

МОНИТОРИНГ ИНЕРТНЫХ ГАЗОВ В АТМОСФЕРЕ ДЛЯ МЕЖДУНАРОДНЫХ ГАРАНТИЙ ДЛЯ ПРЕДПРИЯТИЙ ПО ПЕРЕРАБОТКЕ

Чарльз У. Наклех, Уильям Д. Стэнбро, Луис Н. Хэнд, Р.Т. Перри (мл.),
Уильям Б. Уилсон, и Брайан Л. Фири

Мониторинг окружающей среды для анализа ядерной деятельности обещает играть важную роль в улучшении международных гарантий в рамках программы 93+2 Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ). Мониторинг содержания стабильных изотопов инертных газов (Kr, Xe) в трубах заводов по переработке, по-видимому, позволит получить информацию о степени выгорания и типе обрабатываемого топлива. Для оценки величины этих сигналов были проведены модельные расчеты образования стабильных изотопов Kr и Xe в реакторном топливе и последующего разбавления этих изотопов в трубах заводов для двух вариантов: переработки топлива легководных реакторов со степенью выгорания 35 ГВт в сутки на тонну и реакторов типа КАНДУ со степенью выгорания 1 ГВт в сутки на тонну. В каждом случае для определения степени выгорания и типа топлива по изотопным соотношениям использовался метод максимального правдоподобия.

Чарльз У. Наклех, Уильям Б. Стэнбро и Брайан Л. Фири работают в Лос-Аламосской национальной лаборатории, Лос-Аламос, штат Нью-Мексико, США (группа НИС-7 систем обеспечения гарантий), Р.Т. Перри работает в той же лаборатории (группа ТСА-10 разработки и анализа ядерных систем), Уильям Б. Уилсон работает в той же лаборатории (группа Т-2 ядерной теории и приложений), а Луис Н. Хэнд работает на физическом факультете Корнеллского университета, Итака, штат Нью-Йорк, США.

ВВЕДЕНИЕ

Обнаружение большой тайной программы ядерного оружия в Ираке после войны в Персидском заливе привело к совместным международным действиям, получившим название Программы 93+2, по улучшению эффективности и надежности гарантий Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ)¹. В результате применения новых методов и технологий гарантии МАГАТЭ претерпели существенные эволюционные изменения со времени их введения; тем не менее, Программа 93+2 впервые открыла перспективы для действительно серьезных изменений в технических методах, которые могло применять агентство со времени подготовки и выполнения соглашений по гарантиям Договора о нераспространении ядерного оружия (ДНЯО) в конце 70-х г.г.

Одной из наиболее интересных и неотложных задач, для решения которой понадобились новые методы Программы 93+2 стали крупные заводы по переработке гражданского назначения. Несколько таких заводов недавно вступили в строй, а еще несколько должно начать работу в ближайшем будущем. В 1990 г. начал работать завод UP-3 в Ла Хаге, Франция, проектная производительность которого равна 800 тонн тяжелого металла в год², в которых содержится до 8 тонн плутония³. В 1993 г. в Великобритании начал работать завод переработки тепловых оксидов (ЗПТО), постепенно достигающий своей проектной мощности в 1200 тонн урана в год с выделением примерно 12 т плутония в год⁴. На этот путь вступает и Япония. На уже работающем заводе по переработке в Токаи (ЗПТ) проектная мощность составляет 90 тонн урана в год, или, эквивалентно, 900 кг плутония ежегодно. Кроме того, строится завод по переработке в Роккашо (ЗПР), который должен начать работу в 2000 г., перерабатывая 800 тонн урана в год с ежегодным выделением 8 тонн плутония⁵. До сих пор заводы такого размера существовали только в странах, обладающих ядерным оружием, где они не должны были ставиться под гарантии МАГАТЭ⁶. Обеспечение адекватных гарантий на таких гражданских установках является вызовом для МАГАТЭ⁷, и мониторинг окружающей среды (МОС) может сыграть важную роль в ответе на такой вызов.

Одним из методов МОС, который может найти широкое применение в обеспечении гарантий заводов по переработке, является мониторинг стабильных изотопов атмосферных инертных газов в выбросах дымовых труб предприятий. Задачей этого метода и связанных с ним методов МОС в данном контексте является дополнение существующих методов обеспечения гарантий посредством увеличения прозрачности при эксплуатации пред-

приятия и проверки самосогласованности данных о процессе, полученных более традиционными методами учета материалов. Хотя мы не предполагаем при нашем анализе открытого доступа к установке, мы считаем, что возможно получение образцов выбросов из дымовых труб предприятия. Такой подход довольно мягок по сравнению с доступом, обычно требующимся при нормальном обеспечении гарантий.

Задачей настоящей статьи является анализ метода контроля стабильных изотопов инертных газов в аспекте постановки мониторинга под гарантии и иллюстрация информации о процессах, которая может быть получена с его помощью. Мы не рассматриваем здесь очень сложной проблемы обнаружения секретных ядерных предприятий. Несмотря на это, мы полагаем, что общие методы и рассматриваемые здесь подходы могут широко применяться в области МОС, и в некоторой степени имеют отношение ко всем проблемам МОС.

Далее мы начнем с краткого обсуждения основных положений мониторинга стабильных изотопов инертных газов в атмосфере. После этого мы перейдем к техническим обсуждениям, составляющим основную часть этой статьи. И, наконец, мы представим некоторые выводы о возможности включения этого метода в набор средств для обеспечения гарантий МАГАТЭ.

МОНИТОРИНГ СТАБИЛЬНЫХ ИЗОТОПОВ ИНЕРТНЫХ ГАЗОВ

Технологии МОС не входили в режим гарантий МАГАТЭ до Программы 93+2; поэтому до сих пор анализ их полезности для обеспечения гарантий не был завершен. Несмотря на разнообразие возможных способов применения МОС для обеспечения гарантий, общий подход для всех одинаков. Во всех случаях главной проблемой МОС является определение и измерение возмущений окружающей среды, характерных для ядерной деятельности, и использования этих измерений для подтверждения выполнения обязательств по мирному применению, или дополнения информации, полученной другими методами обеспечения гарантий, увеличивая уверенность и прозрачность.

В этом случае первой задачей МОС должно стать определение полезного набора сигналов. В данном контексте полезно определить сигналы, которые: (1) прямо связаны с деятельностью предприятия, (2) достаточно сильны для измеримого возмущения фона окружающей среды, и (3) полезны для определения параметров процесса, представляющих интерес для гарантий. Очевидно, что выбор подходящего набора сигналов будет зависеть

критическим образом от параметров, которые нужно будет определять. Вообще говоря, ни один набор сигналов не позволит получить ответа на все возможные интересные вопросы.

Для конкретного случая заводов по переработке двумя наиболее важными вопросами являются: (1) Какова степень выгорания перерабатываемого топлива? и (2) Из какого типа реактора оно получено? Первый вопрос критичен для различения переработки топлива из энергетических реакторов, которое обычно выдерживается до большой степени выгорания (порядка 35 ГВт в сутки на тонну⁶ или более для легководных реакторов), и переработкой топлива для производства оружия, степень выгорания которого обычно равна 1 ГВт в сутки на тонну, или меньше. Второй вопрос полезен для решения вопроса о том, был ли слабообогащенный уран заменен оператором на природный уран в противоречии с объявленными операциями.

Важно понять, что этот подход не исчерпывает всего перечня, представляющего интерес для обеспечения гарантий. В частности, определение степени выгорания и типа топлива не позволяют определить полного запаса плутония, который может быть оценен при помощи традиционного учета материалов. Задачей МОС в этом контексте является не замена других методов обеспечения гарантий, а предоставление дополнительной прозрачности.

Потенциально полезным набором сигналов для решения этих двух вопросов степени выгорания и типа топлива является набор распространенностей различных стабильных изотопов криптона и ксенона, образованных в виде осколков деления во время работы ядерных реакторов. Эти сигналы обладают двумя серьезными преимуществами: они непосредственно связаны с количеством делений, происшедшим в топливе во время пребывания в работающем реакторе, и, благодаря их химической инертности, они не подвержены влиянию сложных химических процессов переработки и свободно выделяются во время процессов растворения. Более того, относительное содержание нерадиоактивных изотопов не зависит от времени, прошедшего с момента выгрузки топлива из реактора до растворения топлива во время переработки⁹.

Предыдущие исследования в области мониторинга инертных газов в основном были связаны с Kr-85 из-за очень низкого фоновое содержания. Глобальные измерения содержания Kr-85 в атмосфере проводились в течение многих лет¹⁰. В настоящем анализе впервые проводится систематический анализ применения сигналов изотопического состава стабильных инертных газов как меры прозрачности в контексте международного сотрудничества. Этот анализ уникален и в привлечении нерадиоактивных изотопов инертных газов.

Хотя, в отличие от Kr-85, естественный фон стабильных изотопов инертных газов сравнительно высок, приведенные ниже расчеты показывают, что вызванное переработкой изменение изотопного состава может быть обнаружено при помощи высокоточного масс-спектрометрического анализа образцов газа, взятого из дымовых труб. Полный изотопный анализ таких образцов представляет возможность многократного определения степени выгорания и типа топлива, что невозможно определить при помощи одного анализа Kr-85.

Хадсон¹¹ и Арегбе¹² также рассматривали вопрос сигналов стабильных инертных газов при переработке, но они не обсуждали важного вопроса обратного расчета параметров топлива по измеренным изотопным отношениям. Наш отчет в основном направлен на решение этого вопроса.

Выбор сигналов. Далеко не все среди возможных изотопов криптона и ксенона образуются при делении в качестве осколков. Для криптона список изотопов с выходом более 2,5·10⁻⁶ процента¹³ таков: 82(с), 83(с), 84(с), 85, 86(с), 87, 88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95 и 97. В этом списке стабильные изотопы отмечены буквой (с), а остальные изотопы радиоактивны. Аналогично, для ксенона список изотопов с выходом более 2,5·10⁻⁶ процента таков: 129(с), 130(с), 131(с), 132(с), 133, 134(с), 135,

136(с), 137, 138, 139, 140, 141, 142, 143, 144, 145¹⁴. Другие изотопы, например, Xe-127, в реакторах не образуются, и поэтому бесполезны для обеспечения гарантий.

Более того, за исключением Kr-85, обладающего периодом полураспада в 10,73 года, все остальные изотопы из приведенных списков имеют периоды полураспада менее 9 часов (Xe-135), и у большинства из них периоды распада по порядку величины равны секундам или минутам. Однако, для того, чтобы высокорadioактивные продукты распались перед переработкой, отработанный реакторное топливо обычно выдерживают в бассейнах охлаждения в течение по крайней мере 150 суток (а чаще – многих лет). Поэтому ко времени переработки топлива все эти радионуклиды распадутся (опять же за исключением Kr-85). Поскольку они не будут присутствовать во время переработки, они бесполезны для обеспечения гарантий.

Из списка можно исключить также Kr-82, Xe-129 и Xe-130. Их общий выход подавлен из-за того, что они блокированы в цепочках деления долгоживущими изотопами Se-82 (1,4·10²⁰ лет), I-129 (1,57·10⁷ лет) и Te-130 (2,5·10²¹ лет). Поэтому они также не образуются в реакторах в больших количествах.

Учитывая все эти обстоятельства, списки стабильных изотопов, полезных для обеспечения гарантий, можно сократить до следующих: Kr-83, 84 и 86; Xe-131, 132, 134 и 136.

В таблице 1 показаны рекомендованные значения выхода соответствующих изотопов криптона и ксенона при делении под действием тепловых нейтронов из обработанного файла ядерных данных (ENDF)¹⁵. Они показывают, что состав образующегося при делении криптона и ксенона заметно отличается от фонового состава атмосферного криптона и ксенона, что полезно с точки зрения обеспечения гарантий. В частности, сдвиг к тяжелым изотомам в процессе деления показывает, что в пробе окружающей среды их содержание будет существенно выше, чем у легких.

Таблица 1: Выходы деления из ENDF/B-VI и относительный изотопный состав¹⁶ (в процентах).

Изотоп	Выход при делении тепловыми нейтронами	Содержание при делении	Природное содержание
Kr-78	-	-	0,35
Kr-80	-	-	2,25
Kr-82	-	-	11,6
Kr-83	0,536241(B)	14,2	11,5
Kr-84	1,001993(C)	26,5	57,0
Kr-85	0,283424(A)	7,48	-
Kr-86	1,965112(B)	51,9	17,3
Xe-124	-	-	0,1
Xe-126	-	-	0,090
Xe-128	-	-	1,91
Xe-129	-	2,48	26,4
Xe-130	-	-	4,1
Xe-131	2,890898(B)	13,2	21,2
Xe-132	4,313407(A)	19,7	26,9
Xe-134	7,872436(B)	35,9	10,4
Xe-136	6,313166(A)	28,8	8,9

Те же самые соображения приложимы не только к реакторам на тепловых нейтронах, но и к реакторам на быстрых нейтронах, хотя для этих вариантов выходы нейтронов различны. Поскольку значительно большая часть перерабатываемого топлива получена из реакторов на тепловых нейтронах, мы можем ограничиться в последующем изложении обычными реакторами на тепловых нейтронах.

ТЕХНИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ

Основные технические вопросы таковы: промоделировать, как сигналы криптона и ксенона от завода раз-

бавляются в атмосферном фоне; продемонстрировать, как измерения изотопных соотношений криптона и ксенона в дымовых трубах завода могут предоставить информацию, относящуюся к гарантии; и рассчитать влияние неточности измерений на выделение сигнала из фона.

В нашей работе мы будем предполагать, что изотопные соотношения измеряются у макроскопических образцов, забираемых в дымовых трубах заводов по переработке при помощи высокоточных масс-спектрометров. Арегбе и др.¹⁷ из Института референтных материалов и измерений в Бельгии недавно сообщили об измерении изотопных соотношений ксенона и криптона с относительной точностью (относительным стандартным отклонением) в несколько частей на 10^5 . Здесь предполагалось, что такая точность достижима.

Мы предполагали также, что одновременно с забором образца из дымовой трубы будет забираться фоновый образец для измерения локального фона криптона и ксенона, обеспечивающего точные относительные измерения.

Основы анализа. Обсуждаемый в этом отчете анализ естественно делится на две основные части, которые мы называем «прямой» проблемой и «обратной» проблемой. В обеих частях используется основное уравнение для распространенности j -ой изотопной компоненты (например, ксенона):

$$A(^jXe) = \frac{[^jXe]_{BG} + DQ_j(B)}{\sum [^kXe]_{BG} + D \sum Q_k(B)}$$

В этом уравнении изотопы в квадратных скобках обозначают концентрации изотопов, измеренные, скажем, в атомах на кубометр. Индекс BG указывает на фоновые концентрации каждого изотопа. Параметр D — это фактор разбавления в атмосфере с размерностью $с/м^3$, или концентрация, деленная на скорость генерации; B — степень выгорания топлива в ГВт на сутки на тонну; $Q_j(B)$ — это параметры источника завода, измеренные, например, в молях в секунду; и член DQ_j — это вклад завода в полную концентрацию j -го изотопа. Суммирование в знаменателе производится по всем стабильным изотопам, входящим в состав фона или образующимся в реакторе.

Два главных интересующих нас параметра, D и B , заслуживают особого обсуждения. Мы не принимали какой либо модели для определения D , считая только, что разбавленный вклад от завода пропорционален вкладу от источника. Это гарантирует, что D будет входить в уравнение только линейным образом. Более того, хотя D и зависит от конкретных условий эксплуатации в момент забора пробы, оно одинаково для всех изотопов. Значения $Q_j(B)$ являются функциями от степени выгорания B , которые меняются от реактора к реактору и могут быть рассчитаны при помощи программы ORIGEN2¹⁸, или других, более сложных программ переноса и распада¹⁹.

Данное уравнение показывает, что распространенность каждого изотопа стремится к фоновой распространенности при стремлении производительности завода к нулю, как и должно быть. Более того, если потребуется не относительная распространенность, а отношение изотопов, оно может быть получено из приведенной формулы делением на распространенность нужного изотопа.

Прямая проблема заключается в применении моделей для определения теоретической формы членов источника при разумных сценариях переработки. Эти теоретические выражения могут затем быть использованы для оценки степени выгорания по изотопным данным. При необходимости эти выражения могут быть использованы также для оценки содержания разбавленных изотопов при различных условиях для того, чтобы определить возможность их отличия от фона.

Однако, обратная проблема качественно отлична. Как отмечалось ранее, мы предполагаем, что одновременно будет проводиться два различных измерения: одно в дымовой трубе для измерения распространенности изотопов инертных газов, и второе вне дымовой трубы для измерения локальных фоновых распространеннос-

тей. Задачей обработки этих экспериментальных измерений распространенностей в трубе и в фоновых условиях является оценка наилучших значений фактора разбавления и степени выгорания топлива, что фактически является обращением основного уравнения распространенностей (или отношений).

Два варианта анализа. Для того, чтобы иллюстрировать концепцию инертных газов, мы провели изучение двух моделей, имеющих практическое значение: первая относится к переработке топлива типичных энергетических реакторов со степенью выгорания 35 ГВт на сутки на тонну, а вторая — к переработке топлива реакторов типа КАНДУ со степенью выгорания 1 ГВт на сутки на тонну. Степень выгорания для первого случая типична для гражданского производства энергии. Во втором случае степень выгорания более совместима с военными приложениями. Стратегия анализа каждого случая заключается в расчете модельных изотопных данных и в демонстрации использования этих данных для оценки интересующих параметров процесса.

Несмотря на то, что техническая информация практически по всем заводам переработки закрыта либо по соображениям национальной безопасности, либо по коммерческой тайне, имеется один завод для переработки, в настоящее время закрытый, для которого можно получить информацию по эксплуатации²⁰. Это завод по экстракции урана и плутония (ПУРЭКС), расположенный на площадке в Хэнфорде, штат Вашингтон, США. В течение нескольких последних лет детальные сведения об эксплуатационных параметрах, производительностях, потоках, и т.д. были рассекречены и в настоящее время доступны широкой общественности. В таблице 2 приведены параметры завода, необходимые для моделирования в данном исследовании.

Таблица 2: Модель параметров завода по переработке.

Производительность по топливу, т/час	1,25
Высота трубы, м	50
Внутренний диаметр трубы, м	2
Температура на выходе, К	313
Скорость выброса, м/с	20

С этими параметрами, расчетами производства криптона и ксенона в реакторах (по программе ORIGEN2) и с некоторыми оценками влияния разбавления (по порядку величины) мы смогли провести два моделирования эксперимента. Следует иметь в виду, что обсуждающиеся ниже данные — это данные моделирования и не являются результатами эксперимента.

Анализ прямой проблемы. Задача этого раздела состоит в анализе элементов прямой проблемы, т.е. в получении модельных данных, необходимых для иллюстрации основного метода. Более интересные результаты обратной проблемы рассматриваются в следующем разделе.

Начнем с используемых значений фоновых концентраций ксенона и криптона. Фоновые концентрации ксенона и криптона могут быть оценены по приведенным в литературе²¹ изотопным соотношениям атмосферных ксенона и криптона, и по концентрации атмосферы на уровне моря по модели стандартной атмосферы США, равной $2,43 \cdot 10^{19}$ $см^{-3}$. Результаты этих расчетов приведены в таблице 3. Отметим, что типичные концентрации образующихся в реакторе изотопов криптона примерно на два порядка величины больше, чем у образующихся в реакторе изотопов ксенона.

Расчеты по программе ORIGEN2 указали еще на один интересный факт. Количество образующихся при делении изотопов Кг и Хе в топливе для водяных реакторов под давлением (ВРД) с ураном, обогащенным до 3,5%, приведены в таблице 4. Отметим, что концентрация ксенона примерно на порядок величины больше, чем у криптона. Учитывая вышеупомянутые факты, это приводит к тому, что отношение сигнала стабильного ксенона к фону будет существенно больше, чем у криптона. Поэтому в дальнейшем мы будем обращать особое внима-

ние на ксенон, хотя наш подход легко может быть обобщен для включения криптона.

Таблица 3: Фоновые концентрации Kr и Xe в атмосфере.

Изотоп	Концентрация (атом/м ³)
Kr-78	9,61·10 ¹⁶
Kr-80	6,25·10 ¹⁷
Kr-82	3,19·10 ¹⁸
Kr-83	3,18·10 ¹⁸
Kr-84	1,58·10 ¹⁹
Kr-86	4,82·10 ¹⁸
Xe-124	2,01·10 ¹⁵
Xe-126	1,88·10 ¹⁵
Xe-128	4,06·10 ¹⁶
Xe-129	5,59·10 ¹⁷
Xe-130	8,60·10 ¹⁶
Xe-131	4,49·10 ¹⁷
Xe-132	5,68·10 ¹⁷
Xe-134	2,21·10 ¹⁷
Xe-136	1,87·10 ¹⁷

Таблица 4: Количество Kr и Xe в ВРД-топливе, обогащенном до 3,5% при степени выгорания в 35 ГВт на сутки на тонну.

Изотоп	Концентрация (г/т)
Kr-83	43,65
Kr-84	121,8
Kr-85	25,77
Kr-86	204,5
Xe-131	441,9
Xe-132	1137
Xe-134	1558
Xe-136	2466

Как отмечалось выше, мы учитываем разбавление введением множителя *D*. Хотя оценку этого фактора можно провести различными способами, для наших целей достаточно дать простую оценку по порядку величины. При подготовке модельных данных для двух вариантов мы использовали приближенное значение $D = 10^{-5}$ с/м³. Это дает типичное значение разбавления, которого следует ожидать в образце из дымовой трубы. В любом случае при желании весьма просто провести моделирование с другим значением фактора разбавления.

Отметим еще одно предварительное замечание. Сложный знаменатель основного уравнения можно упростить, если перейти от распространенностей к изотопным отношениям, в особенности, если мы будем использовать в качестве референтного изотоп, не образующийся в реакторе, например, Xe-129. Очевидно, что использование изотопных отношений к Xe-129 полностью эквивалентно использованию распространенностей. Это особенно удобно с точки зрения масс-спектрометрического анализа, поскольку Xe-129 – это наиболее распространенный изотоп, не образующийся в реакторе, и поэтому он хорошо определяется масс-спектрометром.

Вариант 1: Модельные изотопные отношения. «Истинные» фоновые отношения по Xe-129 можно рассчитать делением соответствующих концентраций из таблицы 3. Для того, чтобы построить более реальную модель, мы предположим, что модельные фоновые отношения распределены нормальным образом относительно «истинных» значений с относительным стандартным отклонением 10⁻⁵, и случайным образом извлечем модельные значения из распределения. Это введет в модель определенный гауссовский шум. Полученные таким образом модельные значения показаны в таблице 5.

Отметим, что мы предполагаем возможность измерения изотопных отношений с точностью до 5 знаков. Это согласуется с точностью 10⁻⁵, достижимой в настоящее время в масс-спектрометрии инертных газов²². В любом случае, различие между разбавленными и фоновыми значениями проявляется уже в первых значащих цифрах, как это видно из таблиц 5 и 6. Точно таким же

образом могут быть определены соотношения в пробах из дымовых труб. Результаты модели принимаются за «истинные», и затем к ним добавляется некоторый гауссовский шум. Результаты приведены в таблице 6.

Таблица 5: Фоновые соотношения для вариантов 1 и 2.

Изотопные отношения	Модельные данные
131/129	0,80322
132/129	1,0161
134/129	0,39535
136/129	0,33452

Таблица 6: Соотношения для проб из дымовой трубы в варианте 1.

Изотопные отношения	Модельные данные
131/129	0,81670
132/129	1,0507
134/129	0,44222
136/129	0,40759

Вариант 2: Модельные отношения. Фоновые отношения в вариантах 2 и 1 одинаковы. Отношения для проб из дымовых труб рассчитываются также, как в варианте 1. Результаты приведены в таблице 7. Как и ожидалось, значения для этих проб значительно ближе к фоновым из-за меньшей степени выгорания топлива в этом варианте.

Таблица 7: Соотношения для проб из дымовой трубы в варианте 2.

Изотопные отношения	Модельные данные
131/129	0,80369
132/129	1,0168
134/129	0,39671
136/129	0,33680

Результаты обратной проблемы. Как мы можем извлечь из изотопных данных интересующие нас параметры (степень выгорания или тип реактора), рассматривая модельные результаты как экспериментальные данные?

Предварительные рассуждения. Если мы определим R_j как отношение *j*-го изотопа к Xe-129, то основное уравнение примет вид:

$$R_j = \frac{[^jXe]_{BG} + DQ_j(B)}{[^{129}Xe]_{BG}} = R_j^0 + \frac{DQ_j(B)}{[^{129}Xe]_{BG}}$$

или, эквивалентно:

$$R_j - R_j^0 \equiv \Delta R_j = \frac{DQ_j(B)}{[^{129}Xe]_{BG}} \equiv dQ_j'(B)$$

где постоянное значение фоновой концентрации Xe-129 включено в первоопределенный множитель разбавления, определяющийся выражением:

$$d = \left(\frac{Dr}{3600} \right) \frac{N_A}{[^{129}Xe]_{BG}}$$

где *D* – ранее определенный множитель разбавления, *r* – производительность завода в тоннах в час, 3600 – фактор преобразования часов в секунды, и *N_A* – число Авогадро для преобразования молей в атомы. Все факторы, входящие в сигнал завода, не зависящие от изотопа, включены в это определение. Все зависящие от изотопа параметры включены в первоопределенную функцию производства $Q_j'(B)$. Они включают массу изотопа, поскольку рассчитываемые по программе ORIGEN2 функции определяют количество изотопа в г/т, и для преобразова-

ния в моли изотопа их надо поделить на его массу. В списке изотопов приведены подходящие значения их масс. Для наших вариантов $D = 10^{-5}$ с/м³ и $r = 1,25$ т/час, так что $d = 0,004$.

Приведенные уравнения показывают, что определение фактора разбавления и степени выгорания из измеренных сигнала и фона критически зависят от экспериментального обнаружения ненулевой разности между отношениями в пробах из дымовой трубы и в фоне. Насколько хорошо может быть проведено вычитание двух сравнительно близких чисел, определяется точностью измерения изотопных отношений инертных газов в атмосфере. Как отмечалось выше, мы полагаем точность масс-спектрометрических измерений равной 10^{-5} .

Метод максимального правдоподобия. Преобразованное основное уравнение явно зависит от фактора разбавления d и степени выгорания топлива B . Используя модельные данные для четырех отношений изотопов, образующихся в реакторах, мы можем обратить эти уравнения для оценки значений d и B методом максимального правдоподобия. Полезные обсуждения этого метода можно найти у Мэтьюса и Уолкера²³ и в заметках Орира²⁴. Вообще говоря, мы имеем N экспериментально определенных значений x_i с соответствующей неточностью измерений, обычно характеризуемой стандартным отклонением σ_i . Эти результаты в принципе получаются при повторных измерениях каждой величины, устанавливающих экспериментальное распределение вероятности для каждой x_i . Мы предполагаем, что эти распределения нормальны.

Предположим также, что у нас есть теоретическое выражение y_i для каждой x_i , зависящее от m параметров $(\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_m)$, т.е. $y_i(\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_m)$. Мы должны определить параметры α . Каждый набор параметров соответствует определенной теоретической модели, и поскольку эти параметры, вообще говоря, непрерывны, мы будем иметь бесконечное множество моделей. Нам надо найти модель, или набор параметров, который наилучшим образом согласуется с измеренными данными. Этого можно достичь, определив неотрицательную функцию

$$\chi^2(\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_m) \equiv \sum_{i=1}^N \frac{(x_i - y_i)^2}{\sigma_i^2}$$

Функция χ^2 определяет сложную поверхность в m -мерном пространстве. Оценка максимального правдоподобия параметров расположена в глобальном минимуме этой поверхности. Вообще говоря, у нее могут быть и несколько локальных минимумов, так что следует соблюдать осторожность и привлекать физические соображения для того, чтобы убедиться в том, что проверяемый минимум действительно является глобальным.

Последующие расчеты проводились при помощи системы символьной математики *Mathematica*²⁵.

При «хорошей статистике» наблюдается значительное возрастание функции χ^2 в окрестностях минимума. В этом случае неопределенности оценки по методу максимального правдоподобия можно получить, дифференцируя χ^2 .²⁶ Кроме того, качество подгонки можно определить при помощи хорошо известного теста хи-квадрат для $N - m = 4$ (количество изотопов) $- 2$ (количество параметров) $= 2$ (количество степеней свободы)²⁷.

Вариант 1: результаты подгонки. С исходными числами мы можем рассчитать χ^2 , которое затем будет использовано для оценки максимально-правдоподобных значений d и B . Ошибки этого предсказания (Δd , ΔB) также могут быть определены по стандартным формулам²⁸. Результаты подгонки к данным по ВРД показаны в таблице 8. Результаты для реакторов ВРК и КАНДУ приведены в таблицах 9 и 10.

В таблице 10 обозначение «нефизическая ошибка» используется для указания нарушения предположений, использованных при определении стандартной ошибки. Однако, это не особенно важно, поскольку тест хи-квадрат для реактора КАНДУ показал, что подгонка неверна.

Анализ результатов показывает, что наилучшее качество подгонки было достигнуто для реактора ВРД, в котором были получены точные предсказания фактора разбавления и степени выгорания. Обсуждение этих результатов и возможности появления отличий при анализе реальных данных проводится ниже.

Таблица 8: Результаты подгонки в варианте 1 (ВРД).

χ^2_m	0,7
$d_m \pm \Delta d$	$0,004 \pm 6 \cdot 10^{-6}$
$B_m \pm \Delta B$	$35,00 \pm 0,05$
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	0,72

Таблица 9: Результаты подгонки в варианте 1 (ВРК).

χ^2_m	26,00
$d_m \pm \Delta d$	$0,004 \pm 2 \cdot 10^{-6}$
$B_m \pm \Delta B$	$34,23 \pm 0,02$
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	0

Таблица 10: Результаты подгонки в варианте 1 (КАНДУ).

χ^2_m	68,000
$d_m \pm \Delta d$	58
$B_m \pm \Delta B$	Нефизическая ошибка
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	0,0023
	Нефизическая ошибка
	0

Вариант 2: результаты подгонки. Результаты процедуры минимизации показаны в таблицах 11 – 13. Наибольшая точность подгонки получена для реактора КАНДУ, как и должно было быть; она обеспечила достаточно хорошие оценки степени выгорания и фактора разбавления.

Таблица 11: Результаты подгонки в варианте 2 (ВРД).

χ^2_m	640
$d_m \pm \Delta d$	$0,0003 \pm 2 \cdot 10^{-5}$
$B_m \pm \Delta B$	$17 \pm 1,5$
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	0

Таблица 12: Результаты подгонки в варианте 2 (ВРК).

χ^2_m	920
$d_m \pm \Delta d$	$0,0002 \pm 2 \cdot 10^{-4}$
$B_m \pm \Delta B$	$19 \pm 1,4$
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	0

Таблица 13: Результаты подгонки в варианте 1 (КАНДУ).

χ^2_m	$8 \cdot 10^{-6}$
$d_m, \Delta d^{29}$	0,004; 0,002
$B_m, \Delta B$	1,0; 0,5
$P_2(\chi^2 > \chi^2_m)$	$B \leq 2,0$ с 95% определенностью
	1

Обсуждение результатов подгонки. Хотя приведенные выше результаты подгонки и показывают, как можно обращаться с реальными данными, их не следует принимать слишком буквально. Высокая точность подгонки для ВРД в первом варианте связана с двумя факторами: (1) как отмечалось выше, с высокой точностью измерений, и (2) с тем фактом, что сами данные рассчитывались при помощи программы ORIGEN2. В этом смысле мы просто «замкнули круг», определив точные значения степени выгорания и типа топлива.

Анализ реальных данных несомненно будет отличаться от анализа модельных данных из-за систематических ошибок в программе ORIGEN2 (или в любой другой программе для расчета теоретической формулы для функции χ^2 для сравнения с данными эксперимента). Результаты программы ORIGEN2 сравнивались с экспериментальными данными по изотопным отношениям инерт-

ных газов и их точность оказалась примерно равной 10%³⁰. Поэтому даже в лучшем случае оценка степени выгорания должна иметь примерно такую же точность. Другие факторы, такие, как переменность скорости образования инертных газов в активной зоне реактора и переменность условий облучения также могут внести вклад в расхождение между данными и теоретическими формулами. Однако, даже при неопределенности в 10% оценка степени выгорания все равно будет весьма полезной для различения топлива с высокой степенью выгорания от топлива с малой степенью выгорания. Если по какой-либо причине понадобится большая точность, то надо будет провести более точное моделирование.

В такой же степени такие соображения применимы и к варианту 2. В нем из-за малой степени выгорания проявляются некоторые интересные особенности. Хотя χ^2 аномально мало, что указывает на подозрительно хорошую подгонку (по тем же причинам, что обсуждались выше для варианта 1), ошибки в предсказании степени выгорания намного больше (около 50%), чем в случае 1. Основной причиной этого факта является то, что мы находимся в режиме слабого выгорания, когда квадратичный член в функциях производства намного меньше, чем в случае высокого выгорания (см. Приложение А). Но если функция производства существенно линейна, то переменные d и B вместо того, чтобы входить как независимые переменные, эффективно входят как одна переменная dB и процедура подгонки старается найти наилучшее значение для этой составной переменной.

Преобладание линейного члена над квадратичным в варианте 2 является основной причиной больших ошибок оценки степени выгорания. В этом случае можно определить только верхний предел для предсказания степени выгорания. Но этого будет вполне достаточно для того, чтобы определить, имеет ли перерабатываемый материал потенциальное военное назначение.

ВЫВОДЫ

Высокая точность измерений на современных масс-спектрометрах позволяет при помощи процедуры максимального правдоподобия определить тип реактора, степень выгорания и фактор разбавления как для низкой, так и для высокой степени выгорания. Эти результаты с уверенностью показывают, что идея использования образцов атмосферных инертных газов на заводах по переработке для обеспечения международных гарантий технически осуществима.

Кроме того, эта проблема обладает несколькими особенностями, общими для всех проблем МОС: выбор подходящего набора сигналов; регистрация данных; и применение данных для оценки интересующих параметров. В этом смысле мониторинг инертных газов является типичной проблемой МОС.

Важно также увязать представленный здесь технический анализ с политическими рамками, в которых он находится. Принимая во внимание упомянутое выше последнее развитие режима международных гарантий, представляется, что метод мониторинга инертных газов может стать кандидатом для включения в набор средств мониторинга окружающей среды, который рассматривается агентством в рамках программы 93+2. Этот метод сравнительно ненавязчив, что помогает рассеять опасения некоторых неядерных стран о том, что улучшения гарантий по программе 93+2 неприемлемо строги. Однако, превращение этого метода в стандартную составляющую набора гарантий МАГАТЭ зависит от многих технических, политических и экономических факторов, и оно остается неясным.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

ORIGEN2 – РАСЧЕТ ФУНКЦИЙ ПРОИЗВОДСТВА В РЕАКТОРЕ

В этом приложении приводятся точные функциональные выражения для производства ксенона в ВРД, ВРК и КАНДУ, рассчитанные по программе ORIGEN2. Хотя

мы ограничились этими обычными типами реакторов, анализ для других типов реакторов в принципе такой же.

Процедура для получения таких форм заключалась в создании и исполнении входного файла программы ORIGEN2 для имитации выгорания топлива при постоянной мощности с удобными приращениями степени выгорания, например, 1 или 5 ГВт на сутки на тонну. В этих точках рассчитывались концентрации ксенона и криптона, которые затем аппроксимировались квадратичными функциями от B при помощи коммерческой программы *Igor Pro*, в которой использовался алгоритм Левенберга-Марквардта для подгонки по методу наименьших квадратов. Результаты приведены в таблицах 14-16³¹ (в г/т; степень выгорания B измеряется в ГВт на сутки на тонну). Выбранные функциональные формы обеспечивают нулевое производство ксенона при нулевой степени выгорания, как и должно быть.

Таблица 14: Функции производства для ВРД.

Изотоп	Функция производства
Xe-131	$16,9869B - 0,127597B^2$
Xe-132	$25,41B + 0,1996B^2$
Xe-134	$45,2497B - 0,0196002B^2$
Xe-136	$68,3774B + 0,0594139B^2$

Таблица 15: Функции производства для ВРК.

Изотоп	Функция производства
Xe-131	$16,9646B - 0,144906B^2$
Xe-132	$25,44457B + 0,215833B^2$
Xe-134	$45,3596B - 0,0216077B^2$
Xe-136	$66,8498B + 0,0654014B^2$

Таблица 16: Функции производства для КАНДУ.

Изотоп	Функция производства
Xe-131	$15,5943B - 0,102264B^2$
Xe-132	$24,6373B - 0,703719B^2$
Xe-134	$45,5829B - 0,077781B^2$
Xe-136	$76,6369B + 0,202411B^2$

Физическое объяснение линейного члена в каждой функции заключается просто в тепловом делении облучаемого топлива. Однако, небольшой квадратичный член отражает влияние образующихся изотопов на многократный захват нейтронов, которое проявляется при накоплении достаточного количества нуклидов.

Различие численных коэффициентов разных типов реакторов в основном связано с различием степени обогащения топлива (низкообогащенный уран в легководных реакторах и природный уран в КАНДУ), а также с различием применяемых замедляющих и охлаждающих жидкостей. Используемые программой ORIGEN2 библиотеки эффективных сечений принимают в расчет эти различия.

Еще одна операция, которую надо проделать перед применением этих функций в методе максимального правдоподобия, это деление на массу изотопа для преобразования в моли изотопа, поскольку эти функции выражены в г/т. Подходящие значения масс изотопов приведены в списке изотопов³². После этого преобразования функции производства могут использоваться как функции источника.

Еще раз укажем, что перед тем, как использовать эти функции в методе максимального правдоподобия, их надо разделить на массу изотопа для преобразования из граммов в моли.

БЛАГОДАРНОСТИ

Мы выражаем глубокую признательность Джейн Потс, Харальду Потсу, Хозе Оливаресу, и Тимоти Бенджамину из Лос-Аламосской национальной лаборатории, и Питеру Стейну и Курту Готтфриду из Корнельского университета за полезные обсуждения этого вопроса. Эта работа была поддержана программой внутрилабо-

раторных исследований и разработок Лос-Аламосской национальной лаборатории.

ПРИМЕЧАНИЯ И ССЫЛКИ

- Richard Hooper, "Strengthening IAEA Safeguards in an Era of Nuclear Cooperation", *Arms Control Today*, (November 1995), pp. 14-18; David A.V. Fischer, "New Directions and Tools for Strengthening IAEA Safeguards", *The Nonproliferation Review*, (Winter 1996), pp. 69-76; *Strengthening the Effectiveness and Improving the Efficiency of the Safeguards System*, IAEA document GC(50)/17, (August 23, 1996).
- Regnier, J., and P.M. Saverot, «Effective Implementation of Safeguards at the La Hague Reprocessing Plant», *Proceedings of the 35th Annual Meeting of the Institute for Nuclear Materials Management*, (July 17-20, 1994), pp. 119-126.
- Топливо легководных реакторов с типичной степенью выгорания содержит около 10 кг плутония на тонну урана.
- Kaiser, S., et al., "THORP: Authentication, Transparency, and Independence", in *International Nuclear Safeguards 1994: Vision for the Future*, 2 Vols., (Vienna: IAEA, 1994), Vol. 2, pp. 67-77.
- Общие сведения о японской ядерной программе приведены в M. Hayashi, S. Asai, M. Kikuchi, "Present Status of Safeguards Implementation in Japan", in *International Nuclear Safeguards 1994: Vision for the Future*, Vol. 1, pp. 67-77.
- Заводы THORP и UF3 в Ла Хаг, как гражданские ядерные установки, находятся под гарантиями Европейской комиссии по атомной энергии (ЕВРАТОМ). Военные запасы Франции и Великобритании или других государств с ядерным оружием в настоящее время не находятся ни под какой формой международных гарантий.
- Обсуждение сложности обеспечения гарантий крупных заводов по переработке, которое, однако, появилось до инициативы 93+2 приведено в работе Thomas Shea et al., "Safeguarding Reprocessing Plants: Principles, Past Experience, Current Practice and Future Trends", *Journal of Nuclear Materials Management*, Vol. 21, No. 4, (1993), pp. 17-27.
- В этой статье степень выгорания топлива в реакторе измеряется в этих единицах, равных 1000 МВт в сутки на тонну урана.
- Мы неявно предполагаем, что на предприятии не установлено никакого оборудования для улавливания инертных газов. Это соответствует текущей практике и в принципе может быть проверено другими способами.
- Weiss, W., H. Sartorius, H. Stockberger, "Global Distribution of Atmospheric Kr-85", in *Isotopes of Noble Gases as Tracers in Environmental Studies* (Vienna: IAEA, 1992), pp. 29-62.
- Hudson, Bryant, "Noble Gas Measurements for Spent Nuclear Fuel Reprocessing", Lawrence Livermore National Laboratory, IAEA task 90/OA211 Interim Report.
- Aregbe, Y., K. Mayer, S. Valkiers, P. DeBievre, "Release of the Anthropogenic Xenon to the Atmosphere: A Large Scale Atmospheric Dilution", *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, Vol. 154, Issue 1-2, (May 31, 1996), pp. 89-97.
- По обычной шкале от 0 до 200 процентов, которая используется в этой области, поскольку каждое двойное деление сопровождается двумя осколками деления.
- Эти данные взяты из справочника *Chart of the Nuclides* (San Jose, CA: General Electric Co., 14th ed., 1989).
- England, T.R., and B.F. Rider, "ENDF/349 Evaluation and Compilation of Fission Product Yields, 1993", Los Alamos National Laboratory Report LAUR-94-3106, (October 1994). Численные значения выходов можно получить по сети Интернет по адресу <http://t2.lanl.gov/publications/yields>
- Буквы после значения выхода соответствуют неопределенности значений ENDF следующим образом: А: 0,35 процента, В: 0,50 процента и С: 0,70 процента. См. England, T.R., and B.F. Rider (ссылка 15), стр. 34-35.
- Aregbe, Y., S. Valkiers, K. Mayer, P. DeBievre, "Comparative Isotope Measurements of Xenon and Krypton", *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, Vol. 153, Issue 1, (March 23, 1996), pp. L1-L5.
- ORIGEN2.1, *Isotope Generation and Depletion Code, Matrix Exponential Method*, Radiation Shielding Information Center (RSIC), Oak Ridge National Laboratory, RSIC Code Package CCC-271, (1991).
- Имеются несколько методов решения этой проблемы. Общее обсуждение см. в Samuel Gladstone, and Alexander Sesonske, *Nuclear Reactor Engineering* (New York: Chapman & Hall, 1994), 2 Vols., Vol. 1, pp. 227ff. Методы Монте-Карло для проблем переноса нейтронов рассматриваются в Judith F. Briesmeister, ed., *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A*, Los Alamos National Laboratory, LA-12625, Manual, (1993). Разработанная в Лос Аламосе программа CINDER2 одноточечного обеднения описана в G.E. Bosler, J.R. Philips, W.R. Wilson, R.J. LaBauve, and T.R. England, *Production of Actinide Isotopes in Simulated PWR Fuel and Their Influence on Inherent Neutron Emission*, Los Alamos National Laboratory Report LA-9343, UC-15, (1982).
- Наиболее исчерпывающая ссылка по заводу ПУРЭКС, включающая проектные чертежи и эксплуатационные параметры, представлена в работе R.A. Libby, J.E. Segal, W.D. Stanbro, and C. Davis, *Hanford PUREX Exercise - March 29-31, 1994, Special Nuclear Materials Cutoff Exercise: Issues and Lessons Learned*, 3 Vols., (Richmond, WA: Pacific Northwest Laboratory, August 1995), PNL-10705, UC-515. Второй том этого материала включает в себя полный вопросник проектной информации МАГАТЭ для завода ПУРЭКС.
- Ozima, Minoru, and Frank A. Podosek, *Noble Gas Geochemistry* (Cambridge: Cambridge University Press, 1983), pp. 12-13.
- См. ссылки 12 и 17 на две работы Aregbe et al.
- Mathews, Jon, and R.L. Walker, *Mathematical Methods of Physics* (Menlo Park, CA: Benjamin/Cummings, 2nd ed., 1970), pp. 391-395.
- Orear, Jay, *Notes on Statistics for Physicists, Revised*, Cornell University Preprint CLNS 82/511, (July 28, 1982).
- Wolfram, Stephen, *Mathematica. A System for Doing Mathematics by Computer* (Redwood City, CA: Addison-Wesley, 2nd ed., 1991).
- См. ссылку 24, Orear.
- Там же.
- Там же.
- В этом случае из-за меньшей степени выгорания
- Allen G. Croff, "ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials", *Nuclear Technology*, Vol. 62, (September 1983), p. 350.
- Ошибка в одно стандартное отклонение в коэффициентах может быть рассчитана по матрице ошибок в подгонке. Для краткости эти значения в таблице не указаны.
- Chart of the Nuclides* (San Jose, CA: General Electric Co., 14th ed., 1989).