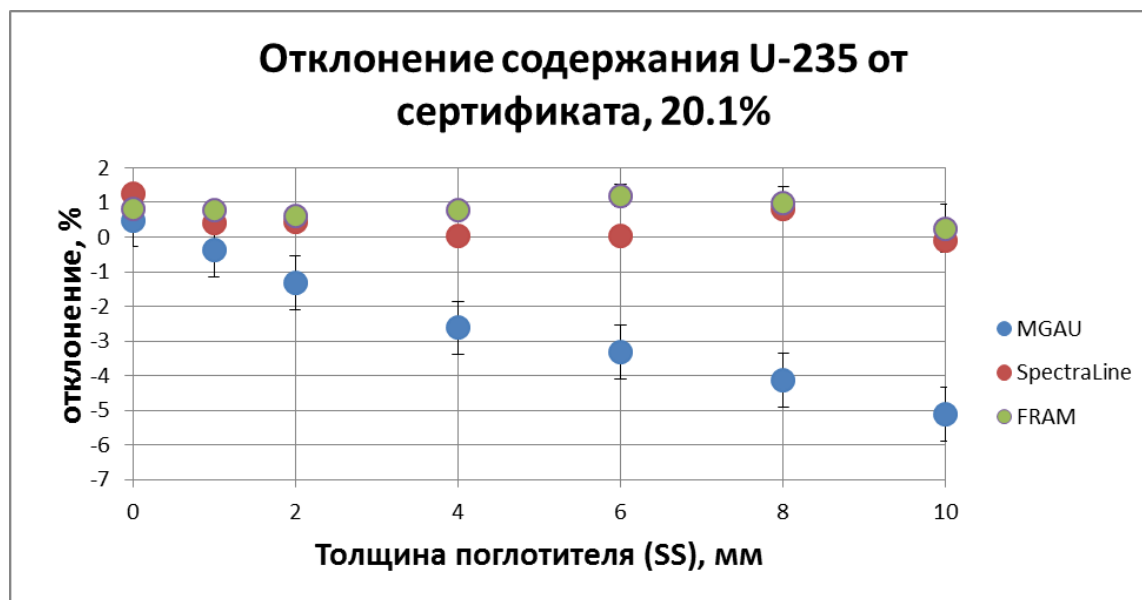
Изотоп	SpectraLine		FRAM		MGA	
	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%
Pu-238	-0.17	4.17	-0.08	3.20	-0.31	2.67
Pu-239	-0.74	1.78	0.95	5.00	-0.02	0.88
Pu-240	2.35	5.12	-1.99	13.78	0.05	2.29
Pu-241	-1.48	4.06	-1.66	1.98	-0.62	3.06
Am-241	0.21	6.96	2.43	9.31	2.26	8.13
U-235/Pu	0.08	29.5	8.07	25.2	-2.52	9.54

Коаксиальные детекторы

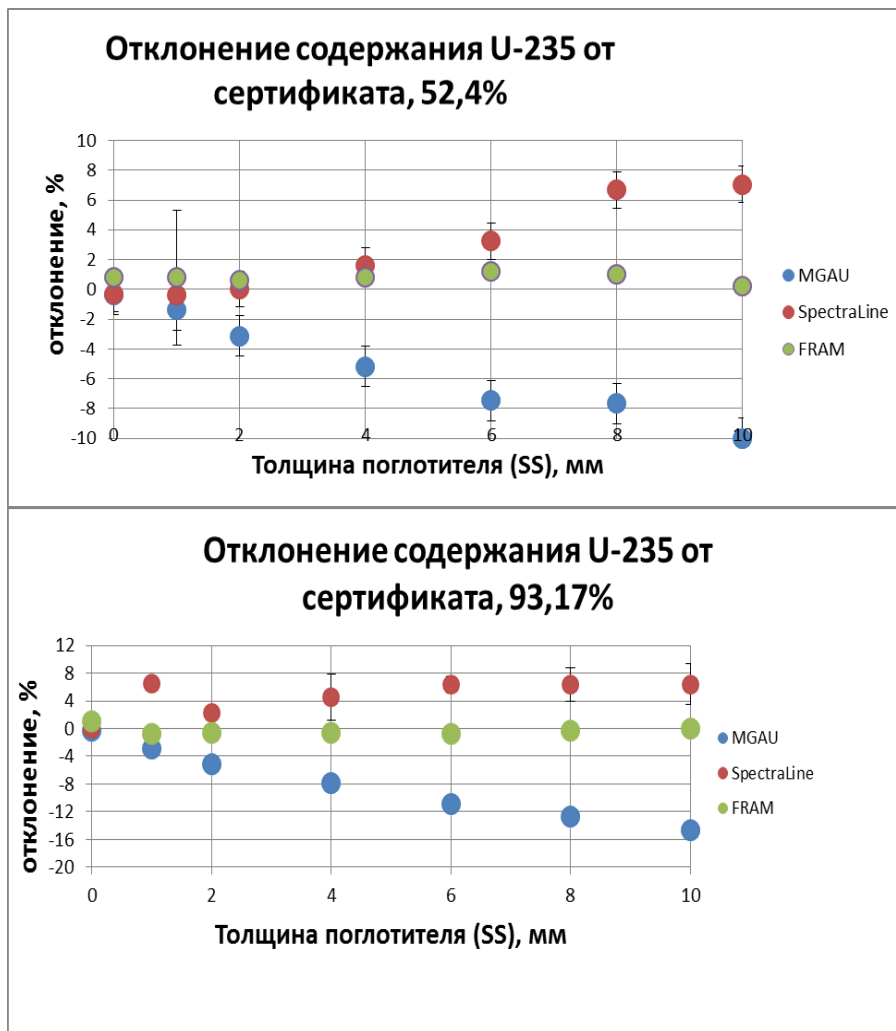
Изотоп	SpectraLine		FRAM		MGA	
	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%	ср откл.,%	ср кв откл.,%
Pu-238	-6.80	8.46	0.10	12.21	3.62	16.20
Pu-239	0.66	1.28	0.17	3.59	-0.00	1.22
Pu-240	-2.17	4.34	-0.01	11.08	-0.55	4.93
Pu-241	1.15	5.01	-1.80	3.22	-1.64	5.36
Am-241	-0.95	8.93	-1.12	9.06	0.45	10.09
U-235/Pu	16.89	22.16	12.62	21.70	-19.6	13.67

Сравнение результатов обработки спектров экранированных образцов урана

- ✓ Тестирование влияния экранирования образцов урана на результаты обработки гамма спектров было проведено на спектрах образцов с содержанием урана – 235 20,1%, 52,4% и 93,17%. Толщина поглотителя из нержавеющей стали между образцом и детектором составляла 0мм, 1мм, 2мм, 4мм, 6мм, 8мм и 10мм.



Сравнение результатов обработки спектров экранированных образцов урана (обог. 52% и 93%)



Выводы

- ✓ Тестирование SpectraLineUltimate в широком диапазоне изотопных составов урана и плутония, различных типов детекторов и условий измерения показало, что SpectraLine не уступает в точности результатам обработки по программам, используемым в МАГАТЭ
- ✓ Для измерения экранированных образцов урана и плутония возможны дальнейшие улучшения результатов обработки