

ЯДЕРНАЯ АРХЕОЛОГИЯ: ПРОВЕРКА ЗАЯВЛЕНИЙ О ПРОИЗВОДСТВЕ РАСЩЕПЛЯЮЩИХСЯ МАТЕРИАЛОВ

Стив Феттер

Контроль за производством делящихся веществ является существенным элементом политики нераспространения. Точно так же отчетность за производство делящихся веществ в прошлом должна стать важным компонентом ядерного разоружения. В этой статье приведены две многообещающие методики, где используются физические доказательства на реакторах и обогатительных установках для проверки прошлого производства плутония и обогащенного урана. В первой методике используется концентрация долгоживущих радионуклидов в постоянных элементах сердцевинны реактора для оценки флюенса нейтронов в различных зонах реактора и тем самым для проверки заявлений о количестве произведенного в реакторе плутония. Во второй методике используется отношение концентраций урана-235 и урана-234 в отходах от процесса разделения для определения того, использовался ли данный контейнер с отходами в производстве малообогащенного урана, пригодного для реакторного топлива, или высокообогащенного урана, который можно применить для ядерного оружия. Обе методики относятся к новой области "ядерной археологии", где мы пытаемся документировать прошлую деятельность по производству ядерного оружия и тем самым создаем крепкую основу для проверяемого ядерного разоружения.

Автор работает в Школе обществоведения Мерилендского университета, Колледж Парк, Мериленд, США.

ВВЕДЕНИЕ

Впервые наступил отлив ядерного распространения - как вертикального, так и горизонтального. Соединенные Штаты и Россия договорились о сокращении своих ядерных арсеналов примерно от 50 000 боеголовок до менее, чем 10 000 до конца нашего века. Столь же важно, что Аргентина, Бразилия, Южная Африка, Ирак и Северная Корея отошли (или их заставили отойти) от ядерного порога.

Важно гарантировать, что эти сокращения оружия и потенциалов его производства являются в максимальной степени обязательными. Важным средством для этого служит "ядерная археология", которая ретроспективно документирует всю деятельность по производству ядерного оружия, особенно производство и размещение делящихся веществ. Делящиеся вещества - высокообогащенный уран (ВОУ) и плутоний, служат необходимыми ингредиентами ядерного оружия и в то же время наиболее сложными для производства и дорогими его элементами. Действительно, основное содержание режима нераспространения должно быть связано с улучшением контроля за доступом к делящимся веществам путем введения охраны и слежения за экспортом. Жизненно важно поставить под международную охрану все делящиеся вещества,

начиная с тех, которые имеются у "пороговых" стран, принявших режим нераспространения, и включая все делящиеся вещества от демонтажа боеголовок ядерными странами.

Международное агентство по атомной энергии (МАГАТЭ) требует от неядерных стран указать нахождение и количество ядерных веществ, когда они принимают режим гарантий, но как можем мы знать, что эта информация раскрывается полностью? Разве не может страна поддаться соблазну приберечь достаточно материала, чтобы изготовить десяток бомб "просто на всякий случай", и не может опасение, что материал утаивается, препятствовать прогрессу ядерного разоружения?

Мировая общественность сейчас столкнулась с такой проблемой в Северной Корее. По утверждениям Северной Кореи она имеет установку, похожую на реактор по производству плутония, но работающую на малой мощности без загрузки новым топливом или без выделения плутония из отработанного топлива. Аналитики западных разведок полны подозрений: некоторые полагают, что Северная Корея уже произвела значительное количество плутония. Возникают также опасения в связи с заявлением Южной Африки о количестве ВОУ, который она произвела в период ядерных поползновений. Если Израиль, Индия или Пакистан

когда-либо присоединятся к Договору о нераспространении ядерного вооружения в качестве неядерных государств, к их заявлениям без сомнения будут относиться с таким же скептицизмом. И так, проблема проверки заявлений по делящимся веществам является центральной для процесса разоружения.

Проверка подобных заявлений будет начинаться с затребования детальной истории производства оружейного урана и плутония и/или предприятий, обладающих теоретическим потенциалом для производства этих веществ. Затем можно изучить оригинальные рабочую документацию производственных предприятий (промышленных реакторов и обогатительных установок), чтобы убедиться, что они согласуются с заявлениями и между собой. Для промышленных реакторов, например, можно затребовать подробности загрузки топлива (начальная степень обогащения, масса и степень выгорания топлива) в зависимости от времени, а также сведения о полной мощности реактора, произведенной энергии, расходах охладителя и перепадах температур и общее описание реактора. Кроме того, можно изучать другую документацию (например, по добыче и обработке естественного урана, его закупкам и переработке, по производству топлива, производству и потреблению энергии, по перерабатывающей деятельности) для получения уверенности в том, что они также согласуются с заявлениями о производстве. Аналогичный набор требований применим и для обогатительных установок.

Однако все документы могут быть фальсифицированы. Хотя и нелегко придумать ложную историю производства, которая внутренне окажется самосогласованной, это под силу группе лиц, очень хорошо знакомых с предприятиями по производству. Подлинность старых документов можно будет по-видимому проверить при помощи стандартных методик¹, но даже подлинные документы могут оказаться неточными (умышленно или по невнимательности). Однако если записи не столь старые (как у большинства "пороговых" стран), то история производства вероятнее всего хранится в компьютерных файлах, которые можно легко и незаметно изменить.

Если, например, страна произвела большое, но существенное количество плутония и пожелала скрыть этот факт, она может выдумать ложную историю производства на реакторе, которая позволила бы считать реактор пришедшим в современное состояние без перезаправки топливом: можно скрыть выработанное топливо и процесс

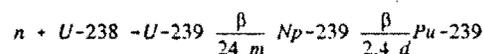
переработки. Аналогично, пожелавшая скрыть производство ВОУ страна могла бы "подделать документы" путем заявления о производстве такого количества низкообогащенного урана (НОУ), на которое требуется эквивалентное количество уранового сырья и работы разделительных установок.

В большинстве случаев заявления будут делаться с добрыми намерениями, которые продемонстрируются видимыми согласованностью и достоверностью представленных документов. Но к заявлениям будут относиться с подозрительностью, а изучения производственных документов может нехватить, чтобы разрешить эти сомнения (они могут даже усилиться). В таких случаях было бы полезным обратиться за помощью к физическим доказательствам.

Вряд ли такие доказательства обеспечат конструктивные характеристики установок, которые можно проконтролировать путем инспекций, поскольку на любом данном производстве можно в разумных пределах представить широкий круг возможных историй деятельности. Скорее, то, что мы ищем, - это как производство работало в прошлом. Во всей оставшейся части статьи изучаются два типа доказательств - наведенная радиоактивность в промышленных реакторах и изотопный состав обедненного урана, - которые могли оказаться полезными при проверке заявлений о производстве плутония и ВОУ.

ПРОВЕРКА ПРОИЗВОДСТВА ПЛУТОНИЯ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ НАВЕДЕННОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ В СЕРДЦЕВИНЕ РЕАКТОРА

Плутоний образуется в ядерных реакторах в основном при поглощении нейтронов в уране-238:



где β означает тип радиоактивного распада с указанием периода полураспада. Вероятность этой реакции оказывается наибольшей для медленных нейтронов. Деление ядер урана-235 в реакторе обеспечивает постоянную подпитку, или "поток" нейтронов.

Созданные в основном для производства плутония реакторы называются промышленными. Эти промышленные реакторы состоят из сборок топлива и вещества поглотителя, погруженных в замедлитель. Реакции деления в топливе образуют нейтроны, которые замедляются и захватыва-

ются поглотителем. Топливо и поглотитель могут быть перемешаны или разделены. При делении урана-235 образуется около 2,4 нейтронов; при равновесном рабочем режиме в среднем один из этих нейтронов вызывает новое деление, 0,4 нейтрона захватываются без деления и примерно один захватывается поглотителем, образуя плутоний со скоростью около одного грамма на мегаватт-день.

Основным типом промышленного реактора служит реактор с графитовым замедлителем, запитываемый природным или слегка обогащенным ураном (СОУ), который одновременно работает и как поглотитель. В большом графитовом сердечнике на равных расстояниях проделаны тысячи или более горизонтальных или вертикальных топливных каналов. Реакторы с тяжелой водой в качестве замедлителя также применяются для получения плутония с использованием либо природного урана, либо СОУ, а также отдельных сборок ВОР и мишеней из обедненного урана, которые подвешены в воде на стальных конструкциях. Поскольку тяжелая вода - более эффективный замедлитель по сравнению с графитом, тяжеловодные реакторы более компактны и обладают более высокими нейтронными потоками по сравнению с графитовыми реакторами.

Небольшая часть нейтронов, образовавшихся при делении, поглотится замедлителем и постоянными структурными компонентами сердцевины реактора, обычно образуя при этом радиоактивные ядра.² Если эти радиоактивные ядра обладают большим периодом полураспада (гораздо большим, чем время существования реактора), произойдет очень мало радиоактивных распадов и концентрация ядер окажется пропорциональной полному числу нейтронов, прошедших через материал (нейтронному "флюенсу"). Таким образом, радионуклиды, образованные при поглощении нейтронов ядрами, естественно имеющимися в составе постоянных компонентов сердцевины реактора, могут дать оценку нейтронного флюенса в данной точке. В сочетании с разумными соображениями о конструкции и работе реактора измерения индуцированных нейтронами радионуклидов в некоторых точках сердцевины могут быть использованы для оценки нейтронных флюенсов и производства плутония.

Отобранные для таких измерений индуцированные нейтронами радионуклиды должны обладать следующими свойствами:

- очень большие периоды полураспада (не менее 100 лет), чтобы оценки полного производства не зависели от времени;

- не должны существовать в природе в значительных концентрациях, чтобы быть уверенным, что они получены в реакторе (например, это условие исключает К-40 и Rb-87);

- не должны быть благородными газами, которые часто утекают из материалов реактора;

- не должны быть продуктами деления, актиноидами или их продуктами распада, поскольку компоненты реактора могут быть загрязнены такими веществами;

- должны получаться в реакциях медленных нейтронов с природными изотопами.

Эти условия весьма ограничительны. Только 67 радионуклидов, не существующих в природе, обладают периодами полураспада более 100 лет; из них два относятся к благородным газам, 23 лежат в области атомных весов 79-166, которые образуются при делении, и 23 принадлежат у актиноидов или продуктам их распада. Девять из остающихся 19 радионуклидов не образуются непосредственно или в качестве продуктов распада при реакциях медленных нейтронов с природными изотопами. Десять оставшихся радионуклидов, удовлетворяющих всем пяти критериям, и элементы, из которых эти радионуклиды образовались в результате реакций медленных нейтронов, приведены в табл.1.

Чтобы оказаться полезными, радионуклиды должны удовлетворить добавочному критерию; элемент, из которого они получаются, должен присутствовать в значительных концентрациях в постоянных компонентах сердцевины реактора. Наиболее распространенными веществами в сердцевине промышленных реакторов служат графит (в графитовых реакторах) и некоторые металлы - сталь, алюминий, сплавы циркония и т.д. (во всех реакторах). В табл.2 приведены концентрации элементов, указанных в табл.1, в образцах графита, который использовался при сооружении первых реакторов в Хэнфорде. В табл.2 приведены также диапазоны концентраций этих элементов в некоторых типах стали, применяемых для реакторостроения.

На первый взгляд С-14 мог бы показаться лучшим радионуклидом для измерений в графите. Но присутствие азота с концентрацией выше одной миллионной (ppm) делает точные измерения нейтронного флюенса невозможными, так как концентрация азота будет изменяться за время существования реактора, а 8 ppm азота образуют столько же С-14, сколько один процент С-13 в углеводе. Кальций-41 и никель-59 представляются более подходящими для измерений, поскольку кальций и

Таблица 1

Перечень пригодных для ядерной археологии радионуклидов¹.

Радионуклиды	Элементы, из изотопов которых эти радионуклиды образуются
Be-10	Бериллий
C-14	Углерод, азот, водород
Cl-36	Хлор, калий
Ca-41	Кальций
Ni-59	Никель
Ni-63	Никель, цинк
Re-186m	Рений
Ir-192m2	Иридий
Pb-205	Свинец
Bi-210m	Висмут

¹ Эти изотопы должны обладать следующими свойствами: (а) период полураспада превышает 100 лет; (б) не существуют в природе в заметных количествах²; (в) не принадлежат к инертным газам; (г) не принадлежат к продуктам деления или распада актиноидов; (д) образуются при реакциях медленных нейтронов с существующими в природе изотопами.

² Be-10, C-14 и Cl-36 существуют в природе в незначительных концентрациях.

никель присутствуют в очень чистом графите и оба имеют большой период полураспада. Количественно эти изотопы образуются лишь при одной реакции. Лучшими кандидатами для измерений в стали кажутся Ni-59 и Ni-63, которые образуются в реакциях с никелем.

В табл. А-2, помещенной в приложении, приведены оценки концентраций этих радионуклидов, которые можно ожидать в графитовых или стальных компонентах сердцевин промышленных реакторов. Надо иметь возможность измерять приведенные в табл. А-2 концентрации, которые занимают диапазон от 10^{-12} до 10^{-4} , без слишком сложных проблем³. Переносные масс-спектрометры измеряют концентрации ниже 10^{-9} (ppb) достаточно хорошо; более крупные приборы могут спуститься гораздо ниже. Концентрации C-14 порядка 10^{-15} стандартно измеряются с высокой точностью⁴.

Хотя концентрации радионуклидов и нейтронные сечения могут быть измерены с точностью в несколько процентов, полная точность оценок нейтронного флюенса и соответствующих оценок производства плутония будет вероятно ограничена неопределенностями в рабочей документации конструкции реактора и компьютерной модели

реактора и составит около 10 %⁵.

Хотя таким путем можно проконтролировать полные нейтронные флюенсы, основная проблема заключается в том, что фактически нет возможности отличить производство плутония от производства других изотопов, например, трития⁶. Избыточные нейтроны, полученные при делении, можно использовать для получения либо Pu-239 (из U-238), либо трития (из Li-6). Трудности возникают в основном для реакторов с дейтериевым замедлителем, которые (по крайней мере, в США) использовались для производства как трития, так и плутония. Можно определить только, совпадает ли заявленное производство обоих веществ в данном реакторе с оцененным нейтронным флюенсом.

ПРОВЕРКА ПРОИЗВОДСТВА ВОУ ПУТЕМ КОНТРОЛЯ НАД КОНЦЕНТРАЦИЕЙ ИЗОТОПОВ В ОТХОДАХ ПРОИЗВОДСТВА

Естественный уран состоит из трех изотопов: U-238, U-235 и U-233 (см. табл.3). Уран-235 - это единственный существующий в природе изотоп, способный поддерживать быструю цепную реакцию

Таблица 2

Концентрации важнейших элементов в образцах графита и стали, которые использовались при строительстве первых реакторов в Хэнфорде.

Элемент	Концентрация (в ppm)	
	Графит ¹	Сталь ²
Бериллий	менее 0,0005	
Углерод	100 %	2000 - 5800
Азот	10 - 100	40 - 190
Кислород		
Хлор	менее 50	
Калий	менее 0,02	1 - 3
Кальций	0,3 - 210	
Никель	0,02 - 2,5	0,5 - 16 %
Цинк	0,06 - 160	
Рений		
Иридий		
Свинец	менее 0,01	
Висмут		2

¹ William Morgan, частное сообщение.
² Приведены данные по шести образцам стали марки SS-316, HT-9 и Ee-1422 из статьи Стива Феттера "The Radiological Hazard of Magnetic Fusion Reaction," Fusion Technology, v. 11(2) March 1987.

деления. Он присутствует в природном уране в весовой концентрации 0,711 %. Процесс обогащения увеличивает концентрацию U-235. Производится уран с несколькими различными концентрациями U-235 для широкого круга задач. Например, в Соединенных Штатах слегка обогащенный уран (около 1 % U-235) использовался в качестве топлива для графитовых реакторов, производящих плутоний, в Хэнфорде; низкообогащенный уран (2-4 % U-235) используется в качестве топлива для коммерческих реакторов на обычной воде; а высокообогащенный уран (90 и более процентов U-235) используется для исследовательских и испытательных реакторов, тяжеловодных промышленных реакторов в Саванна Ривер, морских реакторах и в ядерном оружии.

Оружейный ВОУ обычно имеет 93 % U-235, хотя в делящихся компонентах ядерного оружия могут использоваться и слегка меньшие концентрации. Концентрация U-235 увеличивается от 0,711 до 93 процентов на разделительных установках, где молекулы с более легкими атомами U-235 отделяются от молекул с атомами U-238. Поток естественного урана, входящий в

разделительную установку, называют "загрузкой"; выходящий поток, обогащенный ураном-235, называют "продуктом", а выходящий поток, обедненный U-235, называют "отходами". Отходы остаются за пределами производства, но 1000 кг отходов (содержащих 0,2 % U-235) могут стать результатом получения либо 5,5 кг ВОУ (93 % U-235), либо 220 кг НОУ (3% U-235), либо 640 кг СОУ (1 % U-235).

Использовались различные методики для отделения U-235 от U-238: наиболее часто это были газовая диффузия и газовые центрифуги, а аэродинамическое и электромагнетное разделение использовались более редко. Благодаря тому, что масса U-235 так близка к массе U-238, возрастание концентрации U-235, которое может быть получено в любом процессе, обычно совсем невелико. Поэтому необходимо соединить последовательно сотни ступеней для получения даже низкообогащенного урана⁷. Если подсчитать число ступеней, то можно суметь определить, может ли данная установка произвести ВОУ. К несчастью, установка, способная производить небольшой поток ВОУ, может быть переделана в другую, спо-

Таблица 3

Изотопы естественного урана.¹

Изотоп	Масса	Концентрация		Период полураспада
	а.е.м.	ат. проц.	вес. проц.	лет.
U-234	234,04090	0,0055	0,0054	$2,454 \cdot 10^5$
U-235	235,04391	0,7200	0,7110	$7,037 \cdot 10^8$
U-238	238,05077	99,2745	99,2836	$4,468 \cdot 10^9$

¹ Взято из Edgardo Browne and Richard B. Freestone, Table of Radioactive Isotopes (New York: Wiley, 1986). Обсуждение неопределенностей концентраций U-234 и U-235 в естественном уране приводится ниже.

собную производить большой поток НОУ (и наоборот), а эту переделку можно и не обнаружить.

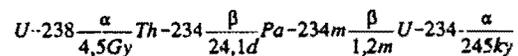
Ключ к тому, чтобы отличить производство ВОУ от производства НОУ, связан с концентрацией самого малораспространенного изотопа U-234 в отходах. Если бы уран содержал только U-235 и U-238, то концентрацию каждого изотопа в загрузке ступени s можно было точно совместить с концентрацией в отходах от ступени $(s+1)$. Это минимизирует работу по разделению, поскольку уран с неравными изотопными концентрациями никогда не смешивается, и отходы не содержат информации о продукте. Подобная подгонка невозможна с тремя изотопами. Если мы совмещаем концентрации U-235 и U-238, то концентрация U-234 в отходах от второй ступени обогащения будет меньше, чем концентрация U-234 в загрузке первой ступени обогащения (и так далее по всему каскаду). Поскольку отходы первой ступени обогащения являются загрузкой первой ступени обеднения более легким изотопом, повышенная скорость разделения U-234 (зависящая от длины секции обогащения) проявится в меньшей концентрации U-234 в конце каскада.

Если различие в концентрациях U-234 достаточно велико, должно оказаться возможным определить, использовался ли данный контейнер с отходами для производства ВОУ или НОУ.⁸ Инспекции отходов могли бы обладать возможностью определить, действительно ли страна, утверждающая, что производила только НОУ, произвела некоторое количество ВОУ. Более того, если все отходы процесса обогащения доступны для инспекции, эта методика может

быть использована для определения полного производства НОУ и ВОУ.

В приложении В показано, как можно подсчитать концентрацию U-234 в отходах в зависимости от концентрации U-235 в продукте и в отходах. На рис.1 показан график зависимости отношения концентраций U-234/U-235 в отходах от степени обогащения U-235 для содержания U-235 в отходах 0,2 и 0,3 процента и загрузки естественным ураном. Обратите внимание, что это отношение на 20-30% выше при сравнении ВОУ с СОУ и на 10-12% выше при сравнении с НОУ - такая разница должна быть легко обнаруживаема⁹.

Однако, все не так просто. Одна проблема связана с тем, что содержание U-234 в естественном уране - это не универсальная константа, как подразумевается в табл. 3. Хотя относительная весовая концентрация U-235 в естественной смеси не меняется от образца к образцу менее, чем на десятую процента¹⁰, концентрация U-234 может меняться на 10 и более процентов¹¹. Чтобы понять, почему так происходит, рассмотрим цепочку распадов, которая приводит к образованию U-234:



Поскольку возраст Земли составляет миллиарды лет, можно ожидать, что относительные концентрации U-234 и U-238 задаются отношением времен полураспада, что дает для концентрации U-234 в естественном уране величину 54,5 ppm. Но периоды полураспада Th-234 и Pa-234m таковы, что более подвижные торий и протактиний могут быть химически отделены от урана. По

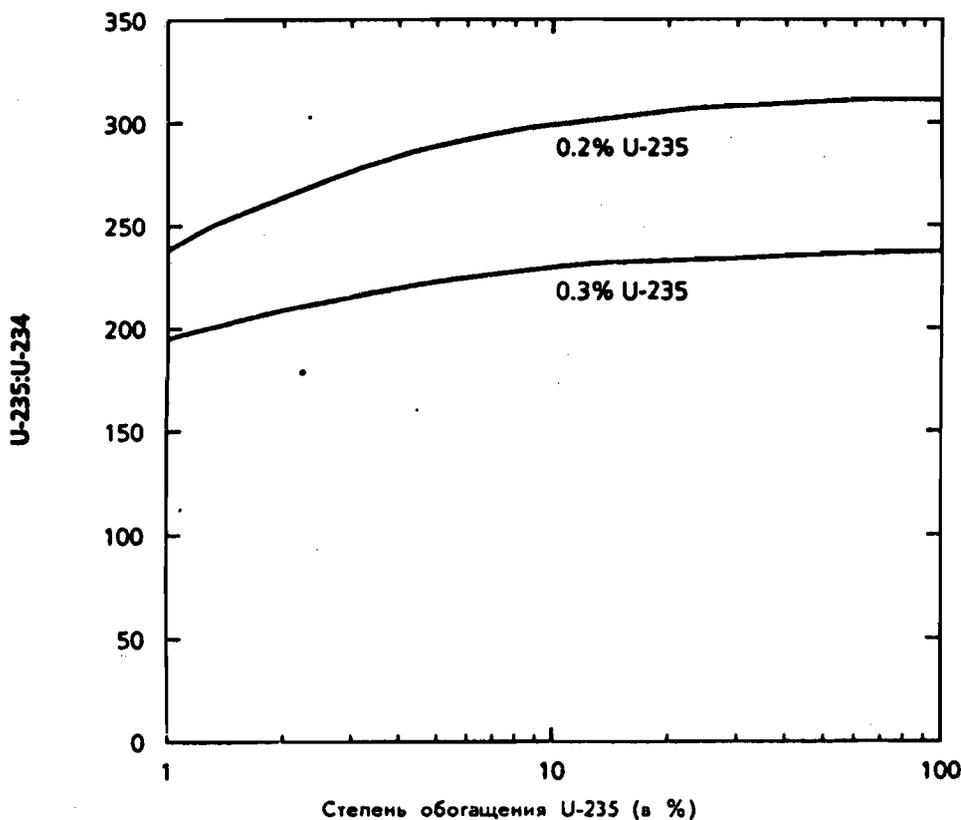


Рисунок 1

Отношение содержания изотопов $U-235$ и $U-234$ в отходах в зависимости от степени обогащения конечного продукта; содержание $U-235$ в отходах принималось равным 0,2 и 0,3 процента.

этой причине отношение активности $U-234/U-238$ составляет $1,14 \pm 0,01$ в океанах и менее единицы в почвах. По данным Смита и Джексона¹², отношение активностей в естественном уране меняется от 0,914 до 0,985 для 16 разбросанных в широких пределах месторождений.

Однако, неопределенности в концентрации $U-234$ не обязательно отвергают применимость этой методики. Если загрузка, использованная для производства ВОУ, была взята из того же месторождения, что и для получения НОУ, как по-видимому и было в случае не столь мощных обогатительных предприятий, тогда отношением $U-235$ к $U-234$ можно пользоваться для различения двух типов отходов. И даже если загрузки

для ВОУ и НОУ поступали из совсем разных месторождений, можно спасти методику путем измерения концентрации $U-234$ в образцах продукта ВОУ или НОУ или путем прямого измерения концентрации $U-234$ в урановых рудах, использованных для загрузки.

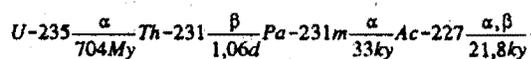
Другая сложность связана с возможностью отвода более одного потока продукта от обогатительного каскада, как это делалось на больших каскадах в Соединенных Штатах. Если, например, НОУ отводится от каскада во время производства ВОУ, то концентрация $U-234$ в отходах примет некоторое промежуточное значение. Без дополнительной информации об операциях в каскаде (например, об относительных величинах

двух получаемых потоков) будет невозможно прийти к заключению о степени обогащения продукта по отходам. Можно, конечно, убедиться, что анализ отходов совпадает с производственной документацией, хотя и другие истории производства могли бы также соответствовать анализу отходов.

Последняя сложность состоит в возможности того, что при загрузке был использован уран из переработанного реакторного топлива.¹³ В этом случае в продукте появятся также другие долгоживущие изотопы урана: U-232, U-233 и U-236. Наиболее важным из них оказывается U-236, который образуется при захвате нейтронов ураном-235. Однако если состав загрузки известен (из документов или по оценкам), не будет проблем в использовании методики, намеченной в приложении В, для оценки степени обогащения.

Возможно наиболее строгим ограничением на использование отходов для определения прошлой обогатительной практики является то, что не все отходы могут оказаться доступными для инспекции. Например, если кому-то известно, какие отходы были получены от производства ВОУ, то их можно скрыть, а производственную документацию (или сводки об энергопотреблении и производстве электричества) фальсифицировать. В США обедненный уран используется для балласта, пуль, компонентов ядерного оружия, стержней-поглотителей для реакторов, хотя на это уходит относительно небольшая часть всех отходов. Скрыть заметную часть отходов будет непростой задачей: например, чтобы утаить 10 % производства ВОУ в США, придется прятать 100 000 тонн обедненного урана. Более того, большие запасы обедненного урана можно обнаружить средствами воздушной радиационной разведки.

Проверка производственной документации может быть облегчена, если датировать отходы для определения года, когда они прошли через каскад. В таком случае фальсификаторам придется изымать отходы, полученные в некий период времени, чтобы физические доказательства совпадали с переправленными производственными записями.¹⁴ Лучшие "часы" обеспечиваются распадом U-235, приводящим к образованию Pa-231 и Ac-227:



Аналогичные "часы" дает распад менее распространенного изотопа U-234 в Th-230.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Подсчет прошлого производства делящихся веществ является существенным элементом всемирного движения к ядерному разоружению. Страны, отошедшие от ядерного порога, могут захотеть показать, что они не производили делящиеся вещества или что все такие вещества поставлены под международную охрану.

Заявления о производстве делящихся веществ в сопровождении подробностей о соответствующих установках и оригиналов производственной документации служат существенными элементами этой задачи, но и заявления, и документы могут быть искажены. Если возникают подозрения, было бы полезным иметь доступ к физическим уликам, которые могут проверить точность заявлений. Утверждение Северной Кореи, что она не производила плутоний, дает яркий пример того типа подозрений, которые могут сопровождать подобные заявления, даже если они дополнены инспекциями и документами.

Когда речь идет о производстве плутония, накопление долгоживущих радионуклидов в постоянных компонентах сердцевины реактора обеспечивает такие улики. Измерения концентрации этих радионуклидов в нескольких десятках точек внутри сердцевины реактора в сочетании с моделью сердцевины могут дать независимую проверку документации. Эта методика кажется достаточно обещающей для того, чтобы серьезно рассмотреть проведение полномасштабной демонстрации на русском или американском промышленном или аналогичном гражданском реакторе.

Проверка производства ВОУ оказывается более сложной, поскольку обогатительные установки использовались для производства урана с разными степенями обогащения. НОУ не годится для бомб, но почти любая установка, способная производить НОУ, теоретически имеет возможность для получения ВОУ. Если страна утверждает, что она производила только НОУ, можно проверить это заявление путем измерения отношения содержаний U-235/U-234 в отходах в предположении, что все отходы доступны для инспекции, а состав загрузки известен. Можно оценить и сроки производства отходов по измерению концентраций продуктов распада изотопов урана, что дает дополнительную информацию, которую можно использовать для проверки правильности производственной документации.

Ядерная археология - это новое поле деятельности с громадным потенциалом для роста, не только охватывающей, но и дале-

ко превосходящей традиционные методики гарантий. Эта статья - только борозда на поверхности нового поля, но я надеюсь, что она станет стимулом для дальнейших исследований, которые помогут странам достигнуть доверия в процессе разоружения.

БЛАГОДАРНОСТИ

Автор хотел бы поблагодарить Фрэнка фон Хиппеля, Джима Пауэлла, Аллена Гроффа, Уилли Хигинботамы и Марвина Миллера за полезные замечания. Финансирование исследований было предоставлено Федерацией американских ученых и Управлением по внеучебным исследованиям Мерилендского университета.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

ПРОИЗВОДСТВО РАДИОНУКЛИДОВ В СЕРДЦЕВИНАХ РЕАКТОРОВ

Накопление радионуклида у при реакции нейтронов со стабильным изотопом x может быть описано следующими уравнениями:

$$\frac{dN_y}{dt} = N_x \sigma_{xy} \phi - N_y \sigma_y \phi - N_y \lambda \quad (A-1a)$$

$$\frac{dN_x}{dt} = -N_x \sigma_x \phi \quad (A-1b)$$

где N_x и N_y - атомные концентрации стабильного изотопа и радионуклида, σ_x и σ_y - нейтронные поперечные сечения для превращения x или y в некое новое ядро, а σ_{xy} - поперечное сечение для превращения x в y (см^2); ϕ - поток нейтронов ($\text{см}^{-2}\text{с}^{-1}$) и λ - постоянная распада радионуклида (с^{-1}). Для рассматриваемых здесь случаев можно пренебречь другими реакциями, приводящими к образованию или обеднению x и y: поэтому положим $\sigma_{xy} = \sigma_x$. Решив уравнение (A-1b) для N_x и подставив его значение в уравнение (A-1a), получим:

$$\frac{dN_y}{dt} = N_x^0 \sigma_x \phi \exp(-\sigma_x \Phi) - N_y \sigma_y \phi - N_y \lambda \quad (A-2)$$

где N_x^0 - начальная концентрация изотопа x, а Φ - интегральный нейтронный флюенс (нейтрон/ см^2), выражаемый следующим соотношением:

$$\Phi = \int_0^t \phi(\tau) d\tau \quad (A-3)$$

Если $\lambda \ll \phi \sigma$, или если ϕ приблизительно является константой, то уравнение (A-2) можно быть решено таким образом:

$$N_y = \frac{N_x^0 \sigma_x}{\sigma_y - \sigma_x + (\lambda T / \Phi)} [e^{-(\sigma_x \Phi)} - e^{-\sigma_y \Phi - \lambda T}] \quad (A-4)$$

где T - полное время облучения вещества нейтронным потоком. Для представляющих интерес нейтронных флюенсов и времен работы реакторов это уравнение дает достаточно точные результаты, если период полураспада радионуклида составляет по крайней мере 100 лет. Заметим, что если $\sigma_x \Phi \ll 1$ и $\sigma_y \Phi \ll 1$, то $N_y \approx N_x \sigma_x \Phi$.

Нейтронный поток в графитовых реакторах обычно составляет около 10^{13} нейтронов/ $\text{см}^2\text{с}$; поток в тяжеловодных реакторах примерно на порядок величины выше. В обоих типах реакторов поток в основном тепловой. Если промышленный реактор проработал 40 лет со средней эффективностью 0,5, интегральный флюенс тепловых нейтронов составит примерно $10^{22} - 10^{23}$ нейтронов/ см^2 ; работающие в однократном цикле производства реакторы получают флюенсы на два порядка величины меньше. Можно подсчитать диапазон концентраций долгоживущих радионуклидов в графите и стали, если использовать данные из табл.2 и А-1; соответствующие результаты приведены в табл. А-2.

На реальные концентрации радионуклидов оказывает некоторое влияние резонансное поглощение надтепловых нейтронов. Если измерить концентрации двух или более радионуклидов и если ядра изотопов, из которых они образуются, обладают сильно меняющимися отношениями интеграла резонансного захвата к тепловому поперечному сечению, можно оценить отношение потоков надтепловых и тепловых нейтронов¹⁵. Это позволит провести более точные оценки производства плутония, поскольку в графитовых и тяжеловодных реакторах около 25 процентов плутония образуется благодаря захвату надтепловых нейтронов.¹⁶

ПРИЛОЖЕНИЕ В

СОСТАВ ОБЕДНЕННОГО УРАНА

Обозначим через x, y и (1-x-y) концентрации U-235, U-234 и U-238, M будет об-

Таблица А-1

Времена жизни и сечения поглощения нейтронов для радионуклидов, перечисленных в табл. 1, вместе с сечениями реакций их образования и распространенностями родительских ядер.¹

Радио-нуклид	Период полураспада (лет)	Сечение поглощения тепловых нейтронов ²	Реакция образования	Сечение образования тепловыми нейтронами ²	Распространенность (в %)
Be-10	$1,6 \cdot 10^6$	$< 10^{-3}$	Be-9 (n,γ)	$(7,6 \pm 0,8) 10^{-3}$	100,0
C-14	$5,7 \cdot 10^3$	$< 10^{-6}$	C-13 (n,γ)	$(1,37 \pm 0,04) 10^{-3}$	1,10
			N-14 (n,p)	$1,83 \pm 0,03$	99,634
			O-17 (n,α)	$0,24 \pm 0,01$	0,038
Cl-36	$3,0 \cdot 10^5$	< 10	Cl-35 (n,γ)	$43,6 \pm 0,4$	75,77
			K-39 (n,α)	$(4,3 \pm 0,5) 10^{-3}$	93,258
Ca-41	$1,0 \cdot 10^5$	4	Ca-40 (n,γ)	$0,41 \pm 0,02$	96,941
Ni-59	$7,5 \cdot 10^4$	92 ± 4	Ni-58 (n,γ)	$4,6 \pm 0,3$	68,27
Ni-63 ³	$1,0 \cdot 10^2$	24 ± 3	Ni-62 (n,γ)	$14,5 \pm 0,3$	3,59
			Zn-66 (n,α)	$< 0,02 \cdot 10^{-3}$	27,9
Re-186m	$2,0 \cdot 10^5$	4	Re-185 (n,γ)	16 ± 3	37,4
Ir-192m2	$2,4 \cdot 10^2$	4	Ir-191 (n,γ)	$0,16 \pm 0,07$	37,3
Pb-205	$1,9 \cdot 10^6$		Pb-204 (n,γ)	$0,66 \pm 0,07$	1,4
Bi-210m	$3,0 \cdot 10^6$	54 ± 5	Bi-209 (n,γ)	$(9,6 \pm 0,8) 10^{-3}$	100,0

¹ Взято из справочника S.F.Mughabghab, M.Divadeenam, and N.E.Holden, Neutron Cross Sections, Vol.1: Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections (New York: Academic Press, 1981).

² В единицах 10^{-24} см⁻², или барнах.

³ Теоретически Ni-63 может быть получен также при реакции Cu-63 (n,p), не имеющей энергетического порога (с сечением 0,125 барн при 14,7 МэВ), но это не должно стать серьезной проблемой (по крайней мере для металлов с малым содержанием меди).

⁴ Сечение неизвестно, но для оценок принято равным 10 барнам.

означать массу урана, а индексы f, p и t - загрузку, продукт и отходы, соответственно. Потоки в разделительную установку и из нее показаны на рис. В-1.

Из баланса масс следуют три уравнения:

$$M_f = M_p + M_t \quad (B-1)$$

$$x_f M_f = x_p M_p + x_t M_t \quad (B-2)$$

$$y_f M_f = y_p M_p + y_t M_t \quad (B-3)$$

Необходимое дополнительное уравнение выводится из "весовой" функции трехкомпонентной смеси. Для идеального сим-

метричного каскада, где концентрация U-235 в загрузке ступени s совмещается с концентрацией U-235 в отходах от ступени (s+1), эта функция в наиболее общем виде дается выражением¹⁷:

$$V(x,y) = c_0 + c_1 x + c_2 y + c_3 H(x,y) + U(x,y)$$

где c_0 , c_1 , c_2 и c_3 - константы, а функции $H(x,y)$ и $U(x,y)$ имеют следующий вид:

Таблица А-2

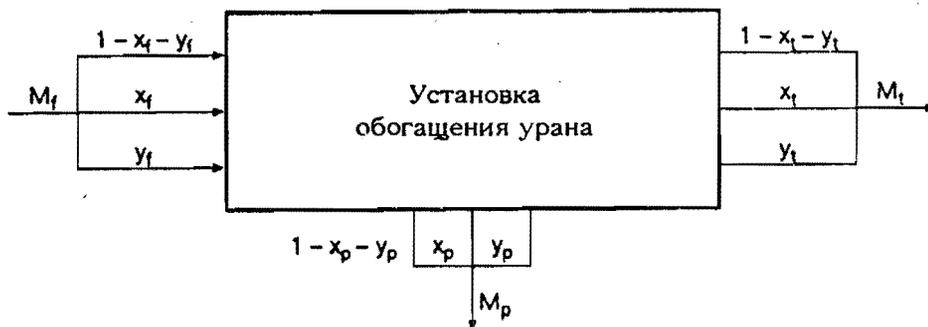
Концентрации долгоживущих радионуклидов, ожидаемые в графитовых и стальных компонентах активных зон реакторов при нейтронных флюэнсах от 10^{20} до 10^{23} нейтронов/см².

Радионуклиды	Родительское ядро	Концентрации радионуклидов			
		В графите		В стали	
		Низкий флюэнс ¹	Высокий флюэнс ²	Низкий флюэнс ¹	Высокий флюэнс ²
Be-10	Be-9		0,04 ppt		
C-14	C-13	2 ppb	2 ppm	3 ppt	9 ppb
	N-14	20 ppb	20 ppm	7 ppb	30 ppm
	O-17 ³		10 ppt		10 ppt
Cl-36	Cl-35		20 ppm		
	K-39		5 ppt	0,04 ppt	0,7 ppb
Ca-41	Ca-40	5 ppt	7 ppm		
Ni-59	Ni-58	4 ppt	60 ppb	1 ppm	400 ppm
Ni-63	Ni-62	0,8 ppt	20 ppb	0,2 ppm	100 ppm
	Zn-66		30 ppt		
Re-186m	Re-185 ³		1 ppb		1 ppb
Ir-192m2	Ir-191 ³		4 ppt		4 ppt
Pb-205	Pb-204		6 ppt		
Bi-210m	Bi-209			2 ppt	2 ppb

¹ При минимальной концентрации из таблицы 2, флюэнсе тепловых нейтронов 10^{20} нейтронов/см² и в пренебрежении резонансным захватом.
² При максимальной концентрации из таблицы 2, флюэнсе тепловых нейтронов 10^{23} нейтронов/см² и в пренебрежении резонансным захватом.
³ Концентрации этих ядер в таблице 2 не приводятся; для оценок по порядку величины считалось, что концентрация кислорода равна 1 ppm, концентрация рения 5 ppb и концентрация иридия 1 ppb.

Рисунок В-1

Схема потоков при обогащении урана



$$H(x,y) = yR^{-(2k-1)} \quad (B-5)$$

$$U(x,y) = \left[2x + \frac{2k(y-1)}{(2k-1)} \right] \ln R \quad (B-6)$$

Относительная концентрация R изотопа x определяется уравнением (B-7), а отношение коэффициентов обогащения k - уравнением (B-8):

$$R = \frac{x}{1-x-y} \quad (B-7)$$

$$k = \frac{g_y}{g_x} = \frac{\alpha_y - 1}{\alpha_x - 1} \quad (B-8)$$

где g_y и g_x - коэффициенты обогащения для U-234 и U-235, а α_y и α_x - соответствующие коэффициенты разделения. Для газовой диффузии в виде UF имеем:¹⁸

$$\alpha_y = \left[\frac{352}{348} \right]^{1/2} \quad \alpha_x = \left[\frac{352}{349} \right]^{1/2} \quad k = 1,33645 \approx \frac{4}{3} \quad (B-9)$$

Разделительное действие потока равно произведению его массы на соответствующий "вес"; поскольку для каскада это действие эквивалентно сумме разделительных действий ступеней, из уравнения B-4 следует, что:¹⁹

$$\sum_{j=1}^J M_j H(x_j, y_j) = 0 \quad (B-10)$$

где M_j - масса (или скорость течения) j -го потока из каскада.

Подставляя уравнение B-5 в уравнение B-10 и полагая $k = 4/3$, получим для каскада с тремя течениями:

$$\frac{M_p y_p}{\left[\frac{x_p}{1-x_p-y_p} \right]^{5/3}} + \frac{M_i y_i}{\left[\frac{x_i}{1-x_i-y_i} \right]^{5/3}} + \frac{M_f y_f}{\left[\frac{x_f}{1-x_f-y_f} \right]^{5/3}} = 0 \quad (B-11)$$

Чтобы исключить массы, разделим уравнение (B-11) на M_f и выразим из уравнений (B-1) и (B-2) величины M_p/M_f и M_i/M_f :

$$\frac{M_p}{M_f} = \frac{x_f - x_i}{x_p - x_i} \quad (B-12)$$

$$\frac{M_i}{M_f} = \frac{x_p - x_f}{x_p - x_i} \quad (B-13)$$

Оставшаяся неизвестной переменная y может быть выражена в виде функции от x_p на основе уравнений (B-1), (B-2) и (B-3):

$$y_p = \left(\frac{x_p - x_i}{x_f - x_i} \right) (y_f - y_i) + y_i \quad (B-14)$$

Подставив уравнения (B-12), (B-13), и (B-14) в уравнение (B-11), мы получим уравнение для x_p в виде функции четырех известных переменных x_f , x_i , y_f и y_i

$$\begin{aligned} & \frac{\frac{x_f - x_p}{x_p - x_i} (y_f - y_i)}{\frac{x_p}{1-x_p - \left(\frac{x_p - x_i}{x_f - x_i} \right) (y_f - y_i) - y_i}} + \frac{\frac{x_p - x_f}{x_p - x_i} y_i}{\left[\frac{x_i}{1-x_i - y_i} \right]^{5/3}} = \\ & \left[\frac{x_p}{1-x_p - \left(\frac{x_p - x_i}{x_f - x_i} \right) (y_f - y_i) - y_i} \right]^{5/3} \left[\frac{x_i}{1-x_i - y_i} \right]^{5/3} = \\ & = \frac{y_f}{x_f} \quad (B-15) \end{aligned}$$

К сожалению, это уравнение для x_p не поддается аналитическому решению (даже в предположении $y \ll 1$). Но его можно решить численно при значениях x_f и y_f для естественного урана, приведенных в табл.3. В табл. B-1 приведены концентрации U-234 в отходах (y_i) в виде функции от степени обогащения продукта (x_p) для двух образцов отходов ($x_i = 0,2$ и $0,3$ процента).

Если добавить к каскаду другой поток (например, два потока продукта), то эта ситуация может быть рассчитана путем добавления в правую часть уравнений B-1, B-2 и B-3 членов M_q , $x_q M_q$ и $y_q M_q$, а в левую часть уравнения (B-11) следует добавить член $y_q M_q \left[\frac{x_q}{(1-x_q - y_q)} \right]^{-5/3}$.

Решение для смесей с числом изотопов, превышающем три, кажется простым, поскольку каждый дополнительный компонент вносит уравнение типа (B-10), но с новым значением k (соответствующим отношению коэффициентов обогащения нового компонента и U-235).²⁰ Если известен состав исходного продукта (из оценок или документов), не должно появиться проблем в использовании этой процедуры для оценки степени

Таблица В-1.

Концентрация U-234 в отходах (y_t , ppmw) в зависимости от концентрации U-235 в конечном продукте (x_p , в весовых процентах) при концентрации U-235 в отходах (x_t), равной 0,2 и 0,3 весовых процента и $k = 1,33645$.

x_p (%)	y_t (ppmw)		Продукт	
	$x_t = 0,2\%$	$x_t = 0,3\%$		
1	8,27	15,3	SEU	
2	7,51	14,3		
3	7,19	13,8		
4	7,02	13,6		
10	6,66	13,0	LEU	
20	6,52	12,8		
40	6,45	12,70		
60	6,42	12,66		
80	6,410	12,64		
90	6,405	12,63		
98	6,402	12,62		
				оружейный для реакторов ВМС

обогащения.

Можно определить время, прошедшее с момента образования отходов, по измерению накопления продуктов радиоактивного распада урана. Если исходное вещество (U-235) содержится с концентрацией C после обогащения и никого из членов цепочки его распада не было в начальный момент (это достаточно хорошее допущение), то содержание i -го нуклида через время t после процесса обогащения дается следующим выражением:

$$C_i(t) = C_i(0) \prod_{j=1}^{i-1} \lambda_j \sum_{h=1}^i \frac{e^{-\lambda_h t}}{\prod_{p=1, p \neq h}^i (\lambda_p - \lambda_h)} \quad (B-16)$$

где λ_j - постоянная распада j -го нуклида.

ПРИМЕЧАНИЯ И ССЫЛКИ

1. Старые рабочие документы скорее всего велись на бумаге, подлинность которой можно определить путем изучения состава бумаги и/или чернил, а также природы инструмента, наносившего чернила на бумагу. Структура бумажных волокон меняется со временем, как и структура чернил. Если США имеют в делах образцы документов спорного периода, их можно было бы сравнить с производственными записями. Более того, в производственных записях до-

жна сохраниться подпись официального лица, которую также можно сравнить с другими образцами.

2. Нейтроны также повреждают материалы реактора (например, вызывая дислокацию атомов или образуя атомы водорода). Эти повреждения могут быть скоррелированы с полным флюенсом нейтронов, но не столь точно как концентрация долгоживущих радионуклидов.
3. Я исследовал также возможность *in situ* измерения содержания радионуклидов в графите путем передвижения германиевого детектора вдоль топливных каналов и измерения интенсивности характеристических гамма-лучей, испускаемых при распаде этих радионуклидов. К сожалению, только один из десяти радионуклидов - Bi-210, испускает гамма-лучи с высокой энергией (266, 305 и 650 кэВ); Be-10, C-14 и Ni-63 вообще не испускают фотонов; Cl-36, Ca-41, Ni-59 и Pb-205 испускают только рентгеновские лучи, а Re-186m и Ir-192m2 являются источниками слабого гамма-излучения с небольшой энергией. Висмут-210m образуется в (n, γ) реакциях с единственным существующим в природе изотопом висмута Bi-209. Поскольку концентрация висмута в образцах графита из Хэнфорда была ниже измеряемого (но не установленного) уровня, похоже, что нам

- придется в основном использовать вынутые из реактора образцы графита для проведения измерения концентраций на масс-спектрометре.
4. Концентрация С-14 в современном углероде составляет $1,3 \text{ ppt}$ (триллионная доля - 10^{-12}); определение возраста по С-14 используется до возрастов порядка 50 000 лет, что соответствует концентрации С-14 менее, чем $1,3 \exp(-50000/8270) = 0,003 \text{ ppt}$.
 5. Точность в 10 процентов может показаться оптимистической, но следует иметь в виду, что будут представлены детали конструкции реактора и детали рабочей документации. Если эта документация окажется полной и истинной, нет оснований полагать, что оценки инспекторов по производству плутония будут не столь точными, как при техническом надзоре, где стандартная точность не превышает нескольких процентов.
 6. Американские промышленные реакторы используют также для производства других изотопов, например, Po-210, U-233, Pu-238, Cm-244 и Ce-252, но в количествах, пренебрежимо малых по сравнению с Pu-239.
 7. Исключением является электромагнитное разделение, где коэффициент разделения настолько высок, что для получения оружейного урана требуются только одна-две ступени. Кроме того, у современных центрифуг коэффициенты разделения относительно велики и поэтому требуются не сотни, а десятки ступеней.
 8. Есть способы скрыть эту информацию, но это было бы весьма обременительным и рискованным.
 9. Можно, конечно, использовать масс-спектрометр, чтобы найти отношение содержания изотопов. Для гексафторида урана UF_6 другая возможность состоит в наблюдении скорости нейтронного излучения, которая очень чувствительна к концентрации U-234. Пассивный счет нейтронов часто используется для определения степени обогащения UF_6 , но различие в скорости счета между обедненным ураном, полученным при производстве НОУ, и обедненным ураном, полученным при производстве ВОУ, составляет всего лишь около 3 %. Если обедненный UF_6 хранится в больших баках (американские баки содержат около 14 тонн), такое небольшое различие можно обнаружить переносимыми приборами с достаточно большими временами счета.
- Смотрите работу R.H. Augustson and T.D. Reilly "Fundamentals of Passive Nondestructive Assay of Fissionable Material," LA-5651-M (Los Alamos: Los Alamos Scientific Laboratory, 1974), pp. 71-72. Уран-234 не испускает достаточно интенсивных гамма-лучей, позволяющих провести оценки концентрации.
10. Browne and Firestone приводят для атомного содержания U-235 значение $0,7200 \pm 0,0012$. Cowan and Adler (cited in M. Benedict, T.H. Pigford, and H.W. Levi, Nuclear Chemical Engineering, New York: McGraw-Hill, 1981, p. 814) приводят значение $0,7107 \pm 0,0002$ для весовой концентрации U-235 в 88 образцах естественного урана.
 11. National Council on Radiation Protection and Measurements, Exposure of the Populations in the United States and Canada from Natural Background Radiation (Bethesda, MD: NCRP Report No. 97, December 1987) p. 49.
 12. Cited in NCRP, Natural Background Radiation, p. 49.
 13. В американских обогатительных установках для загрузки использовался облученный уран. Существуют доказательства, что такое делалось и в Советском Союзе, см. работы Pacific Northwest Laboratory, PNL-4621 Draft, March 1983, pp. 16.4, 17.5; and S. Fetter, T.B. Cochran, L. Grodzins, H.L. Lynch, and M.S. Zucker, "Gamma-Ray Measurements of a Soviet Cruise-Missile Warhead", Science 248 (18 May 1990) p. 829.
 14. И в этом случае существуют очевидные, но довольно затруднительные методы сокрытия информации.
 15. Основанные на этой идее методики были разработаны для оценки отношения потока надтепловых нейтронов к потоку тепловых нейтронов, но они обычно удобны при малых временах облучения. (Смотрите, например, работу A. Simonits, F. De Corte, and J. Hoste, "Zirconium as a Multi-isotopic Flux Ratio Monitor and a Single Comparator in Reactor-neutron Activation Analysis," Journal of Radioanalytical Chemistry 31 [1976] pp. 467-486). У всех ядер-поглотителей из табл. А-1 отношение $1/\sigma_{th}$ лежит в пределах 0,5-3 - такое отличие мало существенно для получения точной оценки отношения потоков (1 - резонансный интеграл захвата нейтронов, σ_{th} - сечение теплового захвата). В число ядер-поглотителей с $1/\sigma_{th} > 10$, образующих радионуклиды с пери-

- одом полураспада свыше одного года, входят Cd-108, Cs-133, Gd-152, Ho-165 и Pt-192.
16. Как указано в книге M.Benedict, T.H.Pigford, and H.W.Levi, Nuclear Chemical Engineering (New York: McGraw-Hill, 1981), pp.137-156, в тяжеловодном реакторе с топливом из естественного урана около 75 процентов плутония, образованного при малом сгорании топлива (около $700 \text{ MWd te}^{-1} [\text{U}]$), обязано захвату тепловых нейтронов в U-238, остальное количество образуется при захвате надтепловых нейтронов и совсем немного - при захвате быстрых. Доля плутония, образованного надтепловыми нейтронами, должна быть такой же и в графитовых промышленных реакторах.
 17. A. de la Garza, G.A.Garrett, and J.E.Murphy, "Multicomponent Isotope Separation in Cascades," Chemical Engineering Science 15 (3-4) (September 1961) pp.188-209.
 18. Шесть атомов фтора имеют массу 113,990418 а.е.м. Другие методы обогащения (например, газовая центрифуга или аэродинамическое разделение) будут иметь иные и возможно гораздо более высокие коэффициенты разделения, но поскольку коэффициент обогащения примерно пропорционален разнице масс, в каждом случае будет примерно то же самое значение k .
 19. A. de la Garza, G.A.Garrett, and J.E.Murphy, "Multicomponent Isotope Separation in Cascades," Chemical Engineering Science 15 (3-4) (September 1961) p.198.
 20. A.de la Garza, "A Generalization of the Matched Abundant- Ratio Cascade for Multicomponent Isotope Separation," Chemical Engineering Science 18 (1963) pp.73-82.