Trace Fission Product Ratios for Nuclear Forensics Attribution of Weapons-Grade Plutonium from Fast and Thermal Reactors Sunil S. Chirayath, Jeremy M. Osborn, and Taylor M. Coles *Science and Global Security*, 2015, Volume 23, pp. 48-67

# ОТНОШЕНИЯ СЛЕДОВЫХ ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ ДЛЯ ЯДЕРНОГО РАССЛЕДОВАНИЯ ПО ПРИПИСЫВАНИЮ ПЛУТОНИЯ ОРУЖЕЙНОГО КАЧЕСТВА РЕАКТОРАМ НА БЫСТРЫХ ИЛИ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНАХ

# Сунил С. Чирайат, Джереми М. Осборн и Тэйлор М. Коулс

Растушие опасения угрозы ядерного терроризма усиливает необходимость разработки быстрых и точных аналитических методов ядерного расследования для приписывания источника ядерного материала и для создания заслуживающего доверия ядерного сдерживания. Плутоний, образующийся в качестве побочного продукта в топливе ядерного реактора, в особенности в топливе, разгружаемом при низких уровнях глубины выгорания (от 1 до 2 МВт сутки/кг), является потенциально полезным материалом для изготовления ядерного оружия. В случае перехвата контрабандного плутония его происхождение должно быть установлено с помощью методов ядерного расследования для приписывания источника, прежде чем будет начато любое ответное действие против такого злонамеренного акта. Характеристики выделенного плутония из выгруженного реакторного топлива и ассоциируемых следовых продуктов деления зависят от таких факторов, как тип реактора (на тепловых или на быстрых нейтронах), уровня глубины выгорания топлива, истории облучения, и химических процессов, используемых для выделения плутония. Представлена новая методология использования отношений следового продукта деления к плутонию для ядерного расследования для приписывания источника плутония к типу реактора, использованного для его производства, вместе с результатами, полученными для конкретных случаев спектра реактора-размножителя на быстрых нейтронах и спектра тепловых нейтронов, с использованием проектной информации из открытой литературы для этих двух типов ядерных реакторов.

Сунил С. Чирайат, Джереми М. Осборн и Тэйлор М. Коулс работают в научно-политическом институте ядерной безопасности Техасского университета сельского хозяйства и механики, Колледж Стейшн, Техас, США.

Почтовый адрес для корреспонденций: Sunil Chirayath, Texas A&M University, 337 Zachry Engineering Center, College Station, TX 77843, USA.

Адрес электронной почты: sunilsc@tamu.edu

Статья получена 26 декабря 2013 года и принята к публикации 29 декабря 2014 года.

# введение

Закон о ядерных расследованиях и приписыванию к источнику, подписанный Президентом США Бараком Обамой в 2010 году, заявляет, что атака ядерных террористов является одной из самых серьезных угроз национальной безопасности Соединенных Штатов<sup>1</sup>. Методы ядерных гарантий используются для верификации применения ядерных материалов для мирных целей и для предотвращения распространения ядерного оружия посредством обнаружения отвлечения специальных ядерных материалов и злонамеренного использования технологий. Однако, основной риск распространения ядерного оружия лежит на странах, ведущих без гарантий значительную ядерную деятельность<sup>2</sup>. Угроза появления ядерных материалов, и, возможно, ядерных боеприпасов, изготовленных в деятельности вне гарантий, иллюстрирует значение надежной возможности проведения ядерных расследований, позволяющих приписать ядерный материал к его происхождению.

Плутоний, побочный продукт в отработавшем ядерном топливе, образуется в ядерных реакторах в результате ядерных реакций с ураном. Плутоний-239 образуется в результате реакции захвата нейтрона ядром урана-238 с двумя последующими бета-распадами.

$${}^{238}_{92}U + {}^{1}_{0}n(\gamma){}^{239}_{92}U(\beta^{-}){}^{239}_{93}Np(\beta^{-}){}^{239}_{94}Pu$$

Выгорание топлива определяется как тепловая энергия, произведенная на единицу массы ядерного топлива. По мере увеличения глубины выгорания топлива реакции нейтронного захвата в плутонии-239 и последующих изотопах плутония приводят к накоплению изотопов плутония с более высоким массовым числом. В конечном счете в облученном топливе будет присутствовать полный набор изотопов плутония (плутоний-238, плутоний-239, плутоний-240, плутоний-241, и плутоний-242). Более высокая концентрация плутония-239 переходит в более высокое качество плутония для применения в ядерном оружии. При уровнях глубины выгорания, обычно достигаемых в реакторах атомных электростанций, получается плутоний реакторного качества (приблизительно 60 процентов плутония-239). Известно, однако, что плутоний оружейного качества (приблизительно 94 процента плутония-239) будет производиться при низком уровне глубины выгорания примерно от одного до двух мегаватт-суток на килограмм (МВт-сутки/кг)<sup>3</sup>.

Обычно за таким плутонием следит Международное агентство по атомной энергии (МАГАТЭ) на основании Договора о нераспространении ядерного оружия (ДНЯО) и договорах о гарантиях с отдельными странами. Однако, имелись случаи, когда производство плутония происходило в государствах, где установки ядерного топливного цикла на находились под гарантиями МАГАТЭ<sup>4</sup>. В данной статье авторы исследуют характеристики плутония и ассоциированных загрязнений следовыми элементами при выделении из топлива, выгружаемого после очень низкого уровня глубины выгорания из реакторов-размножителей со спектром быстрых нейтронов и реакторов со спектром тепловых нейтронов. Оба таких типа реакторов обладают возможностью производить плутоний оружейного качества. В качестве примера активной зоны реактора со спектром быстрых нейтронов был выбран индийский прототип реактора-размножителя на быстрых нейтронах (PFBR) электрической мощностью 500 МВт(эл.)<sup>5</sup>, а в качестве примера активной зоны реактора со спектром медленных нейтронов был выбран реактор с тяжелой водой под давлением (PHWR)<sup>6</sup>, поскольку для этих реакторов необходимые для данного исследования проектные данные легко доступны в открытой литературе.

Реакторы-размножители на быстрых нейтронах спроектированы для производства плутония в материале зоны воспроизведения (уране-238). Однако, такие реакторы могут работать таким образом, чтобы производить плутоний оружейного качества при низких уровнях глубины выгорания. Реактор PFBR, находящийся сейчас на стадии активного строительства, будет производить во время эксплуатации значительные количества плутония оружейного качества. В предыдущей работе было оценено, что в зонах воспроизведения реактора PFBR каждый год будет производиться около 140 килограммов плутония оружейного качества<sup>7</sup>.

Особый интерес представляют реакторы с тяжелой водой под давлением PHWR из-за их уникальных особенностей перезагрузки во время эксплуатации. Реакторы с обычной водой первоначально загружаются с большой избыточной реактивностью; поэтому им требуется перезарядка посредством замены активной зоны на новую каждые 12 или 18 месяцев. Перезарядка с заменой активной зоны на новую требует остановки реактора, что делает частую перезагрузку менее привлекательной с коммерческой или эксплуатационной точки зрения. Напротив, тяжеловодные реакторы часто перезагружаются без остановки реактора во время эксплуатации. Низкая реактивность топлива с природным ураном приводит к обычной перезарядке одного топливного канала в сутки. Средняя глубина выгорания топлива в реакторах с тяжелой водой под давлением PHWR достигает примерно 6,7 МВт-сутки/кг<sup>8</sup>. Однако перезагрузка без остановки делает реакторы более уязвимыми к извлечению материала из активной зоны. Это создает потенциальную возможность для намеренного облучения топлива с малой глубиной выгорания и дальнейшего его извлечения из активной зоны для использования вне рамок гражданского энергетического производства.

Существуют различия между реакторами PFBR и PHWR, включающие спектр нейтронов, материал топлива, замедлитель и охладитель, каждое из которых может привести к изменению состава выгоревшего топлива. Следовательно, конечный состав выгруженного топлива может оказаться способным предоставить информацию о системе реактора, на которой был произведен плутоний.

Задачей настоящего исследования является оценка концентраций изотопов плутония и продуктов деления в отработавшем топливе из субсборок периферической радиальной зоны воспроизведения реактора PFBR и пучков топливных стержней с малой глубиной выгорания реактора PHWR, а также для создания набора изотопных отношений, полезных для быстрых и точных ядерных расследований для приписывания источника перехваченного плутония оружейного качества к реактору. Оценки для плутония и продуктов деления были получены посредством разработки трехмерных моделей активной зоны реактора и проведения моделирования переноса нейтронов и расчетов выгорания топлива с помощью методологии Монте-Карло для радиационного переноса. В следующих разделах предыдущие исследования в этой области, подробности настоящего исследования, результаты, и их отношение к методам ядерного расследования.

# ПРЕДЫДУЩИЕ РАБОТЫ ПО ЯДЕРНЫМ РАССЛЕДОВАНИЯМ

Были опубликованы несколько исследований технических вопросов ядерных расследований, которые демонстрируют способность данных изотопного состава сохранять информацию об источнике произведенного специального ядерного материала. В Лос-Аламосской национальной лаборатории (ЛАНЛ) была разработана система мониторинга окружающей среды, использующая образующиеся в результате деления инертные газы, в частности, ксенон и криптон, в качестве метода верификации перерабатывающих установок9. Относительные концентрации стабильных изотопов ксенона и криптона зависят от нескольких эксплуатационных параметров реактора. Измерения изотопных отношений таких инертных газов от деления могут поэтому быть использованы для верификации заявлений оператора или определения параметров топлива, таких, как тип топлива, уровень глубины выгорания, и тип реактора. Была создана расчетная база данных изотопных отноешний ксенона и криптона с использованием последовательности программ анализа реактора для моделирования практически всех типов реакторов. Вычислительное моделирование показало способность изотопных отношений различать между реакторами с обычной водой, тяжеловодными реакторами и реакторамиразмножителями. Указанная система использовала тот факт, что инертные газы химически не связаны с топливом и поэтому они выделяются во время переработки. Хотя изотопные отношения и база данных, построенная по такому методу, бесполезны для анализа материалов после переработки, они демонстрируют, что концентрации продуктов деления несут информацию, необходимую для выявления реактора-источника. В магистерской дипломной работе М.Р. Скотт разработал методологию ядерного расследования для приписывания источника отработавшего топлива, используемого в радиологическом распылителе, к реактору<sup>10</sup>. Атрибуты включают уровень глубины выгорания отработавшего топлива, время с момента выгрузки, тип реактора, и начальное обогащение топлива. для того, чтобы найти различие между типами реакторов, потребуются изотопы с поперечными сечениями и выходами, заметно различающимися между разными типами реакторов. Были построены зависимости отношений для выбранных изотопов от глубины выгорания для каждого реактора. Результаты показали, что эти изотопы могут легко определить выбор между реактором на быстрых нейтронах и реактором на тепловых нейтронах. Работа Скотта, однако, была направлена скорее на более высокие уровни глубины выгорания, которые обычно достигаются в реакторах атомных электростанций, чем на плутоний оружейного качества с низким уровнем глубины выгорания. Изотопы, получающиеся в более сложных цепочках образования, не будут иметь достаточного времени, чтобы появиться в материале с низким уровнем выгорания. Поэтому мониторы, выявленные в работе Скотта, не будут подходить для представленной здесь темы анализа топлива с низким уровнем глубины выгорания для ядерного расследования.

Предыдушее исследование, в котором анализировался изотопный состав плутония, примененный для определения происхождения плутония, захваченного при попытке незаконной перепродажи ядерного материала, было проведено Валлениусом и др<sup>11</sup>. В этом исследовании программа для расчета выгорания реакторного топлива ORIGEN2<sup>12</sup> была использована для вычисления изотопного состава плутония для нескольких реакторов; кроме того, масс-спектрометр с тепловой ионизацией использовался для измерения изотопных отношений плутония в пяти плутониевых образцах. Два плутониевых образца были получены из Национального бюро стандартов, два – из бывшего Советского Союза, и еще один образец – из Международной технической рабочей группы (ITWG). После измерений из сравнения измеренных и рассчитанных на компьютере изотопных составов был определен реакторный источник для каждого образца. Их исследование возбудило ряд сомнений в отношении изотопного состава и компьютерного моделирования. Изотопный анализ проводился только для плутония и актинидов, не проводилось никакого исследования загрязняющих продуктов деления. Программа образования и истощения изотопов, ORIGEN2, использует модель топлива нулевого измерения, которая выдает состав, усредненный по всей активной зоне реактора. Это может создать проблемы для реактора-размножителя на быстрых нейтронах, активная зона которого складывается из весьма различных топливной зоны и зоны воспроизведения. Кроме того, времена облучения считаются непрерывными и к материалу не прилагается никаких коррекций на время охлаждения. Уровни глубины выгорания, полученные для вычислительных моделей, эквивалентны типичным уровням выгорания для каждого реактора, за исключением реактора-размножителя на быстрых нейтронах. Здесь уровень глубины выгорания для зоны воспроизводства реактора-размножителя на быстрых нейтронах относительно высок – 20 МВт.сутки/кг. Такой уровень глубины выгорания, вероятно, получился из-за усреднения топлива в активной зоне и в зоне воспроизводства в результате моделирования по программе ORIGEN2.

Глэзер исследовал изотопные сигнатуры плутония оружейного качества, изготовленного на типах реакторов, которые исторически использовались для производства плутония<sup>13</sup>. Было выполнено моделирование реакторов типа Хэнфорда, типа NRX (Национальный исследовательский реактор, Канада) и типа Колдер-Холла. Для каждого из этих типов реакторов был рассчитан изотопный состав плутония и были проанализированы отношения изотопов плутония. Было определено, что предсказательные сигнатуры, определенные из изотопных отношений плутония, позволяют различить плутоний оружейного качества из реакторов основных типов, включая реакторы-размножители на быстрых нейтронах, реакторы с обычной водой, использующие низко обогащенное топливо, и реакторы с топливом на природном уране. В проведенном анализе отсутствуют продукты деления. Хотя методология ядерного расследования, основанная только на изотопных отношениях плутония, может оказаться полезной из-за своей независимости от технологии выделения, включение состава продуктов деления исследования может помочь исследованиям изотопного состава плутония.

В ранее опубликованных исследованиях была разработана методика анализа изотопного состава плутония или продуктов деления, которая приписывает ядерный материал к реактору-источнику. Однако, большая часть проведенных исследований была направлена на отработавшее топливо реактора, обычно облученное до среднего уровня глубины выгорания, при котором изотопный состав плутония не соответствует оружейному качеству. Исследования изотопных характеристик загрязняющих продуктов деления в выделенном из топлива с низким уровнем глубины выгорания в результате злонамеренного использования реактора или из зоны воспроизводства реактора-размножителя плутонии оружейного качества отсутствуют. Использование отношения продуктов деления к плутонию в выделенном плутонии оружейного качества для изотопного анализа в ядерном расследовании, как оно представлено здесь, является новым подходом к приписыванию реактораисточника.

# методология

Детальные характеристики плутония оружейного качества включают изотопный состав плутония и загрязняющих продуктов деления. Следовые количества продуктов деления возникают из-за неидеальности химического процесса, используемого для выделения плутония из облученного ядерного топлива. Степень очистки, достигаемую в процессе разделения, можно количественно характеризовать коэффициентом очистки (DF), который является отношением указанной примеси к желаемому компоненту в исходном материале к эквивалентному отношению в конечном продукте<sup>14</sup>:

$$DF = \begin{bmatrix} \Pi pumecb \\ \overline{\mathcal{K}enaemuiKomnohehm} \end{bmatrix}_{Hcxodhuit}$$
(2)  
$$\begin{bmatrix} \Pi pumecb \\ \overline{\mathcal{K}enaemuiKomnohehm} \end{bmatrix}_{Komeunuit}$$

Для извлечения плутония чаще всего применяется экстракционный метод с применением трибутилфосфата (ТБФ) в качестве экстрагента (PUREX или Пурекс)<sup>15</sup>. Используя процесс Пурекс, при отделении продуктов деления от выделенного плутония можно достичь коэффициентов очистки порядка 10<sup>6</sup> – 10<sup>8</sup>, тем не менее, остающееся загрязнение продуктами деления остается измеримым<sup>16</sup>.

Так же, как и изотопный состав плутония, содержание продуктов деления зависит от таких параметров, как глубина выгорания топлива, тип топлива, обогащение, энергетический спектр нейтронов в реакторе, и период времени после облучения. Задача данного исследования состоит в анализе плутония и продуктов деления в топливе из радиальной зоны воспроизводства реактора PFBR с глубиной выгорания 1 МВт.сутки/кг, так же как и связок топливных элементов из реактора PHWR с малой глубиной выгорания от 1 до 2 МВт.сутки/кг. Для такого реакторного топлива, облучаемого до равных уровней глубины выгорания, причиной вариаций содержания продуктов деления будут существенно различные энергетические спектры нейтронов. Разница в энергетических спектрах нейтронов приведет к различным количествам плутония и концентрациям продуктов деления в выгруженном топливе даже при равных глубинах выгорания. Различия получаются из-за вариаций выхода различных продуктов деления, вариаций в поперечных сечениях взаимодействия нейтронов плутония.

#### Прототип реактора-размножителя на быстрых нейтронах

Подробная информация об индийском реакторе PFBR с электрической мощностью 500 МВт, включающая важнейшие проектные параметры и эксплуатационные процедуры, была получена из открытой литературы<sup>17</sup>. Активная зона высотой в один метр состоит из внутренней и внешней активной зон со смешанным оксидным (MOX) запальным топливом. Содержание оксида плутония в MOX-топливе равно 20,7 процента во внутренней зоне и 27,7 процента во внешней зоне. Это приводит к увеличению количества расщепляющегося материала на периферии активной зоны, и, следовательно, к выравниванию профиля нейтронного потока в реакторе. Продольные зоны воспроизводства толщиной 0,3 метра каждая располагаются выше активной зоны и ниже ее, и все они окружены радиальными зонами воспроизводства высотой 1,6 метра. Все зоны воспроизводства состоят из мишеней из оксида обедненного урана, захватывающих нейтроны, выходящие из активной зоны. Воспроизводство плутония происходит именно в этом большом количестве урана-238. По-видимому, плутоний, образующийся в продольных и радиальных зонах воспроизводства, имеет схожие характеристики, но в данном проекте рассматривается только плутоний, образующийся в радиальных и радиальных зонах воспроизводства, имеет схожие характеристики, но в данном проекте рассматривается только плутоний, образующийся в радиальных зонах воспроизводства, имеет схожие характеристики, радиальной зоны воспроизводства, управляющие стержни безопасности (CSR) и разнообразные стержни безопасности (DSR) в равновесной конфигурации зоны. На рисунке 2 показано поперечное сечение внутренней и внешней активных зон и субсборок радиальной зоны воспроизводства.



Рисунок 1. Карта активной зоны индийского прототипа реактора-размножителя на быстрых нейтронах с электрической мощностью 500 МВт. Надписи на рисунке (сверху вниз): 1 – внутренняя активная зона; 2 – внешняя активная зона; 3 – радиальная зона воспроизводства.



Рисунок 2. Расположение топливных стержней в активной зоне и в субсборках радиальной зоны воспроизводства.

Стандартная схема эксплуатации реактора PFBR состоит из 180-суточного цикла работы на полной мощности и последующих 60 суток для выключения и перезагрузки топлива (в объеме одной трети от полной активной зоны). Напротив, субсборки радиальной зоны воспроизводства перезагружаются по несколько отличной схеме, так же основанной на глубине выгорания топлива. Типичной операцией на реакторе PFBR будет выгрузка субсборок радиальной зоны воспроизводства в течение стадии перезагрузки, на которой глубина выгорания приблизится к 1 МВт-сутки/кг. Поэтому радиальная зона воспроизводства подразделяется на три секции. Сорок две субсборки из зоны воспроизводства, расположенные ближе всего к активной зоне и облучаемые более сильным нейтронным потоком, заменяются после каждого 180-суточного цикла. Шесть субсборок из зоны воспроизводства заменяются после каждых двух циклов, и семьдесят две субсборки из зоны воспроизводства, расположенные дальше всего от активной зоны, до выгрузки облучаются на протяжении трех циклов.

### Тяжеловодный реактор под давлением

Подробная информация об индийском тяжеловодном реакторе PHWR с электрической мощностью 220 МВт и тепловой мощностью 756 МВт, использованная для разработки модели реакторных топливных связок для моделирования выгорания топлива, была получена из открытой литературы<sup>18</sup>. Индийский реактор PHWR представляет собой энергетический реактор с 306 горизонтальными трубками, охлаждаемыми тяжелой водой под давлением, и замедлителем из тяжелой воды (оксида дейтерия). В каждой трубке под давлением находятся 12 топливных связок длиной 490 миллиметров. Топливные связки состоят из 19 топливных стержней из диоксида урана в оболочке из циркония и располагаются в трех кольцах, как показано на рисунке 3.



Рисунок 3. Поперечное сечение модели топливной связки из 19 топливных стержней индийского реактора с тяжелой водой под давлением. Надписи на рисунке (от левого нижнего угла по часовой стрелке): 1 – тяжелая вода замедлителя (D<sub>2</sub>O); 2 – промежуток между трубкой нагревательного элемента и трубкой под давлением; 3 – топливные стержни из диоксида природного урана; 4 – тяжелая вода охладителя (D<sub>2</sub>O); 5 – трубка под давлением; 6 – трубка нагревательного элемента.

Реакторы типа PHWR перезагружаются без выключения, поскольку ценность топлива с диоксидом урана с природным изотопным составом (то есть с содержанием делящегося изотопа уран-235, равным 0,7 процента) уменьшается быстрее, чем у топлива из диоксида урана, используемым в реакторах с обычной водой, обогащаемым до 3 – 4 процентов урана-235. В среднем за одни эффективные сутки работы на полной мощности перезагружается 10 топливных связок<sup>19</sup>. В ходе операции перезагрузки на основании физических расчетов активной зоны выбирается заранее идентифицированная охладительная трубка под давлением. Четыре связки в трубке под давлением перестанавливаются и остаются в канале после завершения перезагрузки, а оставшиеся восемь связок извлекаются и заменяются свежими топливными связками<sup>20</sup>.

# Моделирование активных зон реакторов, расчеты переноса излучения и моделирование выгорания топлива

Моделирования выгорания активной зоны реактора выполнялись с использованием пакета программ моделирования переноса излучения по методу Монте-Карло MCNPX Version 2.7<sup>21</sup>. Программа для расчета выгорания и истощения CINDER90 встроена в пакет MCNPX-2.7<sup>22</sup>. Для моделирования реактора PFBR в циклах 180-суточной работы на полной мощностью с последующими 60 сутками с остановкой и перезагрузкой была построена подробная трехмерная модель активной зоны реактора PFBR, в которой учитывались все стержни. Для реактора были построены многочисленные последовательные наборы входных параметров, каждый из которых включал материал, соответствующий предыдущим выходным параметрам, что позволило обеспечить точное моделирование перезагрузки и изменения активной зоны по мере приближения к конфигурации равновесной активной зоны. эти компьютерные моделирования предоставили оценку изотопного состава плутония и состава продуктов деления в топливе, выгруженном из зон воспроизводства реактора PFBR.

Рассмотренные выше особенности перезагрузки реактора PHWR во время его работы также были включены в моделирование топливных связок, достигающих уровней глубины выгорания в 1 МВт-сутки/кг и 2 МВт-сутки/кг. В дополнение к моделированиям всей активной зоны также были проведены моделирования с использованием одиночной топливной связки, показанной на рисунке 3, с граничными условиями отражения и с шагом решетки, равным 228,6 мм. Было обнаружено, что изменения в концентрации изотопов продуктов деления и плутония, представляющих интерес для данного исследования, между моделированием на уровне одиночной топливной связки и моделированием всей активной зоны, не превышают 2 процентов. Поэтому для оценки концентраций плутония и продуктов деления в выгруженных топливных связках реактора PHWR выполнялось требующее меньших затрат компьютерных мощностей моделирование на уровне решетки одиночных топливных связок.

# РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

#### Энергетический спектр нейтронов

Как отмечалось выше, спектр нейтронов, которыми облучается топливо, заметно влияет на изотопный состав плутония и продуктов деления, присутствующих в отработавшем материале. Спектры нейтронов в 44 группах энергий, полученные при моделировании внутренней активной зоны реактора PFBR и одиночной связки реактора PHWR, приведены на рисунке 4.



Рисунок 4. Энергетические спектры нейтронов в прототипе реактора-размножителя на быстрых нейтронах (PFBR) и тяжеловодном реакторе под давлением (PHWR). По горизонтальной оси отложена энергия нейтронов в МэВ, по вертикальной оси – поток нейтронов в 1/см<sup>2</sup>с.

### Производство плутония оружейного качества

Существенное количество (SQ) плутония, определенное как приблизительная масса ядерного материала, для которой нельзя исключить возможности изготовления ядерного взрывного устройства, равна 8 кг<sup>23</sup>. При помощи моделирования выгорания с помощью пакета программ MCNPX-2.7 были получены оценки произведенного количества плутония, так же, как и его изотопного состава, в топливе с низкой глубиной выгорания на двух типов реакторов. Результаты моделирования показаны в таблицах 1 и 2.

Радиальная зона воспроизводства подразделяется на три группы перезагрузки для того, чтобы извлекать материал тогда, когда глубина его выгорания приближается к 1 МВт-сутки/кг. В таблице 1 показаны результаты для каждой группы в радиальной зоне воспроизводства.

Группы пронумерованы по количеству циклов, проведенных в реакторе до выгрузки. Группа сборок радиальной зоны воспроизводства, которая провела в реакторе три цикла, ближе всего приближается к целевой глубине выгорания в 1 МВт-сутки/кг. Результаты для этой "трехцикловой" группы сборок радиальной зоны воспроизводства будут использованы рассматриваемым далее результатам для выбранных изотопов.

В таблице 2 приводятся изотопные составы плутония, рассчитанные для одиночной топливной связки реактора PHWR при глубинах выгорания в 1 МВт-сутки/кг и 2 МВт-сутки/кг. Результаты в таблице 2 показывают, что плутоний, произведенный при обеих уровнях глубины выгорания является плутонием оружейного качества. Для обеих уровней глубины выгорания концентрация плутония-238 будет меньше 0,01 процента. Хотя в каждой топливной связке производится от 10 до 20 граммов плутония, следует отметить, что в активной зоне реактора PHWR находится 3 672 топливные связки.

Таблица 1. Плутоний, произведенный в областях радиальной зоны воспроизводства реактора-размножителя на быстрых нейтронах.

Время облучения в	Число	Выгорание,	Общая масса		Изотопный	й состав плу	/тония (%)	
180-суточных циклах	сборок	МВт⋅сутки/кг	Pu, кг	Плуто-	Плуто-	Плуто-	Плуто-	Плуто-
		-		ний-238	ний-239	ний-240	ний-241	ний-242
3	72	1,017	99,15	<0,01	98,02	1,93	0,04	<0,01
2	6	1,3	8,67	<0,01	98,18	1,78	0,03	<0,01
1	42	0,71	34,87	<0,01	98,97	1,02	0,01	<0,01

Таблица 2. Плутоний, произведенный в одиночной топливной связке тяжеловодного реактора под давлением.

Время облучения	Выгорание,	Общая масса	Изотопный состав плутония (%)				
(в сутках)	МВт⋅сутки/кг	Pu, г	Плуто-	Плуто-	Плуто-	Плуто-	Плуто-
			ний-238	ний-239	ний-240	ний-241	ний-242
24 (и 60 суток распада)	1,012	10,23	<0,01	95,98	3,78	0,23	0,01
48 (и 60 суток распада)	2,025	21,96	<0,01	91,54	7,58	0,83	0,04

# Разработка и выбор изотопных отношений

Для связывания материала с реактором-источником необходим анализ различных изотопов. Еогнчной целью является разработка набора изотопных отношений, способного выявить источник выделенного плутония оружейного качества. В таблицах 3 и 4 перечислены выбранные изотопы вместе с ожидаемой массой и активностью каждого изотопа, которые могут присутствовать в 1 кг выделенного плутония. Одним из преимуществ представления выбранных изотопов относительно к массе плутония является возможность масштабирования данных по массе перехваченного плутония оружейного качества. При экспериментальных расследованиях несколько микрограммов плутония вполне достаточны для обнаружения загрязнения продуктами деления. Выбор был основан на следующих предпосылках: (а) количестве произведенного изотопа, по крайней мере равного нескольким пикограммам на килограмм плутония; (б) вероятности обнаружения (высокой энергии гамма-квантов, превышающей 100 кэВ, большого периода полураспада, превышающего 100 дней, высокой активности, превышающей 2 микрокюри); (в) зависимости производства изотопа от типа реактора; и (г) коэффициента очистки (DF) от изотопа в процессе переработки "ПУРЕКС". Специфические для элемента коэффициенты очистки в открытой литературе найти не удалось, так что было принято универсальное значение этого коэффициента, равное 10<sup>6</sup>. Поскольку одно и то же значение коэффициента было применено для всех изотопов, кроме изотопов плутония, эта величина все еще остается важной характеристикой. При условии, что материал был выделен, продукты деления в практически чистом плутонии будут приведены к следовым составляющим. Для продуктов деления с малым выходом введение коэффициента вочистки при выделении приведет к не обнаружимым уровням. В таблицах 3 и 4 изотопы классифицируются по четырем группам на основании метода обнаружения и возможной скорости получения результатов, а именно: быстрые гаммалучи, альфа-частицы, прочие гамма-лучи и масс-спектрометрия. В гамма-спектрометрии результаты могут быть получены в течение нескольких часов, в то время как в альфа-спектроскопии и масс-спектрометрии для получения результатов могут соответственно понадобиться дни или недели.

В таблицах 3 и 4 приведены ожидаемые массы и активности выбранных изотопов на килограмм выделенного плутония оружейного качества, произведенного на реакторах PFBR и PHWR. Отношение массы изотопа к единице массы плутония от реактора PHWR, деленное на отношение массы изотопа к единице массы плутония от реактора PFBR при глубине выгорания топлива в 1 МВт-сутки/кг отражает зависимость отношения изотопов от типа реактора. Эти значения приведены в таблице 5. Некоторые важные характеристики результатов из таблиц 3, 4, и 5 обсуждаются в следующих абзацах. Удельная активность цезия-137 и церия-144 в расчете на 1 кг плутония достаточно высока и гаммаспектрометрические измерения могут быть проведены довольно быстро (оперативные измерения) после того, как такой материал был перехвачен. Как цезий-137, так и серий-144 претерпевают бета-распад, сопровождающийся гамма-излучением с энергиями 662 кэВ и 134 кэВ соответственно. Интересным изотопом для иллюстрации зависимости от типа реактора является цезий-137, часто используемый для мониторинга глубины выгорания.

Таблица 3. Выбранные изотопы в расчете на килограмм плутония, выделенного в процессе переработки "ПУРЕКС" из топлива из радиальной зоны воспроизводства прототипа реактора-размножителя на быстрых нейтронах.

Изотоп-кандидат	Ожидаемая масса (г)	Ожидаемая активность (Ки)					
	на 1 кг плутония при DF = 10 <sup>6</sup>	на 1 кг плутония при DF = 10 <sup>6</sup>					
	Быстрые гамма-лучи						
Цезий-137	3,29E-06	2,86E-04					
Церий-144	1,14E-06	3,62E-03					
	Альфа-частицы						
Плутоний-239	9,80E+02	6,08E+01					
Плутоний-242	2,92E-03	1,15E-05					
	Прочие гамма-лучи						
Цезий-134	4,57E-08	5,92E-05					
Сурьма-125	2,73E-08	2,86E-05					
Европий-154	1,54E-08	4,17E-06					
Масс-спектрометрия							
Рубидий-85	1,87E-07	Стабильный изотоп					
Стронций-90	1,12E-06	1,58E-04					
Неодим-148	1,04E-06	Стабильный изотоп					
Прометий-147	9,59E-07	8,89E-04					
Самарий-150	6,23E-08	Стабильный изотоп					

Таблица 4. Выбранные изотопы в расчете на килограмм плутония, выделенного в процессе переработки "ПУРЕКС" из топлива из тяжеловодного реактора под давлением с малой глубиной выгорания.

Изотоп-кандидат	Глубина выгорания 1 MBт⋅сутки/кг		Глубина выгорания 2 MBт сутки/кг			
	Ожидаемая масса (г) на 1 кг Ри при DF = 10 <sup>6</sup>	Ожидаемая актив- ность (Ки) на 1 кг Ри при DF = 10 <sup>6</sup>	Ожидаемая масса (г) на 1 кг Ри при DF = 10 <sup>6</sup>	Ожидаемая актив- ность (Ки) на 1 кг Ри при DF = 10 <sup>6</sup>		
		Быстрые гамма-лучи				
Цезий-137	4,23E-05	3,68E-03	4,46E-05	4,04E-03		
Церий-144	3,22E-05	1,03E-01	3,33E-05	1,06E-01		
		Альфа-частицы				
Плутоний-239	9,60E+02	5,95E+01	9,15E+02	5,69E+01		
Плутоний-242	5,60E-02	2,21E-04	4,29E-02	1,70E-03		
Прочие гамма-лучи						
Цезий-134	1,30E-07	1,68E-04	3,92E-07	5,07E-04		
Сурьма-125	2,37E-07	2,48E-04	2,92E-07	3,06E-04		
Европий-154	5,22E-08	1,41E-05	1,26E-07	3,40E-05		
Масс-спектрометрия						
Рубидий-85	3,74E-06	Стабильный изотоп	3,89E-06	Стабильный изотоп		
Стронций-90	2,43E-05	3,43E-03	2,52E-05	3,56E-03		
Неодим-148	1,31E-05	Стабильный изотоп	1,46E-05	Стабильный изотоп		
Прометий-147	1,48E-05	1,38E-02	1,52E-05	1,41E-02		
Самарий-150	6,67E-06	Стабильный изотоп	8,24E-06	Стабильный изотоп		

Было обнаружено, что отношение выбранного продукта деления к плутонию предоставляет больше информации, и приводит к большим различиям между реакторами, чем просто абсолютная распространенность конкретного изотопа. Например, радиоизотоп цезий-137 является привлекательным кандидатом для выбора. Индивидуальный выход при делении высок и равен примерно 6 процентам, его длительный период полураспада превышает 30 лет, и его гамма-излучение легко измеряется. Однако, цезий-137 является прямым продуктом деления с постоянным выходом, не зависимым от делящегося изотопа или энергии нейтрона. Количество цезия-137 может предоставить информацию о глубине выгорания материала, но не информацию, относящуюся к реактору-источнику. Тем не менее, в настоящем исследовании было обнаружено, что отношение цезия-137 к плутонию в реакторах PFBR и PHWR существенно различно. Отношения продуктов деления к плутонию позволяют отличать реакторы на быстрых и на тепловых нейтронах. Большей частью это связано с количеством плутония, размножающегося в реакторе PFBR. В реакторе PFBR, помимо влияния интенсивного спектра быстрых нейтронов, мишени из обедненного урана содержат большее количество урана-238. Поэтому радиальная зона воспроизводства в реакторе PFBR производит гораздо больше плутония в расчете на первоначальную загрузку урана (приблизительно 1 процент), чем в реакторе PHWR (приблизительно 0,1 процента).

Таблица 5. Зависимость выбранных отношений изотопов от типа реактора для тяжеловодного реактора под давлением (PHWR) и реактора-размножителя на быстрых нейтронах (PFBR).

Изотоп-кандидат	Отношение ожидаемых масс PHWR/PFBR			
	Быстрые гамма-лучи			
Цезий-137	12,86			
Церий-144	28,54			
	Альфа-частицы			
Плутоний-239	0,98			
Плутоний-242	19,17			
Прочие гамма-лучи				
Цезий-134	2,84			
Сурьма-125	8,68			
Европий-154	3,39			
	Масс-спектрометрия			
Рубидий-85	20,00			
Стронций-90	21,69			
Неодим-148	12,59			
Прометий-147	13,43			
Самарий-150	107,06			

Радиоактивность изотопов плутония-239 и плутония-242 в 1 кг плутония достаточно велика для того, чтобы провести альфа-спектрометрические измерения. Однако, для выполнения альфа-спектрометрии необходимо провести подготовку образцов, что делает этот метод измерений более медленным по сравнению с быстрыми измерениями гамма-излучения. Плутоний-239 и плутоний-242 распадаются с испусканием альфа-частиц с энергиями, соответственно равными 5156 кэВ и 4901 кэВ. Такие энергии достаточно различны для того, чтобы однозначно отождествить их в спектрах альфа-частиц. Различить быстрый или тепловой спектр нейтронов в источнике, вероятно, можно будет по одним измерениям плутония-239 и плутония-242 по методам альфа-спектрометрии или масс-спектрометрии. Отношение концентраций плутония-239 для реакторов PHWR и PFBR равно 0,98, в то время как для плутония-242 оно равно 19,15. Это показывает, что в плутонии, образующемся под действием быстрых нейтронов, содержится намного меньше плутония-242. Так происходит в результате относительных различий в поперечных сечениях поглощения нейтронов и деления нейтронами при изменении энергии нейтронов. В топливе зоны воспроизводства реактора PFBR наблюдаются меньшие концентрации тяжелых изотопов плутония, в частности, плутония-241 и плутония-242, из-за того, что деление быстрыми нейтронами гораздо более вероятно, чем радиационный захват.

Следующий набор изотопов, цезий-134, сурьма-125 и европий-154, также предлагается для измерений по методу гамма-спектрометрии. Однако, активность этих излучающих гамма-кванты изотопов на порядки величины меньше, чем у изотопов для быстрой гамма-спектрометрии (цезия-137 и церия-144). Массспектрометрический метод может быть применен для изотопов рубидий-85, стронций-90, неодим-148, промеотий-147 и самарий-150. Изотопы рубидий-85, неодим-148, и самарий-150 стабильны, и, следовательно, они не могут быть обнаружены при помощи радиационных измерений. Изотопы стронций-90 и прометий-147 излучают только бета-частицы без сопровождающего гамма-излучения. Среди изотопов, предлагаемых для исследования масс-спектрометрическим методов, наиболее интересен самарий-150. Отношение концентраций самария-150 для реакторов PHWR и PFBR равно 107; это означает, что плутоний, производимый на реакторе с тепловым спектром нейтронов, будет загрязнен самарием-150 на два порядка величины сильнее, чем плутоний из реакторов на быстрых нейтронах. Источником столь большого различия является влияние поперечного сечения радиационного захвата на ядрах хорошо известного поглотителя нейтронов в продуктах деления самария-149. Кривая зависимости поперечного сечения радиационного захвата на ядрах самария-149 от энергии падающего нейтрона показана на рисунке 5<sup>24</sup>. Как видно из рисунка 4, доминирующая область в нейтронном спектре реактора PFBR расположена в диапазоне от 100 кэВ до 400 кэВ, в то время как доминирующая область в нейтронном спектре реактора PHWR находится в диапазоне от 0,01 до 0,1 эВ. Сравнивая эти доминирующие области с кривой поперечного сечения на рисунке 5, можно увидеть, что поперечное сечение поглощения нейтронов на самарии-149 в реакторе PFBR меньше 1 барна, в то время как поперечное сечение поглощения нейтронов на самарии-149 в реакторе PHWR примерно равно 1E+5 барн. Поэтому такая разница в поглощении нейтронов на самарии-149 является причиной большого отношения концентраций самария-150 для реакторов PHWR и PFBR (равного 107).



Рисунок 5. Зависимость поперечного сечения радиационного захвата нейтронов от энергии для самария-149. По горизонтальной оси отложена энергия нейтронов в МэВ, по вертикальной оси – поперечное сечение реакции радиационного захвата нейтронов на Sm-149 в барнах.

# Изотопные отношения для одного элемента

Хотя изотопы элемента могут обладать совершенно различными особенностями ядерных реакций, их химические свойства очень близки. Тот факт, что изотопы элемента имеют аналогичные химические свойства, означает, что во время разделения в процессе "ПУРЕКС" они будут вести себя одинаково<sup>25</sup>. Поэтому выбор изотопных отношений одного элемента может раскрыть подробные сведения о системе реактора, оставаясь независимым от используемого процесса химического разделения. В таблице 6 приведены отношения количеств изотопов одного и того же элемента в плутонии оружейного качества, произведенного в реакторах PFBR и PHWR. Значения изотопных отношений, найденные в плутонии из реактора PHWR затем делятся на значения для реактора PFBR для того, чтобы представить зависимость изотопа от реактора для одинаковых отношений элементов.

Таблица 6. Отношения масс для изотопов одного и того же элемента для тяжеловодного реактора под давлением (PHWR) и реактора-размножителя на быстрых нейтронах (PFBR).

Отношение изотопов	Отношение масс изотопов из PHWR	Отношение масс изотопов из PFBR	Сравнение реакторов PHWR/ PFBR
<sup>137</sup> Cs/ <sup>134</sup> Cs	3,25E+02	8,00E+01	4,07
<sup>144</sup> Ce/ <sup>142</sup> Ce	8,04E-01	4,18E-01	1,92
<sup>150</sup> Sm/ <sup>154</sup> Sm	8,88E+00	5,04E-01	17,6
<sup>242</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu	5,83E-05	2,89E-06	20,2

Отношение цезия-137 к цезию-134 наблюдаемо отличается, в то время как разница отношений самария-150 к самарию-154 и плутония-242 к плутонию-239 между реакторами PHWR и PFBR составляет больше порядка величины. Эти три отношения могут быть соответственно измерены с помощью гамма-спектроскопии, масс-спектрометрии и альфа-спектроскопии. Поэтому получение информации о производственном реакторе из изотопных отношений для одного и того же элемента вполне возможно. Преимущество таких отношений состоит в том, что не нужно определять, какой процесс химического разделения был использован, и применять соответствующие коэффициенты очистки. Из таблиц 5 и 6 следует, что как отношения продуктов деления к плутонию (таблица 5), так и отношения изотопов одного и того же элемента (таблица 6) можно независимо использовать для определения того, был ли плутоний оружейного качества изготовлен на тяжеловодном реакторе PHWR или на реакторе-размножителе PFBR. Тем не менее, для любого аналитического расследования желательно подтверждать результаты, используя несколько разнообразных сигнатур.

### Стохастическая неопределенность

Пакет программ MCNPX, использованный для моделирования работы активной зоны, основан на принципах статистических стохастических методов для решения уравнения радиационного переноса Больцмана. Изза стохастической природы метода решения моделирования выгорания повторялись с изменением процедур выборки для того, чтобы оценить стохастическую неопределенность (случайную ошибку), связанную с предсказываемыми значениями концентраций изотопов продуктов деления и плутония. Моделирования выгорания повторялись с изменением начального числа последовательности псевдослучайных чисел (метод, используемый в пакете МСПР для изменения процедур стохастической выборки); для каждого моделирования была произведена оценка концентраций изотопов. Среднее значение массы (и) и стандартное отклонение (о) рассчитывались по результатам девяти независимых моделирований. Была получена относительная случайная ошибка (d/µ) для выбранных изотопов и было найдено, что во всех случаях она оказалась несущественной (0,37 процента, или менее, для каждого изотопа). Такая малая случайная ошибка показывает, что различия в изотопном составе, обнаруженные при моделировании реактора, не связаны со случайным поведением метода Монте-Карло. В моделировании процесса существует возможность появления других источников ошибок, которые могут повлиять на изотопные отношения. В методах Монте-Карло имеется два вида неопределенностей: случайные и систематические. Систематическая неопределенность связана с тем, насколько модель близка к реальности. Мы предполагаем, что систематическая неопределенность мала.

# выводы

Были разработаны подробные вычислительные модели активных зон реактора PFBR с электрической мощностью 500 МВт и реактора PHWR с электрической мощностью 220 МВт и были проведены моделирования выгорания топлива с использованием пакета программ для расчета переноса излучения MCNPX. Задачей моделирования выгорания в активной зоне реактора была оценка количества изотопов плутония и продуктов деления, содержащегося в топливе, выгружаемом при малых уровнях глубины выгорания. Моделирование реактора PFBR соответствовало нормальной эксплуатации с радиальной зоной воспроизводства, достигающей уровня глубины выгорания около 1 МВт-сутки/кг. Моделирование реактора PHWR соответствовало преднамеренной выгрузке топливных связок при уровне глубины выгорания 1 МВт-сутки/кг и 2 МВт-сутки/кг. Изотопный состав плутония в топливе с такими малыми уровнями глубины выгорания будет соответствовать плутонию оружейного качества и задачей исследования было определение отношений следовых продуктов деления к плутонию и изотопных отношений для одного и того же элемента (для исключения неопределенности, связанной с переменным коэффициентом очистки) в выделенном плутонии оружейного качества для целей ядерного расследования.

Результаты моделирования для обеих реакторов показали, что при низких уровнях глубины выгорания состав плутония соответствует оружейному качеству, а произведенные количества будут существенными.

После химического выделения плутония в операциях переработки в выделенном плутонии будут оставаться следовые количества продуктов деления. Некоторые продукты деления представляются хорошими индикаторами типа реактора, используемого для производства плутония. Эти кандидаты были разделены на четыре группы в соответствии с аналитическими методами, наиболее пригодными для их соответствующей количественной характеризации (быстрые измерения гамма-излучения, задержанные измерения альфаизлучения, медленные измерения гамма-излучения, и масс-спектрометрия). Четыре группы оцененных отношений следовых продуктов деления к изотопам плутония (после применения коэффициента очистки в процессе "ПУРЕКС", равных 10<sup>6</sup>) будут полезными для целей ядерных расследований в случае перехвата плутониевого материала, поскольку некоторые из отношений между плутонием, произведенным на реакторе на тепловых нейтронах, и плутонием, произведенным на реакторе на быстрых нейтронах, являются существенными и измеримыми. Эти изотопные отношения, полученные в модели реактора PFBR на быстрых нейтронах и в модели реактора PHWR на тепловых нейтронах, сравнивались при одинаковых уровнях глубины выгорания топлива. Сравнения показали, что в случае перехвата набор выбранных изотопных отношений может приписать выделенный плутоний оружейного качества реактору PFBR или реактору PHWR. Этот выбор определяется тем, что в данном исследовании сравнивались только два типа реакторов. Однако, в общем случае выбранные изотопные отношения таковы, что они могут быть применены к приписыванию плутония к системе реактора-источника как на быстрых нейтронах, так и на тепловых нейтронах.

Были исследованы изотопные отношения для одного и того же элемента. Анализ отношений цезия-137 к цезию-134, самария-150 к самарию-154, и плутония-242 к плутонию-239 показал, что такие отношения могут привести к приписыванию к системе реактора-источника независимо от процесса химического разделения, используемого для выделения плутония.

Были проведены оценки неопределенности для предсказанных концентраций изотопов в выгоревшем топливе из-за стохастической природы моделирования на пакете программ MCNPX. Оцененные для концентраций изотопов случайные ошибки несущественны и они указывают на то, что различия в изотопном составе между моделированиями реакторов не связаны со случайным поведением метода Монте-Карло.

## ФИНАНСИРОВАНИЕ

Финансирование было предоставлено совместной программой Национального исследовательского фонда (NSF) и Министерства национальной безопасности (DHS) "Академическая исследовательская инициатива" (ARI) (NSF Grant No. ECCS-1140018 и DNDO-2012-DN-077-ARI1057-02&03). Выраженные авторами точки зрения и выводы принадлежат исключительно авторам и не представляют официальной позиции Национального научного фонда или Министерства национальной безопасности.

## ПРИМЕЧАНИЯ И ССЫЛКИ

- Nuclear Forensics and Attribution Act, H.R. 730, 111th Cong (2010), http://www.govtrack.us/congress/ bills/111/hr730.
- World Nuclear Association, "Safeguards to Prevent Nuclear Proliferation," (2014), http://www.world-nuclear.org/ info/Safety-and-Security/Non-Proliferation/Safeguards-to-Prevent-Nuclear-Proliferation/#.Ubom\_Pk3t8E.
- 3. J. C. Mark, "Explosive Properties of Reactor-Grade Plutonium," Science and Global Security 4 (1993): 111–128.
- 4. International Atomic Energy Agency, Communication dated 25 July 2008 received from the Permanent Mission of India concerning a document entitled "Implementation of the India-United States Joint Statement of July 18, 2005: India's Separation Plan" (Vienna: IAEA, 2008), http://www. iaea.org/sites/default/files /publications/documents/infcircs/2008/infcirc731.pdf.
- S. C. Chetal, V. Balasubramaniyan, P. Chellapandi, P. Mohanakrishnan, P. Puthiyavinayagam, C. P. Pillai, S. Raghupathy, T. K. Shanmugham, and C. S. Pillai, "The Design of the Prototype Fast Breeder Reactor," *Nuclear Engineering and Design* 236 (2006): 852–860.
- 6. S. S. Bajaj and A. R. Gore, "The Indian PHWR," Nuclear Engineering and Design 236 (2006): 701–722.
- A. Glaser and M. V. Ramana, "Weapon-Grade Plutonium Production Potential in the Indian Prototype Fast Breeder Reactor," *Science and Global Security* 15 (2007): 85–105.
- 8. S. S. Bajaj and A. R. Gore, "The Indian PHWR," (ссылка 6) 701–722.
- W. S. Charlton, B. L. Fearey, C. W. Nakhleh, T. A. Parish, R. T. Perry, J. Poths, J. R. Quagliano, W. D. Stanbro, and W. B. Wilson, "Operator Declaration Verification Technique for Spent Fuel at Reprocessing Facilities," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* B 168 (2000): 98–108.
- M. R. Scott, "Nuclear Forensics: Attributing the Source of Spent Fuel Used in an RDD Event." Master's thesis, Texas A&M University, College Station, TX (2005): http://hdl.handle.net/1969.1/2368.
- 11. M. Wallenius, P. Peerani, and L. Koch, "Origin Determination of Plutonium Material in Nuclear Forensics," *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 246 (2000): 317–321.
- A. G. Croff, "ORIGEN2: A Versatile Computer Code for Calculating the Nuclide Compositions and Characteristics of Nuclear Materials," *Nuclear Technology* 62 (1983): 335–352.
- A. Glaser, "Isotopic Signatures of Weapon-Grade Plutonium from Dedicated Natural Uranium-Fueled Production Reactors and Their Relevance for Nuclear Forensics Analysis," *Nuclear Science and Engineering* 163 (2009): 26–33.
- 14. P. D. Wilson, The Nuclear Fuel Cycle: From Ore to Waste (New York: Oxford University Press, 2001).
- M. Benedict, T. H. Pigford, and H. W. Levi, *Nuclear Chemical Engineering*, Second Edition, McGraw-Hill Series in Nuclear Engineering, (New York: McGraw-Hill, 1981).
- 16. P. D. Wilson, The Nuclear Fuel Cycle (ссылка 14).
- 17. S. C. Chetal et al., "The Design of the Prototype Fast Breeder Reactor," (ссылка 5) 852-860; S. S. Chirayath, G.

Hollenbeck, J. Ragusa, and P. Nelson, "Neutronic and Nonproliferation Characteristics of (PuO2-UO2) and (PuO2-ThO2) as Fast Reactor Fuels," *Nuclear Engineering and Design* 239 (2009): 1916–1924.

- 18. S. S. Bajaj and A. R. Gore, "The Indian PHWR," (ссылка 6) 701–722; K. D. Kok, *Nuclear Engineering Handbook* (New York: CRC Press, Taylor & Francis, 2009).
- 19. К. D. Kok, Nuclear Engineering Handbook (ссылка 18).
- 20. S. S. Bajaj and A. R. Gore, "The Indian PHWR," (ссылка 6) 701–722.
- 21. D. B. Pelowitz, Editor, "MCNPX User's Manual, Version 2.7.0," LA-CP-11-00438 Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, N.M. (April 2011).
- J. Hendricks, G. Mckinney, M. Fensin, M. James, R. Johns, J. Durkee, J. Finch, D. Pelowitz, L. Waters, M. Johnson, and F. Gallmeier, "MCNPX 2.6.0 Extensions," LA-UR-08-2216, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, N.M. (April 2008).
- 23. International Atomic Energy Agency, *Safeguards Glossary 2001 Edition, International Nuclear Verification Series No.3* (Vienna: IAEA, 2002), http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/nvs-3-cd/PDF/NVS3\_prn.pdf.
- 24. V. Zerkin, "IAEA-Nuclear Data Section," Multi-platform EXFOR-CIDNA-ENDF Project, *NDS, International Atomic Energy Agency*, Vienna (1999–2013).
- 25. M. Benedict, T. H. Pigford, and H. W. Levi, Nuclear Chemical Engineering (ссылка 15).