

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПОГРЕШНОСТИ ИЗМЕРЕНИЙ ОБОГАЩЕНИЯ УРАНА МЕТОДОМ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОГО АНАЛИЗА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ КОДА MGAU.

Горобец А.К., Ермакова А.В., Теллин А.И.
ОАО "ГНЦ НИИАР", г.Димитровград

1. ВВЕДЕНИЕ

Измерение изотопного состава урана неразрушающим методом гамма-спектрометрического анализа с использованием программного кода MGAU является одним из способов, применяемых в процедурах учета и контроля ядерных материалов (ЯМ) для подтверждения соответствия их характеристик данным, декларируемым в учетных документах. В качестве подтверждаемой характеристики ЯМ, определяемой в измерениях, обычно служит обогащение урана (массовая доля ^{235}U в уране). Решение о соответствии обогащения урана в проверяемых единицах ЯМ декларируемым данным принимается, исходя из оценки значимости расхождения результата измерения и паспортного значения обогащения урана с учетом погрешности измерений. При этом необходимым условием принятия правильного решения с гарантированным уровнем надежности является корректная оценка погрешности измерений, характеристики которой должны быть установлены в результате метрологической аттестации методики измерений в применении к конкретным видам единиц ЯМ.

Сфера применения подтверждающих измерений с использованием кода MGAU в процедурах учета и контроля ЯМ на установках ГНЦ НИИАР включает широкое разнообразие инвентарных единиц ЯМ, которые различаются как по составу урансодержащих материалов, так и по виду их упаковки. К ним относятся топливные сборки опытных реакторных установок, контейнеры, содержащие уран различного химического и изотопного состава в балк-форме, а также экспериментальные изделия, используемые для проведения исследовательских работ. Обогащение урана, содержащегося в измеряемых инвентарных единицах, лежит в диапазоне от 0.5% до 90% ^{235}U . Для определения процедуры измерений, обеспечивающей требуемый уровень точности результатов в применении к различным типам инвентарных единиц ЯМ, была спланирована и выполнена программа метрологических испытаний с целью экспериментальной оценки погрешности измерений массовой доли ^{235}U в уране MGAU-методом и ее зависимости от различных влияющих факторов. Испытания были проведены в рамках контрактной работы по программе российско-американского сотрудничества в совершенствовании учета и контроля ядерных материалов.

В данном докладе представлены основные результаты проведенных испытаний.

2. ПРОГРАММА ИСПЫТАНИЙ

Испытания проводились с использованием двух наборов сертифицированных стандартных образцов изотопного состава урана [1,2], перекрывающих диапазон значений обогащения урана от 0.5% до 89.9% ^{235}U . Первый из них включает 8 образцов металлического урана, второй – 5 образцов, содержащих гранулированный диоксид урана различного обогащения. Образцы представляют собой капсулу из нержавеющей стали, которая содержит слой уранового материала диаметром 52 мм и толщиной, обеспечивающей "квазибесконечную" толщину для гамма-излучения ^{235}U с энергией 185.7 кэВ (2.6 мм металлического урана или 8 мм диоксида урана). С одной из сторон капсула имеет тонкую стенку с калиброванной толщиной 0.48 мм. Аттестованные паспортные данные об изотопном составе урана в образцах приведены в таблицах 1 и 2.

Таблица 1. Паспортные данные об изотопном составе урана в стандартных образцах металлического урана

Идентификатор образца	Массовая доля изотопов урана, %масс			
	$^{235}\text{U}/\text{U}$	$^{234}\text{U}/\text{U}$	$^{236}\text{U}/\text{U}$	$^{238}\text{U}/\text{U}$
ОУМ.005	0.471 ± 0.006	0.003 ± 0.001	—	99.526 ± 0.005
ОУМ.007	0.685 ± 0.010	0.006 ± 0.001	—	99.309 ± 0.009
ОУМ.019	1.935 ± 0.013	0.013 ± 0.001	0.004 ± 0.001	98.048 ± 0.012
ОУМ.049	4.870 ± 0.023	0.033 ± 0.003	0.022 ± 0.001	95.075 ± 0.016
ОУМ.119	11.899 ± 0.068	0.081 ± 0.006	0.034 ± 0.002	87.986 ± 0.027
ОУМ.26	26.061 ± 0.039	0.185 ± 0.016	0.088 ± 0.004	73.666 ± 0.029
ОУМ.60	60.041 ± 0.150	0.559 ± 0.017	0.085 ± 0.004	39.315 ± 0.047
ОУМ.90	89.915 ± 0.162	0.898 ± 0.025	0.211 ± 0.016	8.976 ± 0.050

Таблица 2. Паспортные данные об изотопном составе урана в стандартных образцах диоксида урана

Идентификатор образца	Массовая доля изотопов урана, %масс			
	$^{235}\text{U}/\text{U}$	$^{234}\text{U}/\text{U}$	$^{236}\text{U}/\text{U}$	$^{238}\text{U}/\text{U}$
ОУ.004	0.426 ± 0.003	0.003 ± 0.001	0.004 ± 0.001	99.567 ± 0.002
ОУ.037	3.651 ± 0.021	0.039 ± 0.001	0.015 ± 0.001	96.295 ± 0.019
ОУ.21	21.281 ± 0.034	0.241 ± 0.002	0.074 ± 0.001	78.404 ± 0.020
ОУ.49	49.480 ± 0.050	0.563 ± 0.003	0.170 ± 0.001	49.787 ± 0.005
ОУ.88	87.830 ± 0.035	1.002 ± 0.001	0.298 ± 0.002	10.870 ± 0.005

Характеристики погрешности определения массовой доли ^{235}U в уране оценивали по результатам многократных измерений стандартных образцов, которые выполняли с использованием двух гамма-спектрометрических систем UPuInspector и InSpector-2000, включающих в своем составе однотипные планарные HPGe-детекторы GL0515R, но различающихся по типу многоканальных анализаторов импульсов (аналоговый ИМСА 1200 и цифровой Inspector 2К, соответственно). В качестве прикладного программного обеспечения в измерительных системах использовалась версия 2.2 кода MGAU, работающего под программной оболочкой Genie-2000.

План испытаний включал варьирование основных факторов, влияющих на погрешность измерений:

1) Время набора гамма-спектра. (С этой целью каждое измерение выполнялось в режиме последовательного накопления спектра в течение 600 с, 1200 с и 1800 с "живого" времени счета.)

2) Толщина стенки контейнерной упаковки. (Изменение толщины имитировалось с помощью пластин из нержавеющей стали калиброванной толщины, которые помещались между детектором и измеряемым образцом.)

3) Фоновые условия измерений. (Уровень фонового высокоэнергетического гамма-излучения, соответствующий входной скорости счета около 700 с^{-1} , которая перекрывает значения фоновых уровней скорости счета, типичных для условий измерений в хранилище ЯМ, имитировался с помощью гамма-источников ^{137}Cs и ^{60}Co , помещаемых вблизи детектора.)

Измерения образцов выполнялись сериями, каждая из которых включала два или три повторных измерения в отсутствии фона, а также одно или два измерения в условиях внешнего фонового гамма-излучения. Каждым из спектрометров было выполнено от 10 до 12 серий измерений каждого образца при различных значениях толщины фильтра, имитирующего стенку контейнерной упаковки.

Общий объем измерений в испытаниях составил около четырех тысяч измерений.

3. АНАЛИЗ РЕЗУЛЬТАТОВ ИЗМЕРЕНИЙ

Обработка и анализ результатов выполненных измерений включали следующие этапы:

- 1) Предварительный статистический анализ экспериментальных данных.
- 2) Определение значений дисперсии результатов, характеризующих случайную погрешность измерений.
- 3) Сравнительный анализ результатов измерений для оценки значимости влияющих факторов.
- 4) Анализ зависимости случайной погрешности измерений от влияющих факторов.
- 5) Анализ зависимости систематической погрешности от влияющих факторов.

3.1. Предварительный анализ экспериментальных данных

На этапе предварительной обработки проводился статистический анализ массивов данных, представляющих результаты измерений массовой доли ^{235}U в уране для каждого образца при фиксированном наборе влияющих факторов (измерительная система, толщина слоя нержавеющей стали, отсутствие или наличие фона, время набора гамма-спектра). Анализ включал проверку гипотезы о соответствии распределения результатов измерения нормальному закону и исключение грубых выбросов (анормальных результатов). Тест на нормальность массивов данных (выборок) с числом степеней свободы от 15 и более проводился с использованием составного критерия по ГОСТ 8.207 [3] при уровне значимости критерия 5%. Для проверки на нормальность выборок с меньшим числом степеней свободы использовался *W*-критерий [4]. Проверка на выбросы максимального и минимального значений в выборке проводилась с использованием критерия Граббса по ГОСТ Р ИСО 5725-2 [5].

3.2. Оценивание случайной погрешности измерений

Для оценки случайной составляющей погрешности измерений определяли три значения выборочных дисперсий, характеризующих прецизионность измерений. Первое из них представляет дисперсию результатов относительно их среднего значения в выборках после предварительного анализа. Два других определяли по результатам измерений образцов в сериях, содержащих группы повторных измерений, как дисперсии результатов измерений в условиях сходимости (повторяемости) и воспроизводимости. Дисперсии сходимости и воспроизводимости результатов измерений определяли по ГОСТ Р ИСО 5725-2. Их анализ позволил сделать вывод о статистической незначимости межгрупповой дисперсии в сериях выполненных измерений. Поэтому в качестве экспериментальной оценки случайной погрешности измерений, как в условия повторяемости, так и воспроизводимости измерений, использовали вычисленные значения среднеквадратичного отклонения (СКО) в выборках результатов измерений.

Сравнительный анализ результатов измерений, выполненных с использованием двух измерительных систем, показал, что средние значения и дисперсии в выборках данных измерений гамма-спектрометрами UPuInSpector и InSpector-2000, в которых используются однотипные детекторы, различаются незначимо. (Статистические гипотезы о равенстве средних значений и однородности дисперсий в выборках проверялись с использованием критериев Стьюдента и Фишера, соответственно [6].) В связи с этим для

дальнейшего анализа использовались их средневзвешенные значения, вычисленные по двум выборкам.

3.3. Анализ экспериментальных оценок случайной погрешности измерений

Экспериментально определенные оценки СКО в выборках результатов измерений использовались для анализа зависимости случайной составляющей погрешности измерений от влияющих факторов. Одной из задач анализа являлось определение диапазонов обогащения урана, в пределах которых случайная погрешность может быть охарактеризована простой функциональной зависимостью от обогащения, либо константой, при аттестации методики измерений. С этой целью был проведен анализ зависимости от обогащения значений СКО в выборках результатов измерений, полученных при фиксированных значениях влияющих факторов. Установлено, что для адекватного описания этой зависимости линейной функцией диапазон обогащений урана следует разделить по меньшей мере на два поддиапозона: от 0.5% до 12% и от 12% до 90% ^{235}U . Параметры линейной функции в этих диапазонах определялись методом наименьших квадратов. С учетом нормального распределения исходных данных для определения веса каждого из экспериментальных значений S среднеквадратичного отклонения использовалась оценка его неопределенности, вычисляемая как

$$\sigma_S = S/\sqrt{2f}, \quad (1)$$

где f – число степеней свободы.

Данные обработки методом наименьших квадратов показали, что в диапазоне обогащений 12÷90% ^{235}U определяемые значения свободного члена линейной функции близки к нулю (не превышают уровня погрешности их определения). Из этого следует, что в этом диапазоне относительная случайная погрешность измерений может быть охарактеризована постоянной величиной.

Зависимость относительной случайной погрешности измерений от обогащения урана при толщине $D=2$ мм стальной стенки и времени набора гамма-спектра 600 с, 1200 с и 1800 с показана на рисунке 1. В качестве оценок неопределенности для экспериментальных данных на рисунке указаны значения неопределенности, вычисленные по формуле (1) и нормированные на соответствующие значения обогащения урана. Видно, что относительная погрешность измерений мало меняется в диапазоне обогащений 12÷90% ^{235}U и резко возрастает с уменьшением обогащения в диапазоне 0.5÷12%. Очевидно, что в диапазоне малых значений обогащения урана (<1% ^{235}U) более предпочтительна характеристика случайной погрешности измерений в абсолютных значениях (в % ^{235}U).

Анализ зависимости случайной погрешности измерений от основных влияющих факторов позволил сделать следующие выводы:

1) Зависимость случайной погрешности от времени t набора гамма-спектра хорошо описывается зависимостью вида $S \sim 1/\sqrt{t}$. Следовательно, эффект снижения случайной погрешности от увеличения времени набора спектра равнозначен эффекту, который может быть достигнут за счет увеличения числа повторных измерений.

2) Создаваемый в испытаниях уровень фонового гамма-излучения оказывает малое влияние на дисперсию результатов измерения. Наблюдаемое увеличение значений S , обусловленное наличием фона, незначительно превышает уровень погрешности их определения и наиболее заметно в области малых значений обогащения урана.

3) Фактором, наиболее значимо влияющим на погрешность измерений, является толщина слоя стали между урановым материалом и детектором. Возрастание уровня случайной погрешности измерений с увеличением толщины показано на рисунках 2 и 3, где приведены зависимости погрешности от обогащения урана в диапазонах 0.5÷12% и 12÷90% ^{235}U , соответственно.

Следует отметить, что проведенные испытания не включали исследование зависимости погрешности измерений от таких факторов, как размеры образца и поверхностная плотность урана. В испытаниях использовались образцы размером, более чем в два раза превышающим диаметр коллиматора детектора, с поверхностной плотностью урана около 5 г/см^2 . При этом имеющийся опыт измерений образцов с габаритами меньше диаметра коллиматора свидетельствует о значительном возрастании погрешности измерений с уменьшением размеров образцов, прежде всего из-за уменьшения статистики счета в гамма-спектрах, набираемых за фиксированное время счета.

Очевидно, что многообразие факторов, влияющих на погрешность измерений, затрудняет использование на практике так называемых "приписанных" значений погрешности, которые обычно устанавливаются при аттестации методики измерений. Поэтому представляет интерес возможность использовать для оценки неопределенности результата измерения значений погрешности, вычисляемых кодом MGAU. С этой целью был проведен сравнительный анализ полученных экспериментальных оценок СКО результатов измерений и оценок погрешности их определения, вычисляемых кодом. Анализ показал, что в условиях воспроизводимости измерений наблюдаемый разброс значений погрешности, вычисляемых кодом, во много раз меньше неопределенности полученных оценок СКО, что позволяет характеризовать вычисляемую кодом погрешность ее средним значением. На рисунке 4 приведены отношения экспериментальных оценок СКО к соответствующим средним значениям погрешности, вычисляемой кодом, в выборках результатов измерений при различных значениях толщины стальной стенки и времени набора гамма-спектра. В диапазоне обогащений урана от 3% до 60% ^{235}U экспериментальные оценки СКО и значения погрешности, вычисляемые кодом, различаются не более, чем в полтора раза. С учетом неопределенности экспериментальных оценок СКО, которые из-за ограниченности объема выборок могут составлять $20 \div 30\%$, можно сделать вывод о том, что для этого диапазона обогащений урана вычисляемые кодом значения погрешности хорошо согласуются с экспериментальными оценками случайной погрешности результатов измерений.

3.4. Систематическая погрешность измерений

Для оценивания систематической составляющей погрешности измерений определяли смещение средних значений результатов измерения от соответствующих паспортных значений обогащения урана в измеряемых стандартных образцах. Статистический анализ экспериментальных данных не обнаружил значимой зависимости определяемых средних значений ни от времени набора гамма-спектра, ни от наличия фонового гамма-излучения. Установлено, что основным фактором, влияющим на систематическую погрешность измерений, является толщина слоя стали между урановым материалом и детектором.

Систематическое смещение результатов измерения от паспортных значений обогащения урана в образцах при различных значениях толщины слоя D показано на рисунке 5. С увеличением толщины слоя величина смещения наиболее заметно возрастает в области высоких значений обогащения. Следует отметить тот факт, что в диапазоне малых и средних значений обогащения наблюдается статистически значимое различие оценок систематического смещения, полученных для образцов металлического урана и диоксида урана. В относительных единицах это различие может составлять до 1% от паспортного значения обогащения.

Зависимости относительной систематической погрешности измерений от толщины D для образцов урана различного обогащения приведены на рисунке 6. Анализ результатов аппроксимации этих зависимостей линейными регрессиями показал, что коэффициенты наклона регрессий могут быть представлены в виде линейной функции от

обогащения урана. Это позволяет предложить для коррекции на систематическое смещение результатов измерения введение поправочного коэффициента в виде

$$K = 1 + A \cdot D \cdot X + \delta, \quad (2)$$

где $A \approx 1.7 \cdot 10^{-4}$,

D – толщина стальной стенки контейнерной упаковки в мм,

X – результат определения кодом MGAU массовой доли ^{235}U в уране (в процентах),

δ – добавочный член поправки, значение которого определяется в зависимости от диапазона измерений обогащения урана.

При коррекции результатов измерения без использования добавочного члена δ все наблюдаемые относительные отклонения скорректированных результатов от паспортных значений обогащения урана лежат в пределах $[-1.8, +1]\%$.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты проведенных испытаний могут быть использованы при разработке процедуры измерений обогащения урана с применением гамма-спектрометров высокого разрешения и программного кода MGAU, обеспечивающей требуемый уровень точности измерений. Методика выполнения измерений должна предусматривать коррекцию результатов определения массовой доли ^{235}U в уране на систематическое смещение в зависимости от толщины стенки упаковочного материала и обогащения урана. Характеристики случайной погрешности измерений следует определять при метрологической аттестации процедуры в применении к конкретным типам единиц ЯМ.

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Сертификат №2800 об утверждении типа государственного стандартного образца (регистрационный номер ГСО 8433-2003, утвержден заместителем Председателя Госстандарта России от 06.11.2003 г.)
2. Сертификат №3383 об утверждении типа государственного стандартного образца (регистрационный номер ГСО 8798-2006, утвержден заместителем Председателя Госстандарта России от 12.07.2006 г.)
3. ГОСТ 8.207-76 ГСИ "Прямые измерения с многократными наблюдениями. Методы обработки результатов наблюдений". Издательство стандартов, Москва, 1979 г.
4. S.S. Shapiro and M.B. Wilk "An Analysis of Variance Test for Normality". *Biometrika*, v.52, 591-661, 1965.
5. ГОСТ Р ИСО 5725-2-2002 "Точность (правильность и прецизионность) методов и результатов измерений. Часть 2. Основной метод определения повторяемости и воспроизводимости стандартного метода измерений". Издательство стандартов, Москва, 2002 г.
6. Гмурман В.Е. "Теория вероятностей и математическая статистика". Издательство "Высшая школа", Москва, 1977 г.

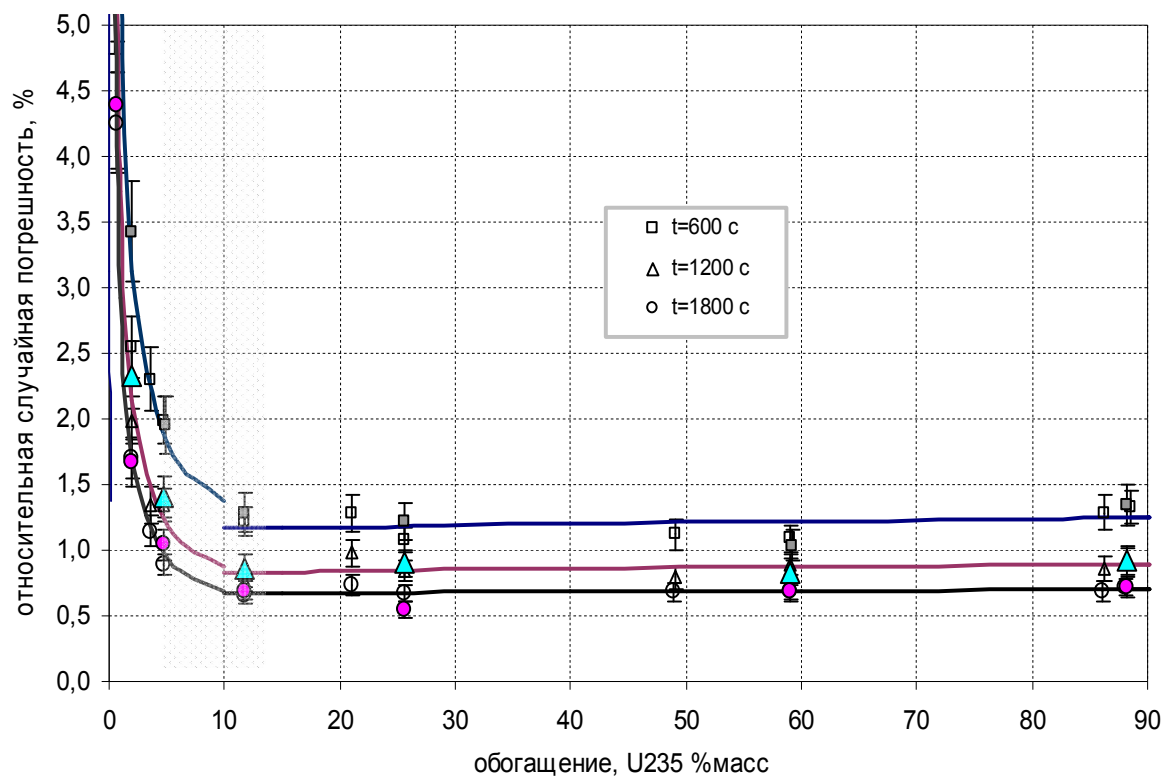


Рис.1. Зависимость относительной случайной погрешности измерений от обогащения урана (толщина стенки $D=2$ мм).

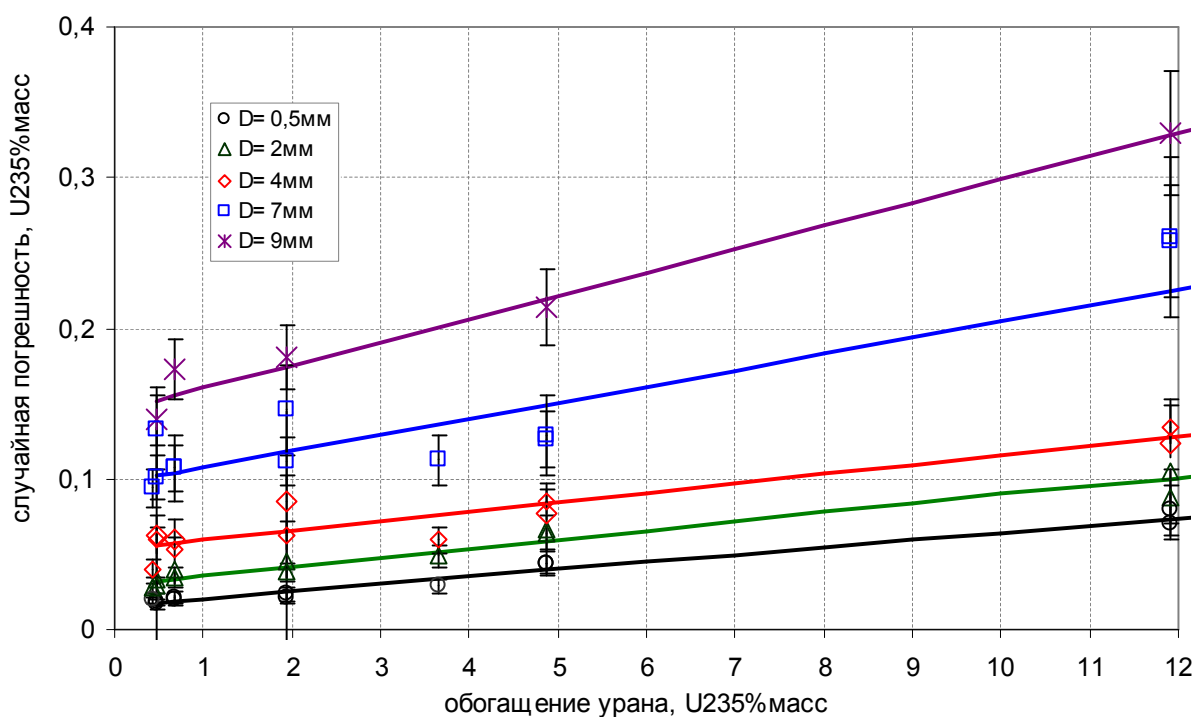


Рис.2. Зависимость случайной погрешности измерений от обогащения урана при различных значениях толщины стальной стенки D в диапазоне обогащений урана до 12% (время набора гамма-спектра 1200 с).

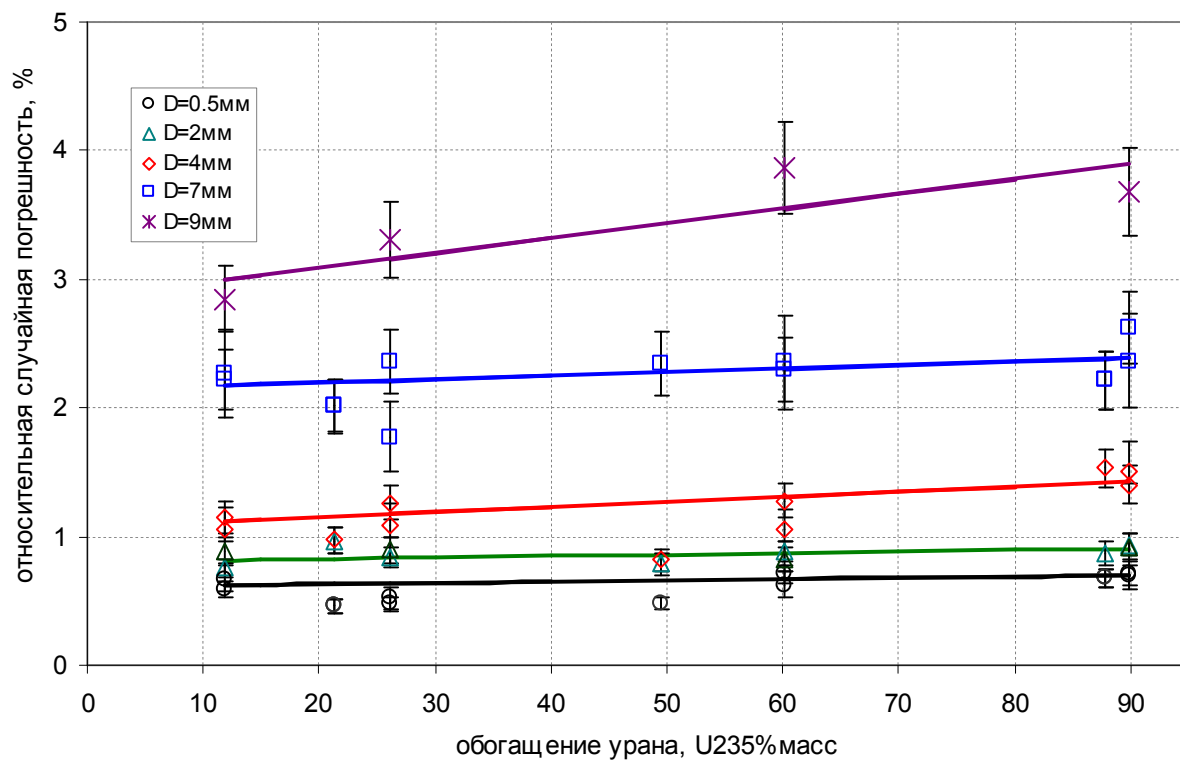


Рис.3. Зависимость случайной погрешности измерений от обогащения урана при различных значениях толщины стальной стенки D в диапазоне обогащений от 12 до 90% (время набора гамма-спектра 1200 с)

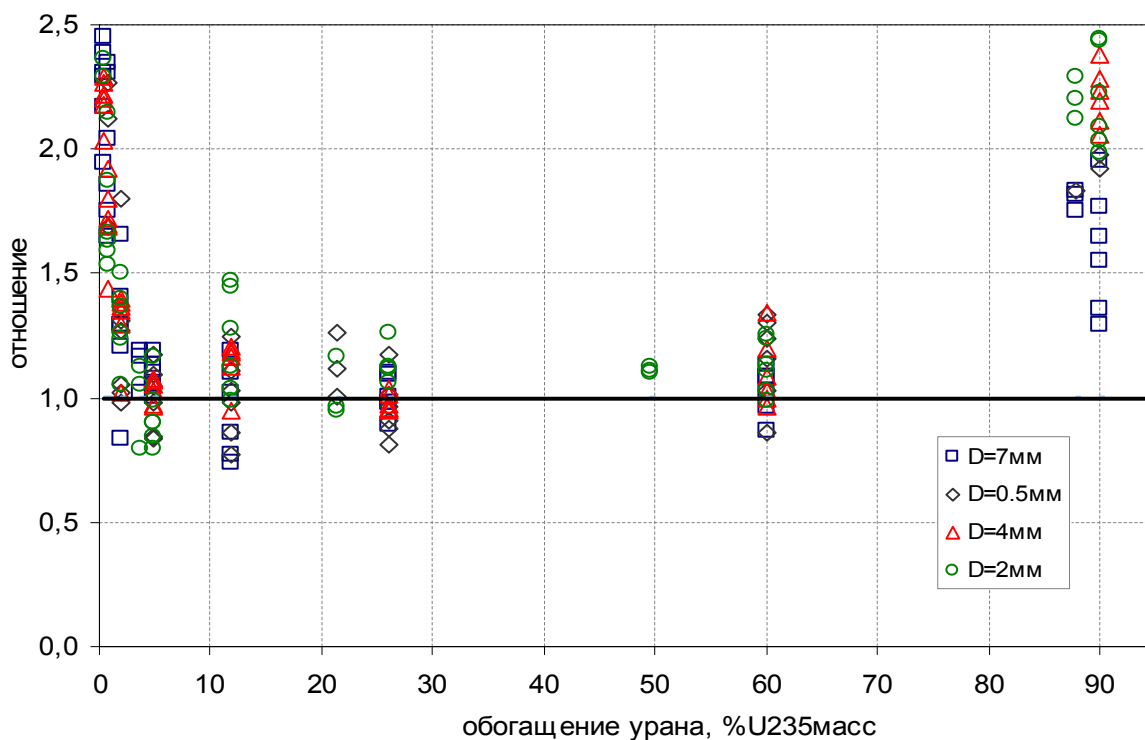


Рис.4. Отношение экспериментально определенных значений случайной погрешности измерений к значениям погрешности, вычисленных кодом.

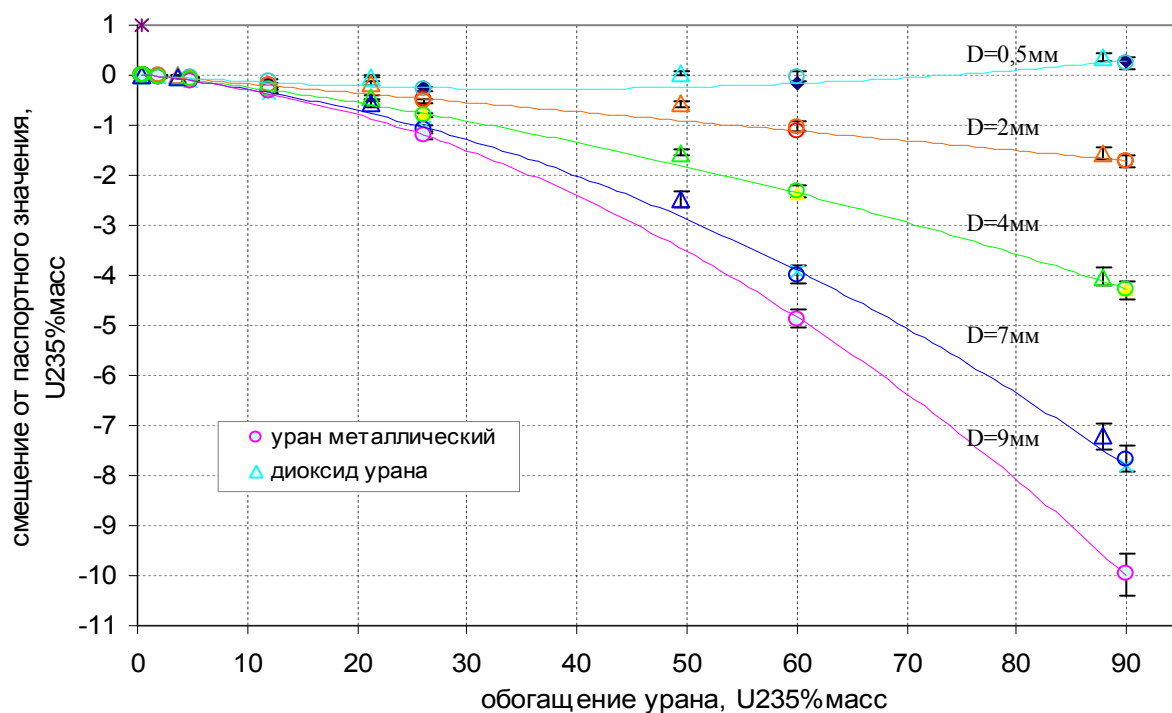


Рис.5. Зависимость систематической погрешности измерений от обогащения урана при различных значениях толщины стальной стенки D .

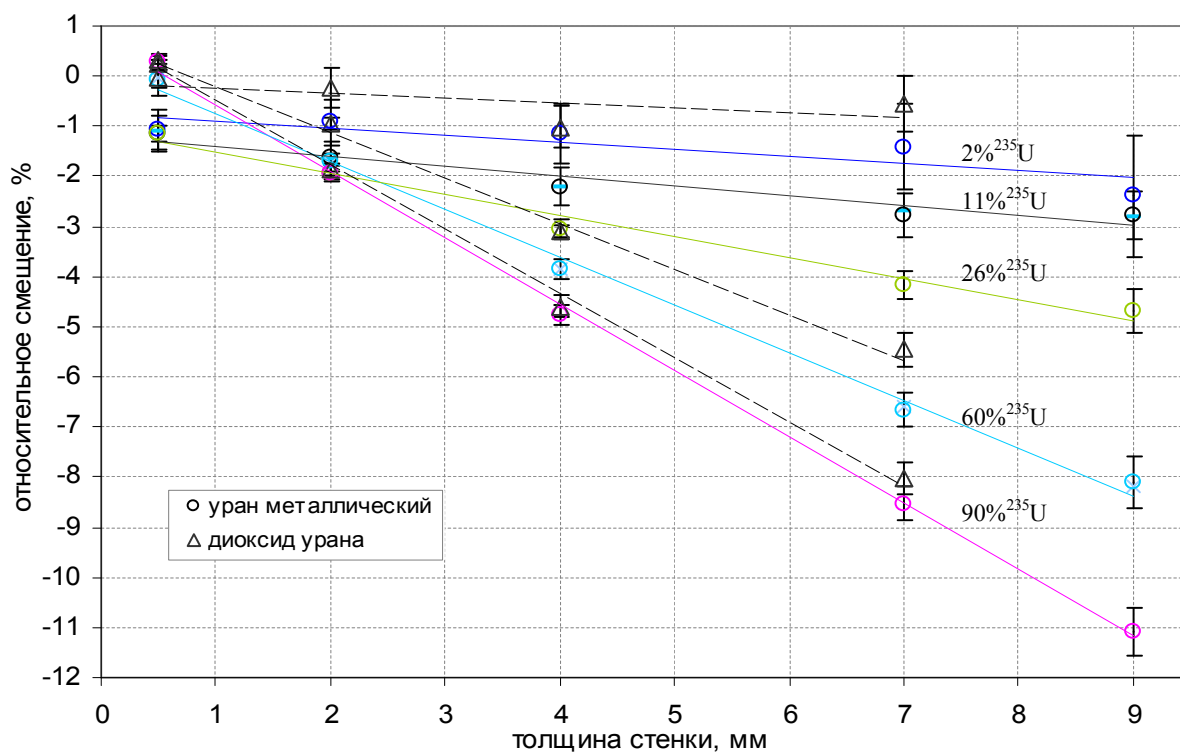


Рис.6. Зависимость относительной систематической погрешности измерений образцов урана различного обогащения от толщины стальной стенки D .