

На правах рукописи

Горбунова Антонина Юрьевна

**КОМПЛЕКСНЫЙ МЕТОД НЕРАЗРУШАЮЩИХ ИЗМЕРЕНИЙ
ИЗОТОПНОГО СОСТАВА И МАССЫ ПЛУТОНИЯ**

Специальность 2.4.9 – «Ядерные энергетические установки, топливный цикл,
радиационная безопасность»

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук



Москва 2023

Работа выполнена в Акционерном обществе «Высокотехнологическом научно-исследовательском институте неорганических материалов имени академика А.А. Бочвара» (АО «ВНИИНМ»)

Научный руководитель: **Рогожкин Владимир Юрьевич**
кандидат физико-математических наук, начальник лаборатории ядерно-физических исследований и измерений АО «ВНИИНМ», г. Москва

Официальные оппоненты: **Хомяков Юрий Сергеевич**
доктор физико-математических наук, начальник отдела науки, АО «Прорыв», г. Москва

Полухина Наталья Геннадьевна
доктор физико-математических наук, заведующая лабораторией, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки «Физический институт имени П.Н. Лебедева», г. Москва

Давиденко Владимир Дмитриевич
Доктор технических наук, руководитель отделения физики и моделирования Энергетики, Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт», г. Москва

Защита состоится 06 декабря 2023 г. в 15:00 на заседании диссертационного совета МИФИ.2.02 федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ» (115409, г. Москва, Каширское шоссе, 31).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте <http://ds.mephi.ru> федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ».

Автореферат разослан « ____ » _____ 2023 г.

Ученый секретарь диссертационного совета
кандидат технических наук, доцент

Е.Г. Куликов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность проблемы. Стратегия развития ядерной энергетики страны предусматривает замыкание топливного цикла по плутонию в реакторах на быстрых нейтронах. Концептуально разрабатываемые реакторы на быстрых нейтронах должны иметь запас реактивности меньше $\beta_{эфф.}$ – для исключения возможности аварии на мгновенных нейтронах, и обладать эффективным коэффициентом воспроизводства в активной зоне около 1 – для воспроизводства топлива. Удовлетворение обоих этих условий одновременно приводит к жестким требованиям к однородности изотопного состава плутония в топливе.

В отличие от урана, стабильность изотопного состава которого в изготавливаемом топливе обеспечивается технологией обогащения первичного или регенерированного сырья изотопом ^{235}U , изотопный состав энергетического плутония в продукции радиохимического завода варьируется в широких пределах. В связи с этим для обеспечения однородности топлива необходимы данные об изотопном составе и массе плутония в каждой отдельной упаковке партий хранения сырья – диоксида плутония, измеренные с высокой точностью. Для контроля продукции промышленного производства производительностью несколько тонн плутония в год могут быть применены только неразрушающие методы, так как повторное вскрытие упаковок для отбора пробы крайне осложнено. Особенно актуальным неразрушающий контроль становится в случае длительного, на практике – до десятков лет, хранения. Также он поможет решить проблему обращения с непаспортизованным по изотопному составу плутонием.

Несмотря на то, что ядерно-физическими неразрушающими методами контролируют динамику радиохимических процессов, концентрацию плутония в растворах и содержание в отходах, определяют степень очистки продукции от радиоактивных примесей и др., их применение для контроля массы и изотопного состава плутония в упаковках с продукцией в настоящее время ограничено только подтверждающими измерениями. Основная причина – невозможность γ -спектрометрического определения ^{242}Pu . Поэтому в подтверждающих измерениях массовую долю ^{242}Pu берут из паспортных данных, если они имеются, или используют изотопные корреляции, что снижает точность и достоверность анализа. При этом точность измерения массы плутония γ -спектрометрическим методом и методом нейтронных совпадений остается довольно низкой: относительная погрешность составляет 10 – 20 % при доверительной вероятности 0,95.

Таким образом, разработка высокоточного неразрушающего метода измерений изотопного состава и массы плутония, включающего измерение массовой доли ^{242}Pu , является актуальной задачей для производства уран-плутониевого смешанного топлива реакторов на быстрых нейтронах. Также данные по изотопному составу и массе плутония необходимы по требованиям учета и контроля ядерных материалов при приеме-передаче и при физических инвентаризациях.

Цель работы.

Главной целью работы является разработка и обоснование нового неразрушающего и беспробоотборного метода контроля массы и изотопного состава плутония и оценка его метрологических характеристик.

Для достижения поставленной цели необходимо решить следующие задачи.

1. Исследовать метрологические характеристики гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония.
2. Стабилизировать калориметрические измерения тепловыделения плутония.
3. Разработать новый метод калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, позволяющий устранить систематический сдвиг, связанный с приближенностью модели метода.
4. Разработать методический подход к неразрушающим измерениям изотопного состава и массы плутония, включающий измерение содержания ^{242}Pu в плутонии.

Научная новизна.

1. Разработан новый комплексный высокоточный метод неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония, включающий измерение массовой доли ^{242}Pu .
2. Впервые разработан метод калибровки счетчиков множественности нейтронов по плутониевым образцам.
3. Развита новая методология оценки метрологических характеристик гамма-спектрометрических измерений, позволившая повысить точность измерений изотопного состава плутония.

Практическая ценность работы.

1. По результатам исследований были разработаны гамма-спектрометрическая, калориметрическая и нейтронометрическая методики измерений. Был разработан и обоснован комплексный метод измерений, включающий перечисленные методики и метод расчета изотопного состава и массы плутония.

2. Методики измерений аттестованы и внедрены в систему измерений АО «ВНИИНМ» И 22-2021 «ИСМ. Программа измерений ядерных материалов в зоне баланса ядерных материалов мирного назначения № 2 АО «ВНИИНМ», что подтверждено Актом внедрения от 20.04.2022 г. № 26/187-акт.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Методология оценки метрологических характеристик гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония, с использованием программы для обработки спектров MGA.

2. Метод калибровки детекторов множественности по стандартным образцам, аттестованным по массе и изотопному составу плутония.

3. Комплексный метод измерений изотопного состава и массы плутония, включающего измерение массовой доли ^{242}Pu .

Достоверность результатов и выводов обеспечивается следующим:

1. Аттестацией методик измерений:
 - МВИ № 1/393–2017 «Уран и его соединения. Гамма-спектрометрическая методика измерения массовой доли урана-235 в уране с использованием программы MGAU»;
 - МВИ № 2/393–2017 «Плутоний и его соединения. Гамма-спектрометрическая методика измерений изотопного состава плутония и америция-241»;
 - МВИ № 5/393–2021 «Плутоний. Методика измерений тепловой мощности образцов с применением калориметра модели ML-3.0/15 производства ЛАНЛ»;
 - МВИ № 6/393–2021 «Плутоний. Методика измерений тепловой мощности образцов с применением калориметра модели 601 производства корпорации «ANTECH»;
 - МВИ № 7/393–2020 «Плутоний. Измерение эффективной массы изотопа плутоний-240 методом множественности нейтронов».
2. Экспертным заключением № 531/507–2022 по результатам метрологической экспертизы методики расчета № 8/393–2021 «Плутоний. Комплексный метод расчета изотопного состава и массы».

Личный вклад соискателя заключается:

- в сборе и анализе литературных данных по теме исследования;
- в планировании и подготовке экспериментальных исследований по разработке гамма-спектрометрических, калориметрических и нейтронометрических методик определения массы и изотопного состава плутония;
- в выполнении экспериментальных исследований, анализе интерпретации их результатов;
- в обосновании и оценке метрологических характеристик методик измерений;

- в разработке нового способа калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, с применением подхода Фейнмана;
- в разработке комплексного метода неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония, который был внедрен в программу измерений ядерных материалов в зоне баланса ядерных материалов мирного назначения № 2 АО «ВНИИНМ».

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, 5 глав, заключения, списка использованной литературы, 8 приложений. Материалы диссертации изложены на 170 страницах, содержат 56 таблиц, 26 рисунков, список цитируемой литературы из 90 наименований и включают 8 приложений на 25 страницах.

Апробация результатов. Основные результаты диссертационных исследований комплексного метода измерений изотопного состава и массы плутония докладывались и обсуждались на:

1. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин. Комплекс ядерно-физических измерений ОАО «ВНИИНМ». Всероссийской научно-технической конференции «МАЯТ–2014». – Звенигород, 7–9 октября 2014.
2. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин. Ядерно-физические методики в системе измерений ядерных материалов ОАО «ВНИИНМ». Всероссийской научно-технической конференции «МАЯТ–2014». – Звенигород, 7–9 октября 2014.
3. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин. Учет и контроль ядерных материалов. Нормы точности измерений. Всероссийской научно-технической конференции «МАЯТ–2014». – Звенигород, 7–9 октября 2014.
4. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин. Методология исследований метрологических характеристик MGA/MGAU-метода измерений изотопного состава плутония и урана. Всероссийской научно-технической конференции «МАЯТ–2014». – Звенигород, 7–9 октября 2014.
5. А.Ю. Горбунова, А.А. Крамчанинов. Определение характеристик ядерных материалов с применением комплексных ядерно-физических и масс-спектрометрических методов измерений. Симпозиуме по гарантиям «МАГАТЭ–2014». – Австрия, Вена. 20–24 октября 2014.
6. А.Ю. Горбунова, С.Н. Щербин. Возможности аналитического отдела ОАО «ВНИИНМ» по получению информации для исследования инцидентов с НОЯМ и повышение эффективности их деятельности. Научно-техническом совете № 11 (НТС № 11 Госкорпорации «Росатом») Заседание № 4. – Москва. 24 марта 2014.

7. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин. Алгоритм калибровки детекторов множественности нейтронов (контроль плутония). 34–ом Бочваровском конкурсе-2015. АО «ВНИИНМ». – Москва. 20 октября 2015.
8. А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин, Смирнов Д.И., Стрельцов О.А., Тимошин В.И. Аппаратурно-методический ядерно-физический измерительный комплекс АО «ВНИИНМ». 39–ом Бочваровском конкурсе–2020. АО «ВНИИНМ». – Москва. 20–25 ноября 2020.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность применения комплексного метода неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония непосредственно в контейнерах хранения, включающего одновременное использование гамма-спектрометрических, калориметрических и нейтронометрических (метод множественности нейтронов) измерений, в связи с созданием комплекса технологий замкнутого топливного цикла. Для его обоснования была разработана методология гамма-спектрометрических измерений, разработан метод экстраполяции для стабилизации калориметрических измерений тепловыделения, разработан метод калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, позволяющий устранить систематический сдвиг, связанный с приближенностью модели метода. Сформулированы цель работы и решаемые задачи, указаны научная новизна и практическая ценность, изложены основные положения, выносимые на защиту.

В первой главе приведен обзор проблемы контроля изотопного состава и массы плутония в замкнутом топливном цикле и методов измерений.

Для осуществления стратегии развития атомной энергетики в России реализуется проектное направление «Прорыв», в рамках которого разрабатывается комплекс технологий с реакторами на быстрых нейтронах с естественной безопасностью. В части создания опытно-демонстрационного энергокомплекса (ОДЭК) согласно дорожной карте верхнего уровня ПН «Прорыв» в настоящее время уже построены основные здания модуля фабрикации и рефабрикации топлива (МФР) и осуществляются работы по сооружению энергоблока на основе реакторной установки «БРЕСТ–ОД–300». В качестве топлива реактора «БРЕСТ–ОД–300» предполагается использовать смешанное нитридное уран-плутониевое – СНУП–топливо. Сырьем для СНУП–топлива первой загрузки и первых перегрузок реактора послужит диоксид плутония, хранящийся на ПО «Маяк» на

специально оборудованном складе. К настоящему времени изготовлено более 50 т энергетического плутония.

В ходе переработки происходит смешивание плутония из отработавшего топлива реакторов разных типов, из-за чего изотопный состав плутония в контейнерах варьируется в очень широком диапазоне. Выпускается плутоний в расфасовке до 3 кг партиями с разным числом контейнеров: от 1 до 10 и более. По изотопному составу вся партия аттестуется на основании масс-спектрометрического анализа усредненной пробы.

В диссертации А.М. Павлова на основании выполненных гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония в контейнерах из трех партий сделан вывод: «... при существующей технологии переработки ОЯТ на заводе РТ-1 в периоды перехода от одних типов ОТВС к другим образуются партии диоксида (плутония) с неоднородностью изотопного состава, значительно превышающей погрешность масс-спектрометрического анализа». При этом в период с 1990 по 2000 гг. изотопный состав не измерялся и необходимая для использования этого плутония для производства топлива информация отсутствует. То есть, часть хранящегося на ПО «Маяк» плутония неверно аттестована по изотопному составу, что вызовет трудности при комплектации партий для изготовления топлива реакторов на быстрых нейтронах, в частности реактора БРЕСТ, к которому предъявляются высокие требования к однородности изотопного состава для обеспечения естественной безопасности.

Проблема может быть решена путем комплектации на заводе РТ-1 ПО «МАЯК» партий плутония со склада в допуск по среднему изотопному составу для изготовления топлива под загрузку активной зоны реактора на основании измерений в каждой упаковке с исходным диоксидом с высокой точностью. На практике при использовании разрушающих методов анализа, масс-спектрометрического и кулонометрического, повторное вскрытие упаковок для отбора пробы при контроле продукции производительностью несколько тонн в год крайне осложнено. Кроме того, эти методы обладают существенными недостатками: необходимостью отбора представительной пробы, сложной пробоподготовкой, которая занимает много времени и увеличивает погрешность результатов анализов.

Использование неразрушающих методов анализа изотопного состава и массы плутония сейчас ограничено подтверждающими измерениями. Это связано с недостаточной точностью. Нейтронные измерения массы, выполняют по разным методикам, которые являются частными случаями общей модели множественности. Они определяют эффективную массу ^{240}Pu с погрешностью 10–20 % из-за систематической

погрешности модели и необходимости данных об изотопном составе плутония. Калориметрические измерения очень точные, но для определения массы плутония необходимо знать удельное тепловыделение (изотопный состав) образца, которое неразрушающими методами может быть получено только гамма-спектрометрически. При проведении калориметрических измерений на результат оказывают влияние дестабилизирующие факторы, связанные температурой окружающей среды, которые особенно сильно сказываются при большой продолжительности анализа – до суток и более. Поэтому существенной является проблема стабилизации измерений. Гамма-спектрометрические методики определения изотопного состава плутония были аттестованы по приписанным погрешностям, так как до недавнего времени в методиках количественного химического анализа состава вещества в качестве показателей точности на практике, по крайней мере, в атомной промышленности, применялись только приписанные характеристики погрешности. Так до 2010 г. основополагающий ГОСТ Р 8.563–96 не распространялся на методики «характеристики погрешности измерений по которым определяют в процессе или после их применения» – «права гражданства» такие методики получили только с введением ГОСТ Р 8.563–2009. Использование приписанных погрешностей в гамма-спектрометрии плутония приводит к снижению точности анализа, из-за невозможности учета всех основных влияющих факторов – приходится «загрублять» оценку. При этом невозможно гамма-спектрометрически определить массовую долю ^{242}Pu , который обладает слабыми гамма-пиками, но при этом вносит заметный вклад в массу плутония. Поэтому в подтверждающих измерениях массовую долю ^{242}Pu берут либо из паспортных данных, либо используют изотопные корреляции, что значительно снижает точность и достоверность результатов.

Таким образом, для разработки и обоснования комплексного неразрушающего метода измерений изотопного состава и массы плутония необходимо:

1. Повысить точность гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония.
2. Разработать метод экстраполяции для стабилизации калориметрических измерений тепловыделения.
3. Разработать метод калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, позволяющий устранить систематический сдвиг, связанный с приближенностью модели метода.

4. Разработать методику неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония, включающую измерение содержания ^{242}Pu в плутонии.

Во второй главе описаны исследования гамма-спектрометрического метода измерений изотопного состава плутония и урана с использованием планарных детекторов из сверхчистого германия и программ обработки спектров MGA/MGAU. Для повышения точности гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония была разработана новая методология оценки метрологических характеристик.

Было доказано, что на результаты анализа оказывают влияние различные характеристики пробы, измерительной аппаратуры и условия измерения: масса и форма образца, материал и толщина стенки контейнера, положение образца относительно детектора, толщина фильтра из кадмия или какого-либо другого материала, разрешение гамма-спектрометра и его фоновая загрузка и т.д. Поэтому в зависимости от этих различий корректными будут разные условия измерений.

Были проведены многократные измерения изотопного состава различных образцов плутония – ГСО диоксида плутония с массовой долей ^{240}Pu в диапазоне от 4 % до 20 %, с разным объемом набранной статистики импульсов в спектре. В ходе работы сравнивали наблюдаемую дисперсию с рассчитанной дисперсией по программе MGA. Основные исследуемые параметры представлены ниже:

$$s^2 = \frac{\sum (c_i - \bar{c})^2}{N - 1} \quad (2.1)$$

где s^2 – наблюдаемая дисперсия;

c_i – результат измерений i массовой доли изотопа;

N – число измерений в серии; $1 \leq i \leq N$;

\bar{c} – среднее значение измерений массовой доли изотопа в серии.

σ^2 – обратная величина к диагональному элементу ковариационной матрицы, соответствующему данному изотопу (рассчитывается программой MGA при обработке спектра методом наименьших квадратов).

$$QFIT = \frac{\sum_{i=1}^n R_i^2}{n - m}, \quad (2.2)$$

где R_i – взвешенные остатки,

n – количество уравнений (каналов в анализируемом спектре),

m – количество переменных X_k .

Параметр $QFIT$ имеет распределение редуцированного χ^2 с $n - m$ степенями свободы.

$QFIT \times \sigma^2$ – рассчитываемая программой MGA дисперсия измерений массовой доли изотопа плутония или америция-241.

В программе MGA/MGAU результат – массовые доли изотопов, и погрешность (неопределенность) результата в форме ковариационной матрицы параметров – оцениваются в рамках единого алгоритма. Исследования методологии оценки метрологических характеристик показали возможность использования рассчитываемых программой MGA оценок дисперсии для аттестации методик измерений. Было доказано, что в методиках должны и могут быть определены и обоснованы корректные условия измерений, в которых наблюдаемая дисперсия $s^2 \frac{\tau}{\tau_0}$ меньше рассчитываемой программой

MGA оценки $QFIT \times \sigma^2 \frac{\tau}{\tau_0}$.

Наглядно влияние параметров анализируемого образца на дисперсию измерений изотопного состава проиллюстрировано на рисунке 2.1 и рисунке 2.2. На рисунке 2.1 показано соотношение наблюдаемой и рассчитанной дисперсии измерений массовой доли ^{240}Pu в стандартном образце изотопного состава плутония ГСО 01.1.02, представляющий собой диоксид плутония массой 3,2 г, на рисунке 2.2 – в образце металлического плутония массой 160 г. Оценки выполнены по пяти сериям по 26 измерений в каждой.

На рисунках красными треугольниками обозначены значения $s^2 \frac{\tau}{\tau_0}$, зелеными квадратами – $QFIT \times \sigma^2 \frac{\tau}{\tau_0}$, τ_0 - время, соответствующее 1×10^6 набранных импульсов в спектре.

Из сравнения рисунков видно, что характеристики дисперсии результатов измерений с металлическим плутонием существенно отличаются от дисперсии измерений с диоксидом плутония. Причем для образца металлического плутония условия при $\tau/\tau_0 = 40$ не являются корректными, тогда как для образца диоксида плутония корректными являются условия измерений, начиная с $\tau/\tau_0 = 20$. Отсюда следует, что для любого образца важным показателем корректности измерений является количество импульсов в спектре, поэтому для повышения точности предпочтительней увеличивать время измерения, а не число измерений. Систематический сдвиг должен оцениваться по

измерениям со стандартными образцами также с использованием рассчитанных дисперсий.

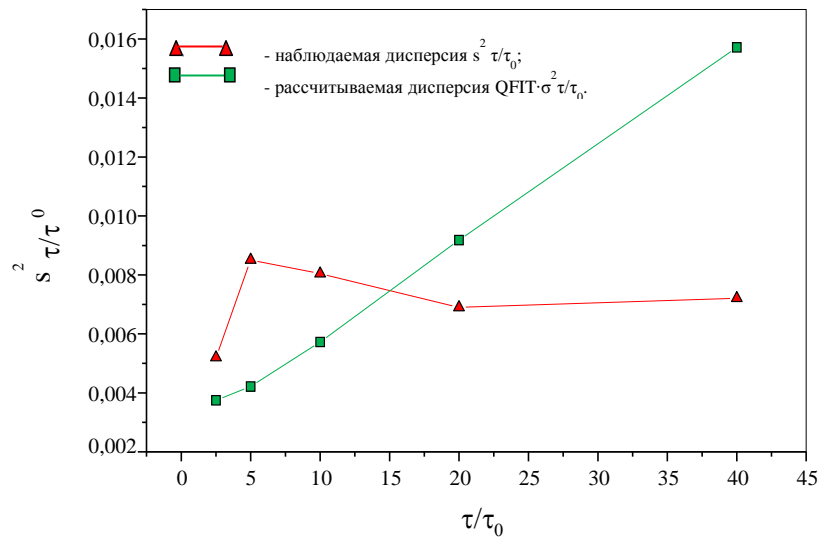


Рисунок 2.1 – Оценки дисперсии результатов измерений массовой доли ^{240}Pu в плутонии ГСО 03.1.02 от количества импульсов в спектре τ/τ_0 , где $\tau_0=10^6$ имп.

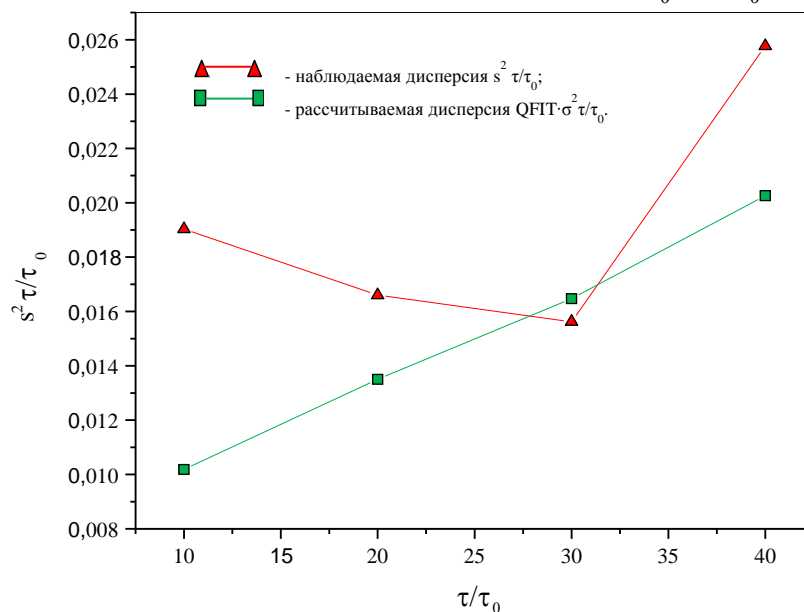


Рисунок 2.2 – Оценки дисперсии результатов измерений массовой доли ^{240}Pu в образце металлического плутония от количества импульсов в спектре τ/τ_0 , где $\tau_0=10^6$ имп.

Основные экспериментальные исследования были использованы для разработки и аттестации гамма-спектрометрической методики определения изотопного состава плутония. Были подобраны минимальные объемы набранной статистики относительно массовой доли ^{240}Pu для различных анализируемых проб. Суммарная абсолютная погрешность (неопределенность) для $P=0,95$ равна:

$$\Delta = \sqrt{\Theta^2 + 4 \times QFIT \times \sigma^2}, \quad (2.3)$$

где $2 \times \sqrt{QFIT \times \sigma^2}$ – характеристика частичной воспроизводимости (рассчитывается MGA);

Θ – неисключенная систематическая погрешность (оценивается по стандартным образцам).

Применение развитой методологии гамма-спектрометрических измерений изотопного состава плутония, основанной на сравнительном анализе наблюдаемых и рассчитываемых программой MGA дисперсий с учетом времени измерений, позволило уменьшить погрешность измерений в несколько раз по сравнению с методиками, аттестованными по приписанным погрешностям.

В третьей главе описаны исследования метода измерений тепловыделения плутониевых образцов на калориметре ML-3.0/15 производства Лос-Аламосской национальной лаборатории США. В пассивном режиме тепловую мощность образца W на калориметре ML-3.0/15 рассчитывают как:

$$W = V / k \quad (3.1)$$

где $V = BP - BL$ – разность измеренного напряжения на мосту калориметра при наличии анализируемого образца – BP , и без него – BL (базовая линия);

k – калибровочный коэффициент, который определяют заранее на основании измерений со стандартными образцами.

Проведенные при разработке калориметрической методики измерения тепловыделения плутониевых образцов показали, что основным влияющим фактором на точность измерений является дрейф базовой линии и ее флуктуации (рисунок 3.1). Было обнаружено, что при времени выхода на тепловое равновесие калориметра с загруженным образцом более 6 часов это приводит к нестабильности результатов измерений.



Рисунок 3.1 – График изменения значения базовой линии в зависимости от времени в период с октября 2018 г по март 2020 г

Для устранения нестабильности был разработан новый алгоритм обработки данных – метод экстраполяции тепловыделения, учитывающий дрейф базовой линии.

Величины BL и BP должны быть измерены в состоянии теплового равновесия. По стандартной, заложенной в программу MultiCal методике, момент наступления теплового равновесия определяется по критериям изменения модуля наклона текущих измерений напряжения и его стандартного отклонения – оба критерия должны быть выполнены одновременно. В описываемой методике калориметрических измерений этот подход был применен для измерений базовой линии до загрузки и после выгрузки образца из калориметра. Однако его применение для измерения значения BP приводит к большой погрешности из-за дрейфа базовой линии. Для повышения точности была разработана следующая процедура. Из измеряемых значений напряжения, которые регистрируются в ходе измерений с образцом в моменты времени $t_i - y(t_i)$, вычитали линейно интерполированную базовую линию $f(t_i)$. Линейную интерполяцию проводили по двум измерениям базовой линии: непосредственно перед загрузкой образца – BL_1 и после его выгрузки из камеры калориметра – BL_2 :

$$g(t_i) = y(t_i) - f(t_i), \quad (3.2)$$

$$f(t) = BL_1 + \frac{BL_2 - BL_1}{T} \times (t - t_0) \quad (3.3)$$

где $T = t_1 - t_0$ – время между измерениями BL_1 и BL_2 .

Результат измерения $BP - BL = V$ оценивали путем экспоненциальной экстраполяции зависимости $g(t_i)$:

$$g(t_i) = V - be^{-ct_i} \quad (3.4)$$

В данной процедуре использована экспоненциальность изменения напряжения со временем при выходе на тепловое равновесие, которое для калориметра ML-3.0/15 с хорошей точностью выполняется через примерно 2 часа после загрузки образца, рисунок 3.2.

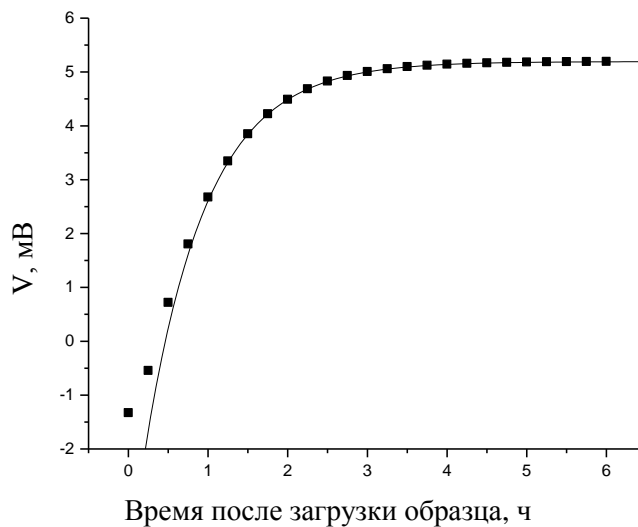


Рисунок 3.2 – Экстраполяция калориметрических измерений

Это свойство использовали также для сокращения измерений с образцом – образец выгружали примерно через 6 часов после загрузки, не дожидаясь наступления теплового равновесия по критериям изменения сглаженного напряжения. Начало и ширину интервала данных для экстраполяции контролировали по погрешности подгонки параметра V , которая должна быть незначима по сравнению с погрешностью однократного измерения (оценивается при калибровке).

Для калибровки калориметра ML-3.0/15 применялись отраслевые стандартные образцы металлического плутония ОСО 95 1307–2011 (№106), ОСО 95 1308–2011 (№206), ОСО 95 1309–2011 (№306), ОСО 95 1310–2011 (№406), ОСО 95 1311–2011 (№506). Калибровку проводили дважды: в 2016 г. и в 2018 г.

Был получен калибровочный коэффициент

$$k = \frac{\sum W_i V_i}{\sum W_i^2} \text{ и его стандартное отклонение} \quad (3.5)$$

$$S_k = \sqrt{\frac{\sum (V_i - kW_i)^2}{(n-1)\sum W_i^2}}, \text{ где } n - \text{ число измерений.} \quad (3.6)$$

Относительная стандартная неопределенность полученной оценки калибровочного коэффициента составляет $\delta_k = S_k / k$.

Стандартное отклонение однократного измерения оценивается как:

$$S_V = \sqrt{\frac{\sum (V_i - kW_i)^2}{n-1}}. \quad (3.7)$$

Стандартное отклонение однократного измерения характеризует повторяемость результатов при флуктуациях базовой линии. По итогам двух калибровок было принято средневзвешенное значение калибровочного коэффициента:

$$\bar{k} = \frac{k_1 / S_{k1}^2 + k_2 / S_{k2}^2}{1 / S_{k1}^2 + 1 / S_{k2}^2} = 5,3980 \times 10^{-3} \text{ В/Вт},$$

$$\bar{S}_k = \sqrt{\frac{1}{1 / S_{k1}^2 + 1 / S_{k2}^2}} = 2,0 \times 10^{-6} \text{ В/Вт},$$

$$\bar{S}_V = \sqrt{\frac{S_{V1}^2 (n_1 - 1) + S_{V2}^2 (n_2 - 1)}{n_1 + n_2 - 2}} = 6,6 \times 10^{-6} \text{ В}$$

В главе представлены основные экспериментальные результаты исследований, которые подтверждают работоспособность калориметрического метода экстраполяции тепловыделения плутониевых образцов. Был расширен диапазон измерений до 1802 мВт с использованием дополнительных образцов ^{240}Pu – СП–1 и СП–2, измерения с которыми подтвердили линейность градуировки калориметра.

При аттестации калориметрической методики определения тепловыделения были получены относительные значения приписанных характеристик погрешности измерений тепловой мощности образцов (в т.ч. для целей государственного учета и контроля ядерных материалов) при доверительной вероятности $P = 0,95$ в диапазоне от 403,5 мВт до 1802 мВт – 0,0082 отн.ед.

Значение расширенной неопределенности конкретного результата измерения по методике при доверительной вероятности $P=0,95$ рассчитывается в соответствии с ГОСТ 34100.3–2017/ISO/IEC Guide 98–3:2008 по формуле

$$U = 2u_c, \quad (3.8)$$

где u_c – суммарная неопределенность

Суммарную неопределенность измерений тепловой мощности, значение которой рассчитывают по формуле:

$$u_c = \sqrt{u_v^2 + u_k^2 + u_\omega^2}, \quad (3.9)$$

где $u_v = \frac{S_v}{V}$ – относительная стандартная неопределенность однократного измерения;

$S_v = 6,6 \cdot 10^{-6}$ В – стандартное отклонение однократного измерения;

V – измеренное значение напряжения, полученное по формуле (3.4);

$u_k = 0,037$ % – относительная стандартная неопределенность калибровочного коэффициента;

$u_\omega = 0,15$ % – относительная стандартная неопределенность аттестованного тепловыделения стандартных образцов, использованных при калибровке.

Для определения тепловыделения плутониевых образцов массой до 60 г были проведены экспериментальные измерения на калориметре «ANTECH» модели 601, которые позволили разработать и аттестовать калориметрическую методику определения тепловыделения проб малой массы.

В четвертой главе описан и обоснован метод калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым стандартным образцам, аттестованных по массе и изотопному составу.

Принцип работы метода множественности нейтронов (далее – ММН) основан на том, что, пользуясь различиями в распределении множественности нейтронов разного происхождения, с помощью детекторов множественности выделяют нейтроны спонтанного деления на фоне нейтронов (α, n)-реакции и нейтронов вынужденного деления. Скорость спонтанных делений S_{sp} , связывают с эффективной массой изотопа ^{240}Pu , по которой при известном изотопном составе рассчитывают массу плутония:

$$m_{eff} = CS_{sp} \quad (4.1)$$

где m_{eff} – эффективная масса плутония-240;

$$C = \frac{1}{473,5} \text{ г}\cdot\text{с} \text{– величина обратная удельной скорости спонтанных делений } ^{240}\text{Pu}.$$

По определению эффективная масса ^{240}Pu – это такая масса образца из плутония-240, число нейтронов спонтанного деления в котором равно числу нейтронов спонтанного деления всех четных изотопов плутония в анализируемом образце:

$$m_{eff} = m_{Pu} \cdot (2,52 \cdot ^{238}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} + 1,68 \cdot ^{242}\text{Pu}) \quad (4.2)$$

где ^iPu – массовая доля i -го изотопа в плутонии, отн. ед.;

m_{Pu} – масса плутония в образце, г.

Коэффициенты 2,52 и 1,68 равны отношению удельного числа нейтронов спонтанного деления соответственно ^{238}Pu и ^{242}Pu к удельному числу нейтронов спонтанного деления ^{240}Pu .

Скорость нейтронов спонтанного деления S_{sp} и две другие характеристики – коэффициент умножения нейтронов M и отношение числа (α, n) -нейтронов к числу нейтронов спонтанного деления α в образце, вычисляются по измеренным с использованием детектора множественности потоку нейтронов N_1 , двойным N_2 и тройным N_3 нейтронным совпадениям, решая уравнения

$$N_1 = S\varepsilon\langle\nu\rangle = S\varepsilon M\langle\nu_s\rangle = S_{sp}\varepsilon M\langle\nu_{sp}\rangle(1+\alpha), \quad (4.3)$$

$$N_2 = \frac{1}{2}S\varepsilon^2\chi_2\langle\nu(\nu-1)\rangle = \frac{1}{2}S_{sp}\varepsilon^2\chi M^2\left[\langle\nu_{sp}(\nu_{sp}-1)\rangle + \left(\frac{M-1}{\langle\nu_f\rangle-1}\right)\langle\nu_{sp}\rangle(1+\alpha)\langle\nu_f(\nu_f-1)\rangle\right] \quad (4.4)$$

$$N_3 = \frac{1}{6}S\varepsilon^3\chi_3\langle\nu(\nu-1)(\nu-2)\rangle = \frac{1}{6}S_{sp}\varepsilon^3\chi^2 M^3\left\{\langle\nu_{sp}(\nu_{sp}-1)(\nu_{sp}-2)\rangle + \left(\frac{M-1}{\langle\nu_f\rangle-1}\right)\left[3\langle\nu_{sp}(\nu_{sp}-1)\rangle\langle\nu_f(\nu_f-1)\rangle + \langle\nu_{sp}\rangle(1+\alpha)\langle\nu_f(\nu_f-1)(\nu_f-2)\rangle\right] + 3\left(\frac{M-1}{\langle\nu_f\rangle-1}\right)^2\langle\nu_{sp}\rangle(1+\alpha)\langle\nu_f(\nu_f-1)\rangle^2\right\}. \quad (4.5)$$

где

- параметры ε (эффективность регистрации нейтронов) и χ (коэффициент отбора совпадений) являются калибровочными коэффициентами;
- величины в угловых скобках являются факториальными моментами распределения множественности нейтронов спонтанного (с индексом sp) и вынужденного деления (с индексом f), которые табулированы.

ММН требует калибровки детектора по эффективности регистрации нейтронов и по коэффициенту отбора совпадений.

Уравнения (4.3)–(4.5) описывают точечную модель суперделений, содержащую ряд приближений, которые приводят к тому, что при традиционной калибровке детекторов

множественности по стандартным образцам металлического ^{252}Cf возникает систематическая погрешность измерений эффективной массы плутония-240 на уровне 10–20 %. Систематическая погрешность связана с различиями нейтронно-физических свойств ^{252}Cf и реальных образцов измерения. Кроме того, проведенное в диссертации теоретическое рассмотрение модели суперделений показало, что традиционная калибровка не учитывает зависимости калибровочных коэффициентов от вероятности поглощения нейтронов в образце (коэффициента умножения нейтронов).

В диссертации развит способ калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, с применением подхода Фейнмана, который позволил исключить систематическую погрешность, связанную с приближенностью модели метода. Такой подход ранее не использовался в методиках измерений массы плутония. Он позволил связать коэффициент отбора совпадений со скоростью счета нейтронов, ее дисперсией и скоростью счета двойных совпадений соотношением:

$$\chi = \frac{2N_2}{N_1} \cdot \frac{1}{\frac{\sigma^2 t}{N_1} - 1}, \quad (4.6)$$

где σ^2 – дисперсия скорости счета нейтронов (оценивается по многократным измерениям).

Совокупность уравнений (4.3)–(4.5) и (4.6) образуют замкнутую систему относительно переменных χ , ε , M , α которые рассчитывают по измеренным значениям N_1 , N_2 , N_3 , σ^2 и заданному значению S_{sp} (оценивается по аттестованным характеристикам стандартного образца, по которому выполняют калибровку). Этот подход не содержит никаких дополнительных приближений и применим к любым образцам без ограничения. При этом не требуется, чтобы образец был неразмножающим – могут быть использованы плутониевые образцы со свойствами близкими к объектам измерения. При калибровке предложенным способом возможно достижение высокой для неразрушающих методов точности – относительное стандартное отклонение равно нескольким десятым долям процента.

Экспериментальные исследования подтвердили работоспособность метода калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам на трех счетчиках RENMC, АWCC(JCC–51), JCC–31 имеющих значительные различия по своим техническим характеристикам. Был подтвержден теоретический вывод о наличии зависимости калибровочных коэффициентов от умножения нейтронов в образце.

Для оценки влияющих на точность измерений факторов на счетчике RENMC производства Лос-Аламосской лаборатории США были проведены калибровочные измерения со всеми доступными образцами плутония, в число которых входили государственные стандартные образцы диоксида плутония, отраслевые стандартные образцы металлического плутония, контейнеры с диоксидом плутония из комплекта ТУК-30 ПО «Маяк», диоксид плутония в контейнерах АО «ВНИИНМ», образец металлического плутония СП-1, с высоким, около 90 %, содержанием ^{240}Pu . Наглядно результаты измерений проиллюстрированы графиком на рисунке 4.1.

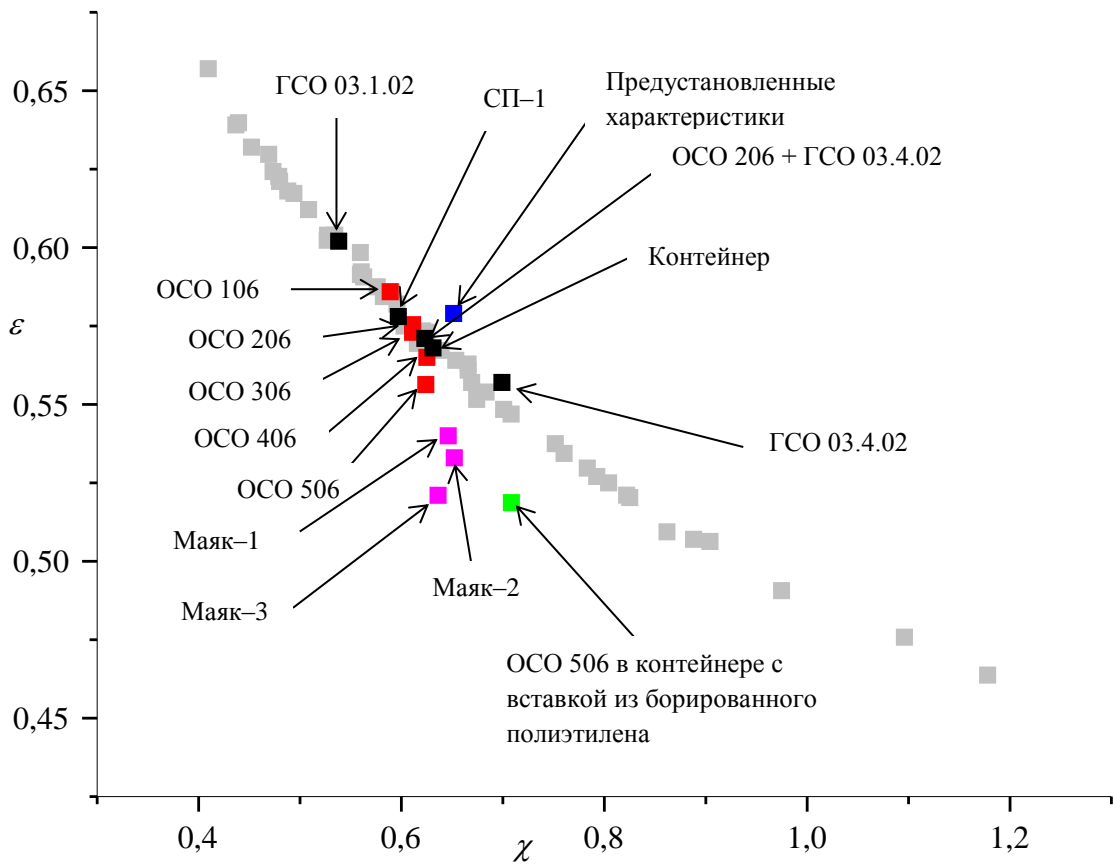


Рисунок 4.1 – График зависимости калибровочных коэффициентов

Серые точки – линия калибровочных коэффициентов, оцененных в многократных экспериментах для ОСО-206 с низким умножением $M \approx 1$.

Черные точки – калибровочные коэффициенты образцов ГСО 03.1.02, ГСО 03.4.02, СП-1, Контейнер и пара образцов ОСО 206 и ГСО 03.4.02.

Красные точки – калибровочные коэффициенты для образцов ОСО 106 – ОСО 506, с одинаковым изотопными составом, но возрастающей массой.

Розовые точки – калибровочные коэффициенты для диоксида плутония ПО «МАЯК» в упаковках ТУК–30, с массой диоксида от 2 кг до 3 кг.

Зеленая точка – калибровочные коэффициенты для образца ОСО 506, помещенного в контейнер АО «ВНИИНМ» с поглощающей вставкой из борированного полиэтилена.

Синяя точка – калибровочные коэффициенты предустановленные изготовителем, точка лежат в области недопустимых значений т. к. $M < 1$ не бывает.

Для оценки влияния свойств образцов на результаты измерений были выполнены оценки смещения эффективной массы ^{240}Pu , измеренной с калибровочными коэффициентами, оцененными по ОСО 106 – ОСО 506, относительно рассчитанных по паспортным или аттестованным параметрам. Для образцов ГСО 03.1.02, ГСО 03.4.02 и пары образцов ОСО 206 и ГСО 03.4.02 для расчета эффективной массы плутония-240 были взяты калибровочные коэффициенты ОСО 106, а для остальных образцов калибровочные коэффициенты устанавливались линейной интерполяцией коэффициентов образцов ОСО 106 – ОСО 506 по параметру M . Полученные результаты позволяют оценить неисключенную систематическую погрешность измерений на уровне около 1%:

Образец	Смещение оценки эффективной массы плутония-240, %
ГСО 03.1.02.....	-0,18
ГСО 03.4.02.....	+1,04
СП–1.....	+0,24
ОСО 206 и ГСО 03.4.02.....	-1,18
Контейнер.....	-0,84

На основании выполненных исследований оценена максимальная систематическая погрешность измерений эффективной массы ^{240}Pu в образцах металлического плутония и диоксида плутония – $b = 1,18$ %.

Наблюдался эффект уменьшения эффективности регистрации нейтронов и увеличение коэффициента отбора совпадений при увеличении массы однотипных образцов.

При анализе полученных результатов было обнаружено, что калибровочные коэффициенты коррелируют с коэффициентом близким к -1 . Качественно это объясняется тем, что калибровочные коэффициенты $\varepsilon = \varepsilon(p)$ и $\chi = \chi(p)$ зависят от одного и того же параметра – вероятности поглощения нейтрона в образце в рамках точечной модели суперделений. Вследствие корреляции погрешности калибровочных коэффициентов

компенсируют друг друга при измерении массы плутония, что обеспечивает необходимую точность измерений. Исследования показали, что с использованием разработанного метода калибровки на счетчике RENMC можно выполнять измерения массы плутония с погрешностью (неопределенностью) не более одного процента.

В главе представлены метрологические характеристики разработанной и аттестованной методики определения эффективной массы ^{240}Pu с использованием счетчика множественности нейтронов RENMC.

Максимально допустимые относительные значения границ суммарной погрешности измерений эффективной массы ^{240}Pu при доверительной вероятности $P = 0,95$ установлены в диапазоне от 0,1092 до 8,27 г – 0,025 отн.ед.

Значение расширенной неопределенности конкретного результата измерения для $P=0,95$ рассчитывается в соответствии с ГОСТ 34100.3-2017/ISO/IEC Guide 98-3:2008 по формуле

$$U = 2u_c, \quad (4.7)$$

где u_c – суммарная неопределенность.

Суммарную неопределенность измерений эффективной массы ^{240}Pu рассчитывают по формуле:

$$u_c = \sqrt{u_B^2 + u_K^2 + u_{cx}^2}, \quad (4.8)$$

где u_B – составляющая, оцениваемая по типу В;

$$u_K = \frac{\sigma_S}{S_{sp}} \text{ – стандартная неопределенность калибровки детектора множественности;}$$

$$u_{cx} = \frac{\sigma_{eff}}{m_{eff}} \text{ – стандартная неопределенность сходимости измерений.}$$

Составляющую неопределенности по типу В рассчитывают по формуле:

$$u_B = \sqrt{\left(\frac{b}{2}\right)^2 + (u_{st})^2}, \quad (4.9)$$

где b – максимальное смещение результата измерения=1,18 %;

u_{st} – стандартная неопределенность эффективной массы ^{240}Pu в образце, по которому проводилась калибровка.

При измерении плутония и его соединений $b = \Theta_c$.

При измерении отходов b рассчитывают по формуле:

$$b = \frac{a_1 - a_2}{1 + (m/m_0)^p} + a_2, \% \quad (4.10)$$

где m – масса плутония, г;

$$a_1 = 116,64 \% ; a_2 = 4,6 \% ; m_0 = 13,86 \text{ г} ; p = 3,27953 .$$

В пятой главе описана разработка комплексного неразрушающего беспроботборного метода, который позволяет осуществлять полный сбалансированный инструментальный контроль плутония в смешанном топливе – от момента поступления сырья до его выпуска, включающий в себя одновременное использование трех методов: гамма-спектрометрического, калориметрического и нейтронметрического.

Разработанный методический подход реализован в АО «ВНИИНМ» на оборудовании: гамма-спектрометре высокого разрешения с программой MGA, калориметре ML–3.0/15 (или калориметре «ANTECH») и счетчике множественности RENMC.

Разработка метода стала возможной благодаря достижению высокой точности нейтронных измерений. Основная проблема, которая решена в разработке, – это измерение массовой доли изотопа ^{242}Pu в плутонии. ^{242}Pu имеет слишком низкую интенсивность гамма-излучения и низкое тепловыделение для его определения гамма-спектрометрическим и калориметрическим методами. Содержание ^{242}Pu в энергетическом плутонии достигает 7%, поэтому отсутствие возможности его измерения с достаточной точностью приводит к неприемлемо большой погрешности измерения массы и изотопного состава плутония. В комплексном методе для измерения содержания ^{242}Pu используется то, что этот изотоп вносит заметный вклад в эффективную массу ^{240}Pu , которая измеряется методом множественности нейтронов.

Для вычислений применяют разработанную методику расчета № 8/393–2021 «Плутоний. Комплексный метод расчета изотопного состава и массы плутония» (экспертное заключение о метрологической экспертизе № 531/507–2022).

Массу плутония рассчитывают из системы 5 уравнений

$$\left\{ \begin{array}{l} m = \frac{W}{\tilde{\omega}} + m_{242} \cdot \left(1 - \frac{\omega_{242}}{\tilde{\omega}}\right) \\ m_{eff} = 2,52m_{238} + m_{240} + 1,68m_{242} \\ m_{238} = \tilde{x}_{238} \frac{W - m_{242}\omega_{242}}{\tilde{\omega}} \\ m_{240} = \tilde{x}_{240} \frac{W - m_{242}\omega_{242}}{\tilde{\omega}} \\ \tilde{\omega} = \sum \omega_i \tilde{x}_i + \omega_{am} \tilde{x}_{am} \end{array} \right. , \quad (5.1)$$

где W – тепловыделение анализируемого образца (смеси изотопов плутония и америция); $m = \sum m_i$ – масса плутония (суммарная масса всех изотопов плутония) в образце, $i = 238, 239, 240, 241, 242$; $\tilde{x}_i = m_i / (m - m_{242})$ – массовая доля изотопа плутония i в смеси изотопов плутония без ^{242}Pu ; $\tilde{x}_{am} = m_i / (m - m_{242})$ – отношение массы ^{241}Am к суммарной массе изотопов плутония без ^{242}Pu ; $\tilde{\omega} = \sum \omega_i \tilde{x}_i + \omega_{am} \tilde{x}_{am}$ – удельное тепловыделение смеси изотопов плутония и америция, приведенное к массе плутония без ^{242}Pu ; ω_i и ω_{am} – удельное тепловыделение изотопа плутония i и ^{241}Am , m_{eff} – эффективная масса ^{240}Pu . Исходными измеряемыми параметрами являются W , \tilde{x}_{238} , \tilde{x}_{239} , \tilde{x}_{240} , \tilde{x}_{241} , \tilde{x}_{am} и m_{eff} , а неизвестными – m , m_{238} , m_{240} , m_{242} .

Такое представление комплексного метода удобно, так как в нем в явном виде есть все непосредственно измеряемые параметры.

В результате решения системы получили:

$$m = f(W, \tilde{\omega}, m_{242}) = \frac{W}{\tilde{\omega}} + m_{242} \cdot \left(1 - \frac{\omega_{242}}{\tilde{\omega}}\right), \quad (5.2)$$

$$\text{где } m_{242} = g(W, \tilde{\omega}, \tilde{x}_{238}, \tilde{x}_{240}, m_{eff}) = \frac{m_{eff} \tilde{\omega} - W \cdot (2,52\tilde{x}_{238} + \tilde{x}_{240})}{1,68\tilde{\omega} - \omega_{242} \cdot (2,52\tilde{x}_{238} + \tilde{x}_{240})}, \quad (5.3)$$

$$\tilde{\omega} = r(\tilde{x}_{238}, \tilde{x}_{239}, \tilde{x}_{240}, \tilde{x}_{241}, \tilde{x}_{am}) = \sum \omega_i \tilde{x}_i + \omega_{am} \tilde{x}_{am}. \quad (5.4)$$

Условную массовую долю ^{242}Pu (отношение массы нуклида к суммарной массе изотопов плутония) рассчитывают по формуле:

$$x_{242} = m_{242} / m \quad (5.5)$$

Условные массовые доли остальных изотопов плутония и америция рассчитывают по формуле:

$$x_{i(am)} = \tilde{x}_{i(am)} \cdot (1 - x_{242}) \quad (5.6)$$

В главе описаны реальные измерения изотопного состава и массы плутония в диоксиде плутония, поступившие из ПО «Маяк». Диоксид плутония из упаковки ТУК–30 паспорт № 4245 был перетарен в 11 контейнеров АО «ВНИИНМ» по примерно 200 грамм. С 5–ью контейнерами были выполнены комплексные измерения, результаты которых продемонстрированы в таблице 5.1:

Таблица 5.1 – Результаты комплексных измерений

№ п/п	Образец	m , г	η , %	x_{238} , %	x_{239} , %	x_{240} , %	x_{241} , %	x_{242} , %	x_{am} , %
1	П–1	146,34	87,49	0,041	95,815	3,978	0,093	0,071	0,017
2	П–3	152,26	87,60	0,041	95,799	3,978	0,093	0,088	0,017
3	П–4	147,02	87,61	0,041	95,802	3,978	0,093	0,085	0,017
4	П–9	149,61	87,92	0,041	95,812	3,978	0,093	0,074	0,017
5	П–11	152,43	87,12	0,041	95,791	3,977	0,093	0,096	0,017
Среднее			87,55	0,041	95,804	3,978	0,093	0,083	0,017

Проведенные нейтронные измерения при комплексном анализе контейнера с диоксидом плутония показали, что в верхней части исходного контейнера из упаковки количество (α, n) –нейтронов значительно больше, чем в нижней его части из-за присутствующей примеси фтора. Полученные результаты продемонстрировали высокую точность и стабильность в условиях измерений разного по примесному составу плутония.

В главе приведены оценки бюджета неопределенности измерений массовой доли ^{242}Pu и массы плутония. В плутонии с низким содержанием ^{242}Pu большая неопределенность его определения слабо сказывается на точности измерения массы плутония, в то время как для энергетического плутония ^{242}Pu вносит заметный вклад. Исследования показали, что измерения массы плутония комплексным методом могут быть выполнены с неопределенностью на уровне 1 %, что сопоставимо с результатами разрушающих измерений.

Описано применение неразрушающих методов анализа изотопного состава и массы плутония в АО «ВНИИНМ». Комплексный метод измерений изотопного состава и массы плутония внедрен в программу измерений в АО «ВНИИНМ» для зоны баланса ядерных материалов мирного назначения ЗБ ЯМ МН № 2.

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ

1. Исследования методологии оценки метрологических характеристик гамма-спектрометрических измерений с использованием программ обработки спектров MGA/MGAU подтвердили возможность использования этих оценок для аттестации методик измерений. Новая методология оценки метрологических характеристик основывается на сравнительном анализе наблюдаемых и рассчитываемых программой MGA дисперсий с учетом времени измерения (количество набранных в спектре импульсов), который необходим для оценки корректных условий измерений изотопного состава плутония. Данный подход позволил повысить точность измерений изотопного состава плутония в несколько раз по сравнению с методиками, аттестованными по приписанным погрешностям.

2. В результате гамма-спектрометрических исследований была разработана и аттестована методика МВИ № 2/393–2017 «Плутоний и его соединения. Гамма-спектрометрическая методика измерений изотопного состава плутония и америция-241», – с использованием гамма-спектрометра «U-Pu InSpector» производства Canberra, с блоком детектирования на основе HPGe-кристалла планарного типа.

3. Для стабилизации измерений тепловыделения плутониевых образцов калориметрическим методом был разработан метод экстраполяции. Благодаря методу экстраполяции продолжительность измерений сократилась в 2 раза, и была обеспечена стабильность калориметрических измерений тепловыделения плутониевых образцов. Результатом исследований стала методика МВИ № 5/393–2021 «Плутоний. Методика измерений тепловой мощности образцов с применением калориметра модели ML–3.0/15 производства ЛАНЛ». Методика аттестована в диапазоне от 13,5 мВт до 1802 мВт.

4. Для анализа малых проб была разработана, аттестована в диапазоне до 150 мВт методика измерений МВИ № 6/393–2021 «Плутоний. Методика измерений тепловой мощности образцов с применением калориметра модели 601 производства корпорации «ANTECH».

5. Впервые в рамках точечной модели суперделений наблюдался эффект зависимости от вероятности поглощения нейтрона в образце эффективности регистрации нейтронов и коэффициента отбора совпадений, а также связанная с этим коррелированность калибровочных коэффициентов детекторов множественности нейтронов. Вследствие корреляции погрешности калибровочных коэффициентов компенсируют друг друга при измерении массы плутония, что обеспечивает необходимую точность измерений

6. Впервые с помощью подхода Фейнмана был разработан метод калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам, который позволил исключить систематическую погрешность, связанную с приближенностью модели метода.

7. Экспериментально подтверждена работоспособность предложенного способа калибровки детекторов множественности по плутониевым образцам на нейтронных счетчиках различной конфигурации.

8. Благодаря предложенному новому методу калибровки детекторов множественности нейтронов максимальная систематическая погрешность измерений эффективной массы ^{240}Pu в металлическом плутонии и диоксиде плутония была снижена до примерно 1,2 %. В результате исследований была разработана, аттестована методика измерений МВИ № 7/393–2020 «Плутоний. Измерение эффективной массы изотопа плутоний-240 методом множественности нейтронов». Методика реализована на счетчике множественности нейтронов RENMC производства ЛАНЛ США.

9. Был разработан и обоснован комплексный метод измерений, включающий перечисленные методики и методику расчета изотопного состава, включая массовую долю ^{242}Pu , и массы плутония МВИ № 8/393–2021 «Плутоний. Комплексный метод расчета изотопного состава и массы». По результатам метрологической экспертизы методики расчета получено положительное экспертное заключение № 531/507–2022. Проведенные исследования показали, что измерения массы плутония комплексным методом могут быть выполнены с неопределенностью на уровне 1 %, что сопоставимо с результатами разрушающих измерений.

10. Разработанный «Комплексный метод неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония» внедрен в систему измерений ядерных материалов АО «ВНИИНМ», что подтверждено Актом внедрения от 20.04.2022 г. № 26/187–акт.

Основные публикации по теме диссертации.

По теме диссертации опубликовано 10 работ, включая 5 статей в журналах, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией при Министерстве науки и высшего образования Российской Федерации и индексируемых в реферативных базах Scopus.

1. **Gorbunova, A. Y.** Characterization of nuclear materials using complex of non-destructive and mass-spectroscopy methods of measurements / A.Y. Gorbunova, A. Kramchaninov // Symposium on International safeguards. Linking Strategy, Implementation and People. IAEA. CN-220–364. – Austria, Vienna, 2014. – 145 p.

2. **Горбунова, А.Ю.** Методология исследований метрологических характеристик MGAU/MGA-метода измерений изотопного состава плутония и урана / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // ВАНТ, серия: Материаловедение и новые материалы. – 2014. №2(77). – С. 43–59.

3. **Горбунова, А.Ю.** Материалы ядерной техники. Комплекс ядерно-физических измерений ОАО «ВНИИНМ» / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // МАЯТ–2014: Программа и тезисы Всероссийской научно-технической конференции. – Звенигород, 2014. – С. 88.

4. **Горбунова, А.Ю.** Материалы ядерной техники. Методология исследований метрологических характеристик MGA/MGAU-метода измерений изотопного состава плутония и урана / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // МАЯТ–2014: Программа и тезисы Всероссийской научно-технической конференции. – Звенигород, 2014. – С. 90.

5. **Горбунова, А.Ю.** Материалы ядерной техники. Ядерно-физические методики в системе измерений ядерных материалов ОАО «ВНИИНМ» / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // МАЯТ–2014: Программа и тезисы Всероссийской научно-технической конференции. – Звенигород, 2014. – С. 87.

6. **Горбунова, А.Ю.** Калибровка детекторов множественности нейтронов / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // Атомная энергия. – 2015. – Т. 119, № 3. – С.168–173.

7. Комплексный метод неразрушающих измерений изотопного состава и массы плутония / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин, Д.И. Смирнов, В.И. Тимошин // Атомная энергия. – 2017. – Т. 123, № 3. – С. 149–154.

8. **Горбунова, А.Ю.** Применение способа калибровки детекторов множественности нейтронов по плутониевым образцам / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // ВАНТ, серия: Материаловедение и новые материалы. – 2020. – № 1(102). – С. 49–55.

9. Калориметрический участок лаборатории ядерно-физических измерений и исследований АО «ВНИИНМ» / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин, Д.И. Смирнов, О.А. Стрельцов // ВАНТ, серия: материаловедение и новые материалы. – Москва, 2020. – вып. 4(105). – С. 94–104.

10. **Горбунова, А.Ю.** Калибровочные коэффициенты в модели суперделений метода множественности нейтронов / А.Ю. Горбунова, В.Ю. Рогожкин // Атомная энергия. – 2022. – Т. 132, № 3. – С. 170–174.